



**HAL**  
open science

# Contribution à l'étude des transferts thermiques à l'échelle nanométrique : interaction pointe-surface

Pierre-Olivier Chapuis

► **To cite this version:**

Pierre-Olivier Chapuis. Contribution à l'étude des transferts thermiques à l'échelle nanométrique : interaction pointe-surface. Physique [physics]. Ecole Centrale Paris, 2007. Français. NNT : . tel-00297665

**HAL Id: tel-00297665**

**<https://theses.hal.science/tel-00297665>**

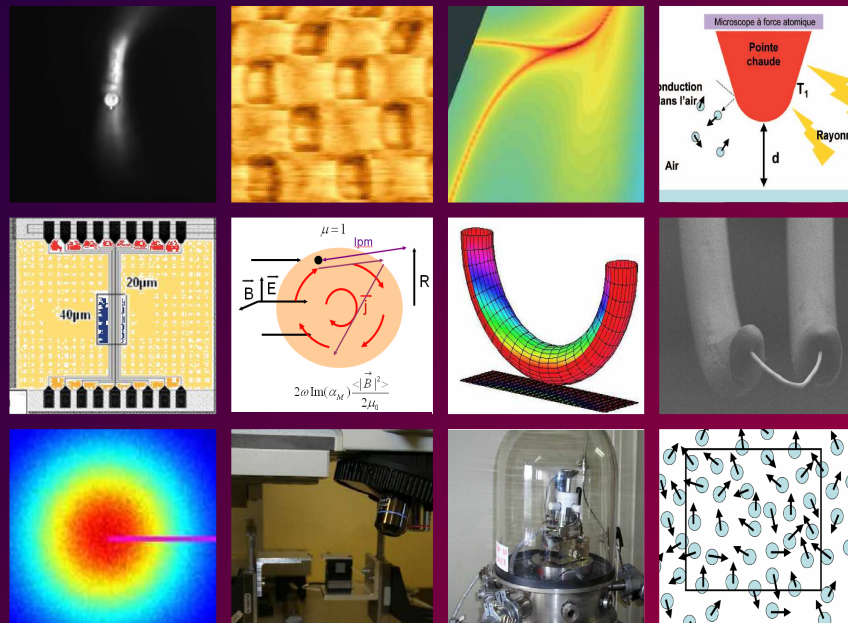
Submitted on 16 Jul 2008

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# Contribution à l'étude des transferts thermiques à l'échelle nanométrique : interaction pointe-surface

P.-Olivier Chapuis



Thèse de doctorat (2007)



# THÈSE

présentée par

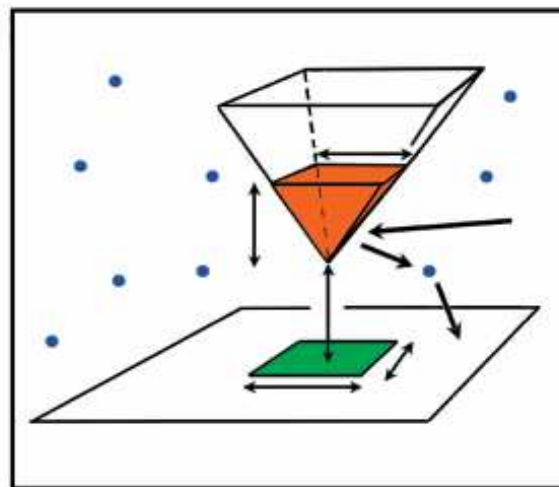
**Pierre-Olivier CHAPUIS**

pour l'obtention du

**GRADE de DOCTEUR**

Formation doctorale : Sciences pour l'ingénieur (Energétique, Physique)  
Laboratoire d'accueil : Laboratoire EM2C, CNRS et ECP

## Contribution à l'étude des transferts thermiques à l'échelle nanométrique : interaction pointe-surface



Soutenue le lundi 17 décembre 2007 devant le jury composé de

MM.	Urs	DUERIG	Examineur
	Jean-Jacques	GREFFET	Directeur de thèse
	Carsten	HENKEL	Rapporteur
	Bernard	PERRIN	Rapporteur
	Serge	REYNAUD	Président
	Sebastian	VOLZ	Directeur de thèse



# Remerciements



Ce mémoire de thèse est le résultat de trois ans et demi de travail. Je souhaite en premier lieu rendre à César ce qui est à César et donc remercier les personnes qui ont permis l'obtention des travaux qui y sont présentés.

Je remercie tout d'abord les membres du jury pour leur présence à la soutenance et leur lecture attentive du manuscrit. Je m'excuse encore auprès de Serge Reynaud (LKB, CNRS-Paris 6-ENS) pour l'imbroglio postal qui l'a obligé à lire le manuscrit avec une célérité impressionnante. Je remercie Bernard Perrin (CNRS-Paris 6), dont je sais que le temps est compté à l'Institut des NanoSciences de Paris, pour avoir bien voulu exercer la fonction de rapporteur. Je remercie de même Carsten Henkel (Université de Potsdam), notamment pour son examen minutieux du manuscrit. Je souhaite enfin remercier Urs Dürig (IBM Zürich) d'avoir bien voulu juger mon travail et de s'être déplacé pour la soutenance.

J'ai eu la chance d'avoir deux excellents directeurs de thèse, avec lesquels j'ai travaillé quasiment successivement. Je remercie Sebastian (Volz) de m'avoir fait découvrir la nanothermique. Son enthousiasme communicatif et sa curiosité naturelle m'ont permis d'être associé à un grand nombre de projets. Je le remercie vivement de m'avoir mis le pied à l'étrier et de m'avoir guidé tout au long de la thèse. Je remercie également Jean-Jacques (Greffet), le pédagogue plein de rigueur que tout le monde connaît. Travailler avec quelqu'un d'aussi rassurant donne l'impression qu'on va pouvoir gravir toutes les montagnes. Merci à vous deux!!

Je tiens à remercier aussi les personnes avec qui j'ai fortement interagi durant la thèse. Merci à Emmanuel (Rousseau), dit Mister Manip, pour son arrivée en janvier 2007 synonyme de véritable professionnalisme expérimental. Il a repris le flambeau du microscope et a été pour une très grande part dans les résultats expérimentaux présents dans le mémoire. Merci aussi à Marine (Laroche), la Marina, pour sa joie de vivre et son oeil prompt de tête chercheuse. Son retour au labo en septembre 2006 a été vraiment bien pratique! I also thank Sourabh (Kumar Saha) for his stay at the lab in the summer 2006.

Je remercie encore Carsten Henkel pour sa rigueur incorruptible et les éclaircissements qu'il m'a présentés lors de son séjour au laboratoire en 2006. Je tiens à remercier tout particulièrement Karl Joulain pour sa fougue et sa gentillesse, notamment au cours de toutes les discussions qu'on a pu

avoir. Quelle vivacité! Enfin, je remercie Séverine Gomès et tous les membres du GDR pour les stimulantes rencontres. Je mentionnerai plus particulièrement Stéphane Lefèvre, l'auteur de mon livre de chevet, le groupe de Bordeaux, Lionel Aigouy et la troupe de l'ESPCI...

Je vais terminer cette zone Nano en souhaitant du bonheur à Romain, dont les talents informatiques ne sont plus à signaler, Christophe dit D'Artagnan, Matthieu à PC et Yann, Loc aussi, et les superdjeuns Simon et Chandan. Bon vent à Rémi Carminati dans ses nouvelles pérégrinations parisiennes. Je n'oublie pas les autres "grands", François, le gourou souvent hilare des group meetings, Luis el hombre muchacho, Ruben Ayayaye et Cédric, la touche belge. La touche espagnole a été apportée par Moises et Silvia. J'adresse un salut amical à Marjorie et Jean-Philippe, l'auteur de mon autre livre de chevet. Je n'oublie pas Majid, Jennifer, Josias et Jean-Num'. A priori, j'ai été quasi exhaustif!

Le laboratoire EM2C, ce n'était heureusement pas que des Nanos ni des jours de travail acharné! Je me rappellerai encore longtemps du Captain'Bûche somnolant dans son hamac des prés cévenols, d'Arno jouant de la guitare, mais uniquement face aux montagnes assis sur un petit muret (ou son "feeling" en mer...), de Nics le chasseur-cueilleur, de Dave le roi du GPS, etc. Bon courage à Laetitia pour les "cartes de thèse" qui sont vite responsables de beaucoup de ressentiments ;- ) et à Deanna pour la fin de la conception de son cardio-encéphalogramme digital (brevet à venir pè...ou pas). Je signale que Barbar ne m'a toujours pas trouvé de tapis et qu'on a toujours pas beaucoup plus de nouvelles du rôti de Mikeline... ? La bande des 2004-2007 comptait aussi Samba dô Philippitchaou Salsaworldmaster et Rogerio 3-0, qui ont bien fait d'éviter le foot ;- ) et la précédente Anne-Laure et Yacine, l'homme aux dessins masqué... Les cibles des avions en papier ont été sympathiquement fournies par la présence de Weeded et Lise. J'ai observé récemment que le pilote Thierry M., en troquant sa Punto contre une Américaine, avait sensiblement réduit sa vitesse moyenne (ça doit être pour polluer moins). Je salue Jean-MichMuch, pour son anniversaire bien sûr (et son chocolat). Durant la période de thèse, j'ai aussi été confronté à Guillaume R., Nathalie D., David G., Gigi l'A..., Marta DLCC, Mickaël, au pot de thèse de Mohammed, à Franck (responsable de l'édition de cette thèse!), Nico K., Elie, Jin, Elodie dite l'Exilée, à Naïl et Matthieu R. (bonne route à vous deux!), Gabi, Stéphane-mon-fils, Antoine et ses costards, Patrick et ses pectoraux, Antonio, Itaru, Yoann, Ammar, Nicolas Tran, Séverine et Ronan.

Un labo, c'est aussi les ITA, sur lesquels tout repose. Je remercie vivement Samira-la-voisine, Yannick et Erika, Jérôme et Alain C., Merryll, Karine et le secrétariat, Gilbert et son kart, etc!

J'adresse un salut amical à Anne Bourdon, à Fabien Bellet (finis les "François n'est pas là?"), à Christophe Laux, à Philippe Rivière, (polémiste reconnu) dont l'avis est souvent requis (vers 20h), à Thierry Schuller, et aux autres chercheurs.

Mes 6 années à la Centrale m'ont fait connaître beaucoup de monde, également dans les autres laboratoires. Bon vent à Maël, David, Guilhem-le-Grand et les SPMS boyz-and-girlz, Moniko/a/i/u/y, Lucie, Céline, Michèle et Mourad, les joyeux lurons du LGPM, Baptiste l'économiste (ça rime), Ali, Aude, les rastaquouères-en-chef de l'UDE3c,...

Je remercie aussi les personnels techniques des autres laboratoires que j'ai embêtés, F. Garnier, P. Hagi, S. Bourgeois, F. Karolak, etc., et mes anciens professeurs. L'ambiance sympa à la DR et au LPE (Gloria, Franz, Annie, Clarisse, etc) sont aussi à souligner.

Merci à Adri et Margherita pour l'ambiance à l'appart' et les gâteaux, Giovanni à vendredi. Je remercie tous mes amis (Xav lui est venu à la soutenance...) et ma famille pour sa présence à la soutenance et au soutien... At last but not least, roulements de tambours et tout le toutim, tatatatata (participation à haute voix requise pour tous les instruments de l'orchestre!) : merci Julienne!!!

J'ai oublié beaucoup de monde, mais je souhaite que la section "Remerciements" soit plus courte

que le développement du mémoire... Vous pouvez m'envoyer vos réclamations. Un CAB est offert !





# Résumé

Ce mémoire de thèse aborde la problématique des transferts de chaleur dans les micro et nanosystèmes. Les progrès scientifiques des trente dernières années et la course effrénée à la miniaturisation ont rendu nécessaire l'investigation de ces transferts, gouvernés par des lois modifiées lorsque les distances mises en jeu approchent les longueurs caractéristiques que sont le libre parcours moyen des porteurs d'énergie et la longueur d'onde. Ces transferts peuvent être étudiés avec un microscope à force atomique (AFM) dont la pointe est chauffée.

La première partie du mémoire concerne la conduction thermique. La microscopie à sonde locale thermique dite SThM dérivée de l'AFM est présentée. La modélisation de la température dans la pointe nécessite une analyse rigoureuse des couplages en régime modulé. La possibilité d'une limite intrinsèque à la mesure de la conductivité thermique locale est évoquée et l'effet d'un mauvais positionnement de la sonde est analysé. Le microscope SThM est placé dans un système à vide poussé afin de pouvoir faire varier la pression. L'importance des pertes thermiques de la pointe dans l'air environnant est mise en évidence. La contribution du transfert par l'air au flux thermique entre la sonde et l'échantillon peut être trois fois supérieure à celle due au contact mécanique. Le transfert thermique est mesuré en fonction de la distance pointe-échantillon. Une comparaison avec une modélisation simple de l'échange de chaleur comportant des lignes de flux parallèles montre une déviation par rapport à la prédiction de la diffusion thermique, qui est attribuée à la présence de la conduction balistique pour les très faibles distances. Finalement, une étude numérique mettant en jeu une pointe pyramidale nanométrique est effectuée à l'aide d'une méthode de Monte-Carlo dans le but d'analyser le transport thermique balistique.

La seconde partie aborde le rayonnement thermique en champ proche. Le calcul du flux radiatif à l'échelle nanométrique, nécessitant l'utilisation de l'électrodynamique fluctuatoire, est analysé dans le cas de surfaces planes métalliques. L'épaisseur de peau apparaît comme la longueur caractéristique associée à la saturation observée dans une expérience récente. Il est montré que les corrections d'optique non-locale ne modifient pas le flux pour des distances supérieures à quelques nanomètres. L'échange de flux de chaleur entre un nano-objet et une surface plane est ensuite étudié. La contribution dipolaire magnétique s'avère prédominante pour les métaux : l'approximation non-retardée n'est pas valable. Le mécanisme d'absorption de la chaleur dans une nanoparticule métallique est le chauffage par induction sous l'action de courants de Foucault stochastiques. Une dépendance en distance différente de celle connue pour l'échange de puissance radiative entre matériaux polaires est obtenue. Ce travail est étendu à l'échange de chaleur entre deux nanoparticules métalliques, pour lequel la contribution magnétique domine également. Trois types de dépendance en distance sont identifiés, dont l'un est négligeable par rapport aux autres en première approximation.

Un chapitre évaluant la possibilité de mesurer le rayonnement de champ proche avec le microscope SThM conclut le manuscrit.



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>I Transferts thermiques conductifs dans l'air et au contact</b>	<b>5</b>
<b>I Microscopie à force atomique instrumentée pour la thermique</b>	<b>7</b>
I.1 Introduction . . . . .	8
I.2 Microscopie de champ proche et sondes thermiques . . . . .	8
I.2.1 Microscopie à force atomique . . . . .	8
I.2.2 L'invention de la microscopie à sonde de température . . . . .	9
I.3 Différents types de microscopes thermiques à sonde locale . . . . .	10
I.3.1 Microscopie thermique par effet bilame . . . . .	10
I.3.2 Microscopie thermique par mesure de dilatation due au chauffage . . . . .	11
I.3.3 Microscopie thermique à thermocouple . . . . .	12
I.3.4 Microscopie thermique à thermocouple intrinsèque . . . . .	12
I.3.5 Microscopie thermique à résistance calibrée par bruit Johnson . . . . .	13
I.3.6 Microscopie thermique résistive : pointe "Millipede" . . . . .	13
I.4 Présentation de l'instrument SThM Wollaston . . . . .	14
I.4.1 Présentation générale . . . . .	14
I.4.2 "Pointe Wollaston" . . . . .	15
I.5 Principe de la mesure avec la pointe Wollaston . . . . .	15
I.5.1 Méthode DC . . . . .	16
I.5.2 Méthode $3\omega$ . . . . .	17
I.6 Applications . . . . .	18
I.6.1 Mesure de conductivité thermique locale . . . . .	18
I.6.2 Mesure d'échauffement de surface . . . . .	18
I.7 Une limitation intrinsèque à la mesure de la conductivité thermique locale? . . . . .	19
I.7.1 Flux transféré de la sonde vers l'échantillon . . . . .	19
I.7.2 Contact mécanique et raréfaction des porteurs de chaleur . . . . .	20
<b>II Modélisation de la microscopie AFM thermique à sonde Wollaston</b>	<b>23</b>
II.1 Introduction . . . . .	24
II.2 Modélisation de la pointe SThM . . . . .	24
II.2.1 Equation d'ailette . . . . .	24
II.2.2 Paramètres et dépendance à la température . . . . .	25
II.3 Conditions aux limites . . . . .	28
II.3.1 Sonde hors contact . . . . .	28
II.3.2 Sonde en contact . . . . .	29
II.4 Equation de la chaleur et résolution . . . . .	30
II.4.1 Observation expérimentale . . . . .	30

II.4.2	Equations de la chaleur . . . . .	31
II.4.3	Alimentation par un courant continu . . . . .	31
II.4.4	Alimentation par un courant alternatif . . . . .	32
II.5	Un biais de mesure possible . . . . .	37
II.6	Conclusion . . . . .	40
II.7	Appendice 1 : Profil de température dans la sonde en négligeant les pertes thermiques	41
II.7.1	Sonde hors contact . . . . .	41
II.7.2	Sonde en contact alimentée par un courant DC faible . . . . .	41
<b>III Etude expérimentale des transferts thermiques conductifs dans l'air en régime micro et nanométrique</b>		<b>45</b>
III.1	Introduction . . . . .	46
III.2	Microscopie thermique à sonde locale sous vide . . . . .	46
III.2.1	Montage expérimental . . . . .	46
III.2.2	Approche pointe-échantillon en régime micrométrique . . . . .	48
III.2.3	Effet de la pression sur la température de sonde et implications . . . . .	50
III.3	Détermination expérimentale du coefficient de pertes thermiques dans l'air . . . . .	51
III.3.1	Pertes par rayonnement . . . . .	51
III.3.2	Pertes par convection naturelle . . . . .	53
III.3.3	Pertes par conduction thermique dans l'air . . . . .	54
III.3.4	Détermination expérimentale du coefficient de pertes thermiques . . . . .	55
III.4	Détermination de la conductance d'échange par l'air . . . . .	57
III.4.1	Courbe expérimentale . . . . .	57
III.4.2	Modélisation de l'échange par l'air . . . . .	60
III.4.3	Effet de l'échantillon sur le flux thermique transféré . . . . .	64
III.4.4	Effet de la pression sur le flux thermique transféré . . . . .	65
III.5	Conclusion . . . . .	65
III.6	Appendice 1 : Conductance d'échantillon sous la sonde Wollaston . . . . .	68
III.7	Appendice 2 : Conductance thermique entre deux surfaces avec une aspérité . . . . .	70
III.7.1	Flux conductif entre un hémisphère et une surface plane . . . . .	70
III.7.2	Effet de l'aspérité sur la conductance entre deux surfaces . . . . .	71
III.8	Appendice 3 : Effet d'un mauvais calibrage du contact ; comportements diffusif et réel	72
<b>IV Echanges thermiques conductifs dans l'air entre une nano-pointe et une surface</b>		<b>75</b>
IV.1	Abstract . . . . .	76
IV.2	Introduction . . . . .	76
IV.3	A numerical model for quasi-ballistic air conduction . . . . .	77
IV.4	Results and discussion . . . . .	78
IV.5	Annexe : Diffusion thermique due au chauffage ultra-local . . . . .	81
<b>II Transferts radiatifs de champ proche pour les métaux</b>		<b>83</b>
<b>V Implications de la non-localité pour le transfert radiatif de champ proche entre deux surfaces métalliques</b>		<b>87</b>
V.1	Abstract . . . . .	88
V.2	Introduction . . . . .	88
V.3	Near-field radiative heat flux using a local dielectric constant . . . . .	89
V.4	Near-field radiative heat flux using a non-local model . . . . .	92
V.5	Discussion and concluding remarks . . . . .	97
V.6	Appendix . . . . .	100

<b>VI Contribution dipolaire magnétique à la puissance radiative de champ proche échangée entre une nanoparticule et un substrat</b>	<b>103</b>
VI.1 Abstract . . . . .	104
VI.2 Introduction . . . . .	104
VI.3 Absorption by a metallic nanoparticle . . . . .	105
VI.4 Local density of energy near a metallic surface . . . . .	107
VI.5 Heat transfer between an interface and a nanoparticle . . . . .	108
VI.6 Conclusion . . . . .	109
<b>VII Transfert thermique radiatif de champ proche entre deux nanoparticules</b>	<b>111</b>
VII.1 Introduction . . . . .	112
VII.2 Puissance absorbée par une nanoparticule . . . . .	112
VII.2.1 Puissance électrique et puissance magnétique absorbées par une nanoparticule	112
VII.2.2 Contribution dipolaire électrique . . . . .	113
VII.2.3 Contribution dipolaire magnétique . . . . .	114
VII.2.4 Contributions quadrupolaires et multipolaires . . . . .	116
VII.3 Modèles de polarisabilités . . . . .	116
VII.3.1 Polarisation électrique . . . . .	116
VII.3.2 Polarisation magnétique . . . . .	116
VII.4 Tenseur de Green du vide pour les champs électromagnétiques . . . . .	117
VII.4.1 Equation d'onde pour le champ magnétique . . . . .	117
VII.4.2 Equation d'onde pour le champ électrique . . . . .	118
VII.4.3 Définition des tenseurs de Green . . . . .	119
VII.4.4 Théorème de fluctuation-dissipation pour les dipôles . . . . .	119
VII.4.5 Tenseurs de Green du champ créé par un dipôle . . . . .	119
VII.5 Résultats . . . . .	120
VII.5.1 Formules du transfert d'énergie . . . . .	120
VII.5.2 Discussion pour les métaux . . . . .	121
VII.5.3 Discussion pour les matériaux diélectriques . . . . .	122
VII.6 Conclusion . . . . .	122
VII.7 Annexe : Polarisation magnétique d'une nanoparticule petite devant l'épaisseur de peau . . . . .	123
<b>III Dimensionnement d'une expérience de microscopie thermique pour la mesure du flux thermique en champ proche</b>	<b>127</b>
<b>VIII Rayonnement thermique de champ proche entre une sphère et une surface plane : calcul approché et évaluation d'une expérience avec le microscope SThM</b>	<b>129</b>
VIII.1 Introduction . . . . .	130
VIII.2 Puissance radiative échangée entre une sphère et une surface . . . . .	130
VIII.2.1 Approximation par le flux surfacique "plan-plan" . . . . .	130
VIII.2.2 Calcul de puissance sphère-plan . . . . .	131
VIII.2.3 Comportements asymptotiques et régimes de distance . . . . .	134
VIII.3 Procédé expérimental envisagé . . . . .	135
VIII.4 Circuit thermique et sensibilité de la sonde . . . . .	138
VIII.4.1 Conductance de la sphère . . . . .	138
VIII.4.2 Conductance à l'interface sphère-sonde Wollaston . . . . .	138
VIII.4.3 Sensibilité avec la sonde Wollaston . . . . .	139
VIII.5 Conclusions . . . . .	141

<b>Conclusion</b>	<b>143</b>
<b>Références</b>	<b>147</b>

# Table des figures

1	Gaz de molécule en équilibre ou hors équilibre thermodynamique . . . . .	2
2	Géométrie étudiée : pointe-surface . . . . .	2
3	Procédé Millipede d'écriture des données . . . . .	3
4	Lithographie en champ proche . . . . .	4
I.1	Principe de la microscopie à force atomique . . . . .	9
I.2	Signal de photodiode en fonction du déplacement de l'échantillon : cycle d'hystérésis . . . . .	9
I.3	Premier microscope en champ proche thermique . . . . .	10
I.4	Microscopie thermique basée sur l'effet bilame . . . . .	11
I.5	Microscopie thermique avec mesure de dilatation . . . . .	11
I.6	Microscopie thermique à thermocouple . . . . .	12
I.7	Microscopie thermique à thermocouple intrinsèque . . . . .	12
I.8	Microscopie thermique avec calibration par mesure du bruit Johnson . . . . .	13
I.9	Sonde thermique développée par IBM . . . . .	14
I.10	Microscope "Explorer" de Veeco . . . . .	14
I.11	Pointe Wollaston globale . . . . .	15
I.12	Sonde thermique sur la pointe Wollaston . . . . .	16
I.13	Schéma d'un pont de Wheatstone . . . . .	17
I.14	Mesure de perte de flux en microscopie SThM . . . . .	18
I.15	Mesure de la température de surface d'une puce micro-électronique chauffée par des fils électriques enfouis . . . . .	19
I.16	Schématisation de la sonde en contact avec l'échantillon . . . . .	19
I.17	Grandeurs caractéristiques du transport thermique par les phonons . . . . .	20
II.1	Modèle d'ailette pour la sonde . . . . .	25
II.2	Résistance d'un morceau de platine rhodié à 10% . . . . .	25
II.3	Coefficient d'expansion thermique du platine rhodié pour quelques compositions. . . . .	26
II.4	Conductivité thermique en fonction de la température . . . . .	27
II.5	Capacités calorifiques massiques du platine et du rhodium . . . . .	28
II.6	Tension de sonde réponse à une marche de tension d'alimentation . . . . .	29
II.7	Amplitude de quelques harmoniques en fonction de la tension d'alimentation . . . . .	30
II.8	Echauffement de pointe dû à l'augmentation de la conductivité thermique . . . . .	33
II.9	Température moyenne de la sonde pour un courant d'entrée alternatif . . . . .	34
II.10	Profil de la température dans la sonde . . . . .	36
II.11	Schéma du décalage du contact . . . . .	37
II.12	Ecart de température dans la sonde lorsque la sonde est en contact mal positionné . . . . .	38
II.13	Température moyenne de la sonde en fonction de l'écart au contact idéal . . . . .	39
II.14	Flux perdu par la sonde dans l'échantillon en fonction de l'écart au contact idéal $\delta$ . . . . .	39
II.15	Echauffement moyen de la pointe en fonction de la conductance d'échange . . . . .	40
II.16	Schématisation du fil de platine rhodié dans sa partie dénudée . . . . .	41
II.17	Ecart de température dans la sonde par rapport à l'ambiante . . . . .	42
II.18	Schématisation du fil de platine rhodié avec contact . . . . .	42



II.19 Ecart de température dans la sonde lorsqu'il y a contact . . . . .	43
III.1 Photos des dispositifs expérimentaux sous vide . . . . .	47
III.2 Spectre du signal de photodiode hors contact et en contact . . . . .	48
III.3 Schéma de l'expérience sous vide . . . . .	49
III.4 Acquisition du signal thermique et du signal de photodiode au cours de l'approche dans l'air . . . . .	50
III.5 Tension $3\omega$ au cours de l'approche pour 3 pressions . . . . .	51
III.6 Module et phase de la tension $3\omega$ en fonction de la pression . . . . .	52
III.7 Principe de la modélisation de Lees et Liu . . . . .	54
III.8 Détermination du coefficient $h$ de pertes thermiques dans le gaz en fonction de la pression . . . . .	56
III.9 Explication de la faible valeur de la distance équivalente dans le modèle de Lees et Liu . . . . .	56
III.10 Tension de sonde au cours de l'approche de l'échantillon de niobium . . . . .	57
III.11 Tension de sonde corrigée au cours de l'approche de l'échantillon de niobium . . . . .	58
III.12 Tension de sonde au cours de l'approche de l'échantillon de niobium en échelle semi-logarithmique . . . . .	58
III.13 Tension de sonde au cours de l'approche de l'échantillon de niobium : distances inférieures à 50 nm . . . . .	59
III.14 Signal de photodiode réponse à une dilatation du piézoélectrique linéaire en fonction du temps lorsque la pointe est chauffée en régime modulé . . . . .	59
III.15 Modélisation du trajet des lignes de flux thermique entre la sonde chauffée et l'échantillon supposé plan . . . . .	60
III.16 Modélisation de l'extrémité de la sonde SThM . . . . .	60
III.17 Température sur l'axe cylindre-substrat calculée à l'aide d'une simulation Fourier 2D . . . . .	61
III.18 Conductance diffusive et réelle entre deux surfaces . . . . .	63
III.19 Comparaison entre courbe simulée et expérience : tension $V_A - V_B$ en fonction de la distance au contact . . . . .	64
III.20 Tension $V_A - V_B$ expérimentale et simulée en échelle logarithmique en fonction de la distance pointe : cas diffusif et réel . . . . .	65
III.21 Effet de l'échantillon sur la tension $V_A - V_B$ près du contact . . . . .	66
III.22 Effet de la pression sur la tension $V_A - V_B$ près du contact . . . . .	66
III.23 Flux surfacique reçu par le substrat dans le plan horizontal . . . . .	68
III.24 Distance caractéristique de l'étalement du flux sur la surface de l'échantillon en fonction de l'altitude de la sonde . . . . .	69
III.25 Deux surfaces de températures différentes dont l'une possède une aspérité hémisphérique. . . . .	70
III.26 Flux échangé entre une demi-sphère et une surface plane. . . . .	70
III.27 Effet d'une aspérité hémisphérique sur la conductance thermique . . . . .	72
III.28 Effet sur la température simulée d'un mauvais calibrage de la distance au contact . . . . .	73
IV.1 Géométrie de pointe nanométrique pyramidale . . . . .	77
IV.2 Densité de flux surfacique sur le substrat . . . . .	79
IV.3 Evolution temporelle de la susceptibilité à l'échauffement de la pointe . . . . .	80
IV.4 Profil de température dans une pointe dont l'extrémité est chauffée . . . . .	81
IV.5 Comparaison entre mesure et prédiction de flux rayonné en champ proche . . . . .	85
V.1 Principe : deux demi-espaces infinis de températures différentes . . . . .	90
V.2 Flux radiatif surfacique pour l'or . . . . .	91
V.3 Parties imaginaires des coefficients de réflexion de Fresnel pour un modèle de Drude . . . . .	92
V.4 Parties imaginaires des coefficients de réflexion non-locaux à $\omega = 1.4 \cdot 10^{14} \text{s}^{-1}$ . . . . .	96

V.5 Flux radiatif entre deux demi-espaces d'aluminium . . . . .	96
V.6 $\text{Im}(r_p^{31})^2/ 1 - r_p^2 e^{-2\gamma_3'' d} ^2$ dans le plan $(K, \omega)$ . . . . .	97
V.7 Densité d'état locale près d'une surface d'aluminium . . . . .	97
V.8 Flux surfacique pour différents métaux . . . . .	98
VI.1 Géométrie de l'étude : nanoparticule et surface plane . . . . .	105
VI.2 Parties imaginaires des polarisabilités électrique et magnétique d'une nanoparticule	106
VI.3 Densité d'états locale près d'une interface plane or-vide . . . . .	107
VI.4 Rapport $\frac{c \vec{B} }{ \vec{E} }$ en polarisation $s$ . . . . .	109
VI.5 Puissance radiative dissipée dans la nanoparticule d'or . . . . .	110
VII.1 Géométrie de l'étude : deux nanoparticules sphériques . . . . .	112
VII.2 Partie imaginaire de la polarisabilité magnétique d'une particule d'or . . . . .	117
VII.3 Epaisseur de peau de différents métaux . . . . .	118
VII.4 Puissance échangée entre deux particules d'or . . . . .	121
VII.5 Polarités électrique et magnétique d'une particule de SiC . . . . .	122
VII.6 Puissance échangée entre deux particules de SiC . . . . .	123
VIII.1 Assimilation du flux sphère-plan au flux plan-plan . . . . .	131
VIII.2 Echange de puissance entre une sphère de verre et un substrat en approximation PFA . . . . .	132
VIII.3 Efficacité de la détection du rayonnement de champ proche pour une petite sphère	133
VIII.4 Mesures de conductance thermique de champ proche de (Narayanaswamy, 2007) .	133
VIII.5 Puissance échangée par Kelvin à 300 K pour des sphères et des substrats d'or de différents rayons. . . . .	134
VIII.6 Puissance échangée entre la pointe AFM et la surface : mesures d'Oldenburg . . .	134
VIII.7 Expérience de Mohideen pour mesurer la force de Casimir . . . . .	135
VIII.8 Collage d'une sphère micrométrique sous la pointe SThM : principe . . . . .	136
VIII.9 Collage d'une sphère micrométrique sous la pointe SThM : preuve de faisabilité .	136
VIII.10 Platine de micromanipulation . . . . .	137
VIII.11 Ecart de température à mesurer dans la sonde en fonction de la conductance $G_{tot}$	140



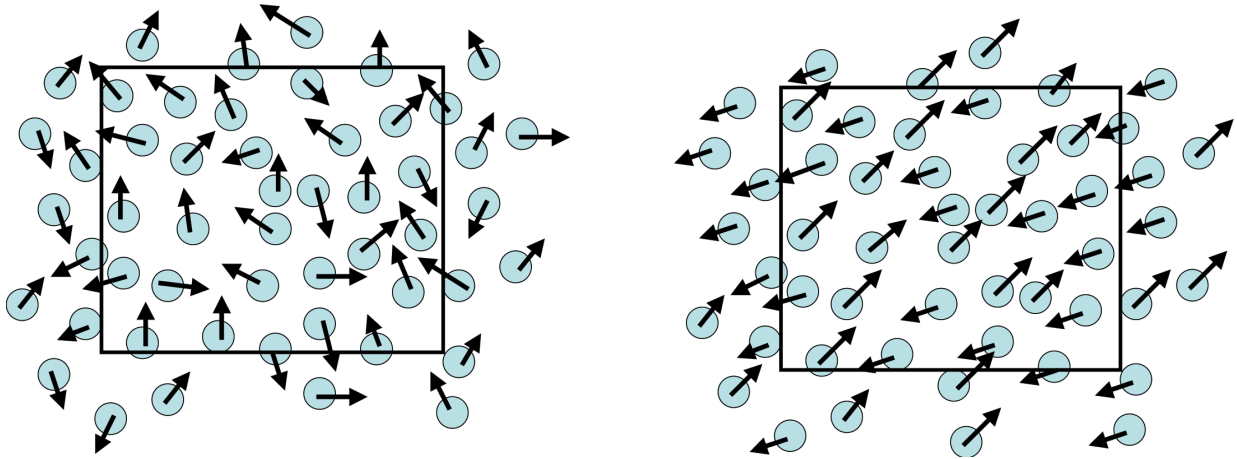
# Introduction

C<sup>E</sup> mémoire de thèse aborde la problématique des transferts d'énergie aux courtes échelles d'espace. Les progrès scientifiques des trente dernières années et la course effrénée de l'industrie micro-électronique vers la miniaturisation ont permis la fabrication de matériaux ou de dispositifs dont les tailles caractéristiques peuvent désormais approcher quelques nanomètres. Il est aujourd'hui possible de concevoir directement des empilements de couches atomiques (chimie *bottom up*) ou inversement de polir des surfaces jusqu'à ce qu'il ne reste plus qu'une épaisseur nanométrique, afin de réaliser des objets complexes que l'on peut façonner. Ces nouvelles possibilités semblent permettre dans un proche avenir de nouvelles avancées technologiques. Un grand nombre de chercheurs essaient d'optimiser les cellules photovoltaïques qui ont pour but la génération d'électricité à partir du soleil alors que d'autres essaient d'augmenter le rendement de dispositifs thermoélectriques, qui convertissent la chaleur en électricité. Cela pourrait être un moyen de récupérer de l'électricité à bon compte dans un grand nombre d'applications, dont les moteurs qui dissipent 50% de l'énergie sous forme de chaleur. Mais ces nouvelles avancées peuvent aussi poser problème dans certains cas : les transistors miniaturisés à l'extrême atteignent des niveaux élevés de température car ils dissipent trop de chaleur comparativement à leur petit volume. De nouveaux phénomènes thermiques mal maîtrisés dégradent les puces électroniques, dont les transistors sont les éléments de base : il convient d'expliquer ces phénomènes pour empêcher qu'ils ne persistent à perturber la conception des éléments de l'électronique de demain. Ces constatations montrent qu'un effort doit être produit dans le domaine des nanosciences, pour optimiser la maîtrise de l'énergie dans ces dispositifs. Un grand nombre de projets sont en cours de développement, nécessitant un nouveau savoir-faire et un nouveau *savoir*.

La description habituelle des transferts de chaleur met en jeu des équations linéaires et continues à l'échelle macroscopique. Cela est dû à la possibilité de décrire localement le milieu comme continu. Or, il est bien connu que la matière ne l'est pas, puisqu'elle est constituée d'atomes ou de molécules. Lorsque les échelles d'espace s'approchent de la taille des atomes, des phénomènes nouveaux, *quantiques* par exemple, apparaissent. Qu'en est-il cependant à l'échelle supérieure, pour des tailles de 5 nanomètres à 1 micron? La description habituelle n'est pas plus valable pour autant comme nous allons le voir.

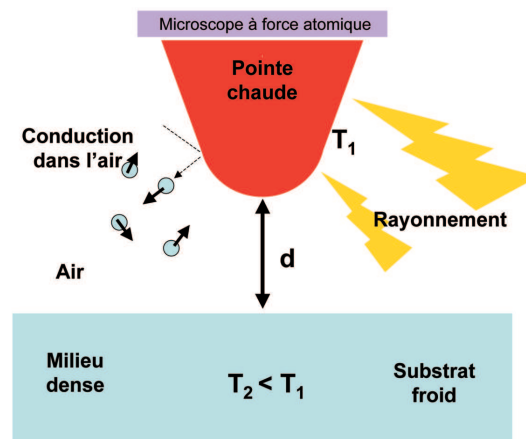
Il s'avère en effet que les lois macroscopiques des transferts d'énergie ne sont applicables que sous des conditions particulières. La diffusion thermique nécessite l'existence d'une distribution locale d'équilibre des porteurs d'énergie pour décrire les gradients à l'échelle supérieure. Cette condition est appelée équilibre thermodynamique local. Elle permet en particulier de définir localement la température. La probabilité pour qu'un porteur d'énergie situé à un endroit donné ait une certaine énergie est alors supposée isotrope. La figure 1 présente le cas de la conduction thermique dans un gaz, où ce sont les molécules qui transportent la chaleur. On y voit que la situation de droite ne vérifie pas l'équilibre thermodynamique local.

Le cas du rayonnement thermique est un peu différent : on néglige à l'échelle macroscopique les effets d'interférence et les ondes évanescentes, des effets typiquement ondulatoires. L'origine de cet "oubli" est lié au fait que les sources sont supposées incohérentes d'une part, et que les dimen-



**FIG. 1** – (a) A gauche, un gaz de particules en équilibre thermodynamique local : la distribution des vitesses dans le volume de contrôle mésoscopique est isotrope. (b) A droite, un exemple de gaz de particules qui n'est pas en équilibre thermodynamique. On remarque qu'il y a deux directions privilégiées.

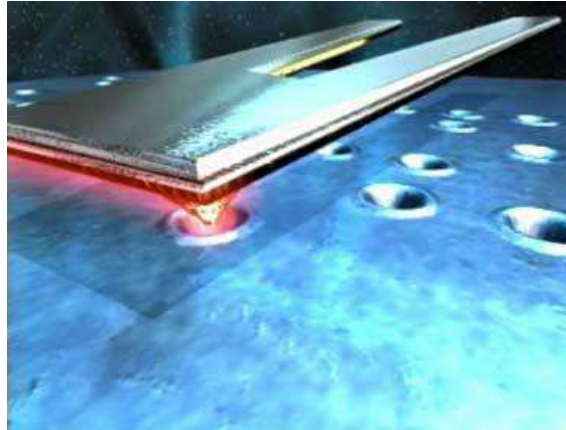
sions caractéristiques sont grandes devant la longueur d'onde d'autre part. Dans ces conditions, il devient possible de décrire le rayonnement par une équation de transport de photons, l'équation de transfert radiatif. Cependant, il est aujourd'hui clair que cette équation peut devenir caduque dans certains cas. Des expériences récentes (De Wilde, 2006) ont montré notamment que la densité locale d'énergie augmente fortement près d'une surface, à cause de la présence des ondes évanescentes. Il a également été montré que le flux radiatif entre deux corps augmentait fortement lorsque ceux-ci étaient rapprochés (Kittel, 2005).



**FIG. 2** – Configuration étudiée dans ce mémoire : transfert de chaleur entre une pointe chaude dont le rayon de courbure à l'extrémité varie d'une quinzaine de microns à quelques nanomètres. Un paramètre-clé est la distance  $d$  entre la pointe et l'échantillon, qui varie de quelques micromètres à  $d = 0$ , au contact.

Dans ce mémoire, nous traiterons de l'interaction thermique entre une pointe d'extrémité fine et un échantillon plan. L'étude de ce type de configuration est aujourd'hui crucial tant pour son intérêt théorique que pour ses applications pratiques. D'un point de vue scientifique, il s'agit de comprendre comment la chaleur est transférée lorsqu'au moins une échelle d'espace devient nanométrique. Il est souvent difficile expérimentalement de faire des mesures de systèmes à haut degré de symétrie (matériaux plans à surfaces parallèles, etc.) alors que la manipulation d'une

pointe de microscopie à force atomique (AFM, sous son acronyme anglais) est aujourd'hui aisée si on a les moyens. De plus, la finesse de certaines pointes permet d'assimiler leur extrémité à des nanoparticules. Il apparaît alors possible de vérifier les prédictions théoriques développées pour ces particules. Les applications de la microscopie thermique semblent elles aussi très prometteuses. IBM a notamment lancé à la fin des années 1990 son grand projet "Millipede" (figure 3), dont le but était de tester la possibilité de remplacer le stockage informatique de données, actuellement magnétique, par un système d'écriture et de lecture d'information fondé sur l'utilisation de nanopointes chauffantes. La lithographie nanométrique est également un domaine où la microscopie est une piste encourageante (voir figure 4).

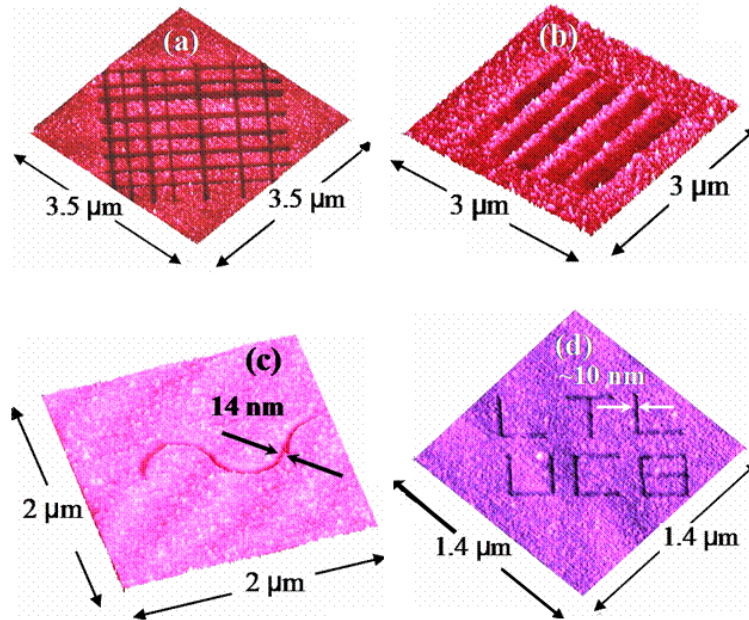


**FIG. 3** – *Procédé IBM d'écriture d'information pour le stockage d'information : une pointe, située à l'extrémité d'un levier conducteur, est chauffée par effet Joule grâce à un élément résistif. La chaleur diffuse dans la sonde et vient chauffer le milieu situé sous la pointe. En conséquence, le milieu fond sur une surface de l'ordre de celle de l'extrémité de la pointe. On a créé un plot, qui représente un bit d'information.*

Ce manuscrit est organisé en deux grandes parties consacrées à l'étude de l'interaction thermique entre une pointe et une surface, principalement avant le contact. La première partie traitera de l'échange de chaleur par conduction entre la pointe d'un microscope AFM à sonde locale thermique et une surface. Cet échange a lieu essentiellement par l'air. La seconde partie traitera de l'échange de flux thermique par rayonnement en champ proche. Nous nous limiterons à l'étude du transfert thermique entre des matériaux métalliques. Finalement, nous proposerons un chapitre prospectif où la pertinence d'une expérience de microscopie à sonde locale thermique pour la mesure du rayonnement de champ proche sera évaluée.

La première partie sera composée de quatre chapitres. Le premier permettra un bref rappel des différents types de microscope à sonde thermique, et une présentation de l'outil expérimental qui a été utilisé : le microscope AFM à sonde locale thermique dite Wollaston. Nous montrerons qu'il existe une limitation intrinsèque à l'amélioration de la résolution spatiale de la mesure de conductivité thermique. Le second chapitre concernera la modélisation de la température de la sonde, qui était jusqu'alors incomplète puisqu'elle négligeait le couplage de certaines harmoniques de la température. Nous regarderons aussi l'influence d'un mauvais positionnement de la sonde. Le troisième chapitre de la première partie abordera la caractérisation expérimentale des transferts thermiques par l'air entre sonde et échantillon. Nous montrerons que le transfert thermique entre la pointe et l'échantillon en contact peut avoir lieu majoritairement par l'air. Nous évaluerons ensuite les pertes thermiques dans l'air ambiant pour le fil micrométrique utilisé, et ce, en fonction de la pression. Enfin, nous présenterons des résultats de flux thermique transféré par l'air lorsque la distance entre l'échantillon et la pointe devient comparable au libre parcours moyen des molécules qui le composent. Nous mettrons en évidence le domaine de distance pointe-surface où la loi de Fourier

n'est plus valable car les échanges deviennent partiellement balistiques. Le quatrième et dernier chapitre de cette première partie abordera, d'un point de vue numérique, le régime balistique dans le cas d'une pointe nanométrique. Il sera indiqué comment évaluer le flux transféré entre une pointe et un échantillon grâce à une méthode de Monte-Carlo. Nous calculerons notamment la résolution spatiale de la zone chauffée en fonction de la distance entre pointe et échantillon.



**FIG. 4** – Traits gravés à l'aide d'une pointe de microscopie de champ proche irradiée par un laser femto-seconde. L'objectif est de pouvoir graver des traits de largeur beaucoup plus faibles que celles qui sont possibles aujourd'hui avec des procédés qui utilisent l'optique de champ lointain.

La seconde partie, découpée en trois chapitres, abordera le transfert thermique par rayonnement de champ proche entre objets métalliques. Le cinquième chapitre concernera le rayonnement de champ proche entre deux surfaces métalliques séparées par une distance sub-micrométrique. Nous y expliquerons pourquoi le flux échangé arrive à saturation à de très courtes distances, comme cela a été observé dans une expérience récente par le groupe d'Oldenburg (Kittel, 2005). Nous montrerons notamment que l'origine de la saturation n'est absolument pas due à des effets de dispersion spatiale. Pour cela, nous utiliserons l'optique dite non-locale, qui prend en compte des effets qui ne sont pas présents dans l'optique électromagnétique habituelle. Nous montrerons que la distance caractéristique de la saturation est l'épaisseur de peau, car la saturation est due à l'écrantage des champs électromagnétiques dans les métaux. Le sixième chapitre montrera comment la puissance échangée en champ proche entre une nanoparticule métallique et un substrat doit être calculée. Nous y mettrons en évidence que les travaux précédents étaient en fait uniquement dévolus au cas des matériaux polaires, et montrerons que la puissance absorbée par la nanoparticule est due à des courants de Foucault stochastiques. Le septième chapitre, qui clôturera la seconde partie, abordera le cas du rayonnement entre deux nanoparticules métalliques. Nous y révélerons que le flux échangé est également dû à la composante magnétique liée aux courants de Foucault et que le flux thermique peut être établi à partir de deux expressions asymptotiques.

Le huitième chapitre associera les travaux des deux grandes parties de ce manuscrit pour dimensionner une expérience de microscopie à sonde thermique dont le but est la mesure du rayonnement en champ proche. Nous conclurons ce mémoire par une synthèse des travaux présentés et quelques pistes d'études pour le futur.

## Première partie

# Etude des transferts thermiques conductifs dans l'air et au contact





## Chapitre I

# Microscopie à force atomique instrumentée pour la thermique

## I.1 Introduction

Dans ce chapitre d'introduction, nous présentons en premier lieu le domaine de la microscopie à force atomique (AFM) lorsqu'elle est utilisée pour la mesure de propriétés thermiques. Un certain nombre d'instruments ont été développés depuis une quinzaine d'années, qui permettent de mesurer la température locale d'échantillons ou de dispositifs dont les composantes sont de dimensions faibles. D'autres permettent de mesurer la conductivité thermique locale. Nous présenterons les différentes options qui se présentent à l'expérimentateur.

Ensuite, nous nous focaliserons sur le microscope AFM à sonde thermique dite Wollaston, que nous avons utilisé. Nous montrerons comment il permet d'obtenir des informations sur les échantillons sondés ; nous verrons qu'il existe différents modes d'utilisation, dont les modes  $DC$  et  $3\omega$ . Finalement, nous montrerons qu'il existe une limite intrinsèque à la mesure de la conductivité thermique locale.

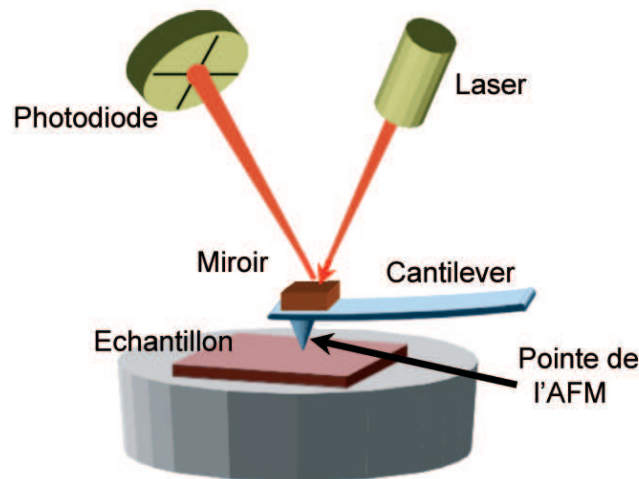
## I.2 Microscopie de champ proche et sondes thermiques

### I.2.1 Microscopie à force atomique

L'invention des microscopes à sondes de champ proche au cours des années 1980 (Binnig, 1982a; Binnig, 1982b; Binnig, 1986) a permis le développement d'outils de mesure de propriétés thermiques avec une résolution spatiale micrométrique. Les microscopes de champ proche reposent sur la possibilité de placer des objets à des distances très faibles de l'objet à sonder. De nouvelles caractéristiques de l'échantillon peuvent alors être révélées. Les propriétés à sonder apparaissent dans des "champs" de forces, de densité électronique, de densité électromagnétique ou de température. Ceux-ci ne sont pas homogènes en fonction de la distance aux sources qui les génèrent : ils deviennent beaucoup plus importants près de celles-ci. En microscopie à force atomique, c'est le champ de forces près de la surface qui est sondé. On décrit maintenant brièvement le fonctionnement d'un microscope à force atomique (AFM) (Binnig, 1986).

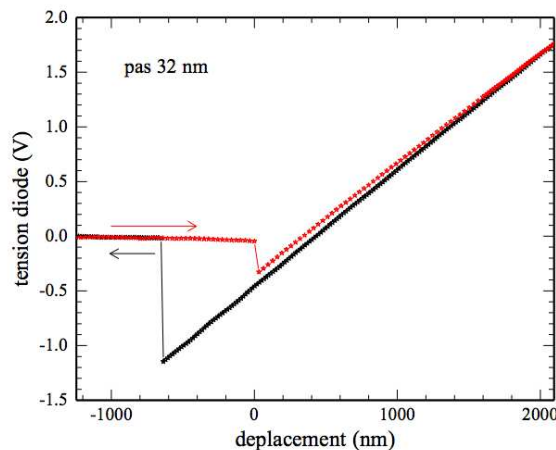
Une fine pointe verticale est liée dans sa partie haute à un levier - appelé souvent *cantilever* - horizontal souple qui est fixé sur un actuateur piézoélectrique. Celui-ci a la propriété de se dilater ou de se contracter lorsqu'on lui applique une tension. Un laser en incidence oblique se réfléchit sur la face supérieure du levier et illumine un cadran de photodiodes. En se défléchissant, le levier modifie le point d'illumination sur le cadran. La mesure de l'intensité différentielle de diode permet de détecter le mouvement de la pointe avec une résolution subnanométrique. Par rétroaction, il est possible de réaligner le faisceau en appliquant une tension à l'actuateur piézoélectrique. L'enregistrement de la dilatation du cube piézoélectrique fournit une cartographie des forces exercées par la surface sur la pointe si on la déplace sur la surface de l'échantillon.

La figure I.2 présente le signal de photodiode obtenu au cours d'un cycle d'approche et d'éloignement de l'échantillon. Lorsqu'il n'y a pas de contact, le signal ne varie pas. Lorsque le contact



**FIG. I.1** – Principe du microscope à force atomique, où le "cantilever" est guidé par un faisceau laser réfléchi. Un miroir facilite la réflexion dans cet exemple.

s'établit, l'échantillon exerce une force sur la pointe. Le signal de la photodiode augmente. Lorsque l'actuateur piézoélectrique est écarté de la sonde, le signal de photodiode diminue progressivement, jusqu'à ce qu'un saut ait lieu. Il représente l'instant où les forces de tensions superficielles deviennent trop faibles pour résister à la force de traction appliquée par la pointe. Ces forces sont dues à un ménisque nanométrique d'eau adsorbée sur la surface de l'échantillon ; elles sont responsables de l'hystérésis importante observée sur la figure I.2.



**FIG. I.2** – Signal de photodiode en fonction du déplacement de l'échantillon. Celui-ci est déplacé jusqu'au contact puis ensuite rétracté. On constate que les signaux de diodes aller et retour ne sont pas du tout superposés, à cause des forces de tension superficielle dues au ménisque adsorbé.

## I.2.2 L'invention de la microscopie à sonde de température

La microscopie en champ proche thermique a été inventée en 1988 par Williams et Wickramasinghe (Wickramasinghe, 1986). Leur expérience consistait à placer un petit thermocouple, de taille

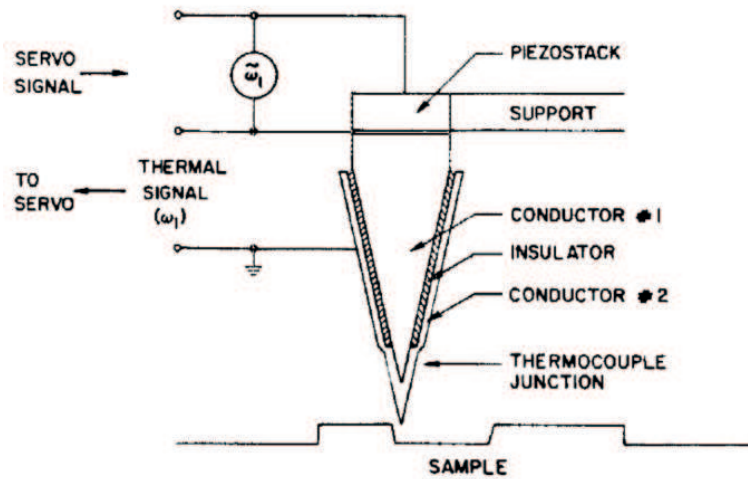


FIG. I.3 – Principe du microscope à sonde de température locale de Williams et Wickramasinghe, d'après leur article fondateur (Wickramasinghe, 1986).

caractéristique 100 nm, à l'extrémité d'une pointe AFM chauffée. Le décalage du point d'impact du faisceau lumineux sur la photodiode à cadrans peut alors être remplacée par la variation de tension aux bornes du thermocouple lorsque la pointe s'approche ou se rétracte de l'échantillon. En effet, celui-ci pompe de plus en plus de flux thermique à la pointe chaude lorsque celle-ci s'approche. Le "scanning thermal profiler" semblait intéressant dans la mesure où il n'y avait pas nécessité de s'approcher à des distances sub-nanométriques pour scanner la surface. Néanmoins, sa moins bonne résolution spatiale l'a rendu moins célèbre que l'AFM ou le STM ("scanning tunneling microscope", microscope à effet tunnel).

### I.3 Différents types de microscopes thermiques à sonde locale

Différents instruments thermiques ont ensuite été conçus, avec des résolutions spatiales variées (Cahill, 2003; Giachandani, 2005). Nous utilisons la sonde Wollaston inventée par Dinwiddie et Pylkki (Dinwiddie, 1994). Nous détaillerons son fonctionnement dans la suite. L'objectif de ces différents microscopes est en général l'étude d'un matériau ou d'un dispositif. On cherche à étudier la manière dont ils chauffent, transfèrent du flux thermique ou fondent par exemple. Nous présentons dans la suite les différents instruments qui ont été utilisés.

#### I.3.1 Microscopie thermique par effet bilame

Cette microscopie repose sur le fait que deux matériaux ne se dilatent pas de la même manière en fonction de la température. Lorsqu'une couche d'un métal est déposée sur une lamelle d'un autre métal, l'ensemble fléchit s'il est chauffé. On peut concevoir un levier ("cantilever") bilame. La température de la zone à scanner génère des variations de signal de photodiode (figure I.4). Ce microscope est adapté à la mesure de très faibles variations de température. Sa résolution est estimée à  $\Delta T_{min} \sim 10^{-5}$  K.

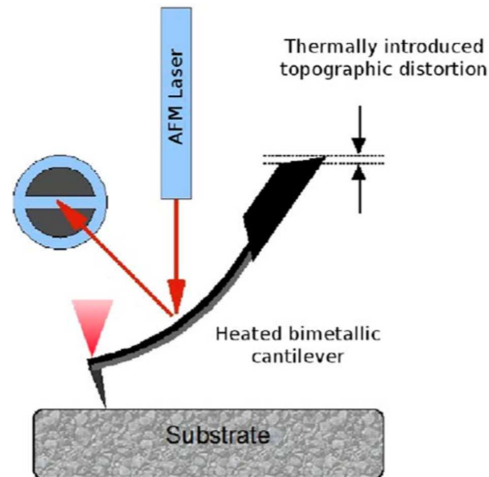


FIG. I.4 – Schéma de principe de la microscopie thermique basée sur l'effet bilame (Nakabeppu, 1995).

### I.3.2 Microscopie thermique par mesure de dilatation due au chauffage

Ce type de microscopie à force atomique mesure la réponse d'un matériau à un chauffage par effet Joule. Dans le cas d'un chauffage modulé, il est possible de mesurer le déphasage du signal d'expansion sous l'action de la chaleur si on utilise une détection synchrone. Dans cette microscopie, il n'existe pas de capteur thermique direct : la propriété thermique est mesurée de manière indirecte. Une manière d'amplifier le signal est de déposer une couche mince de polymère sur la surface. En effet, les polymères ont un coefficient de dilatation très important de l'ordre de  $10^{-4} \text{ K}^{-1}$ , un ordre de grandeur supérieur aux métaux par exemple. Leur expansion thermique est donc plus aisément détectable. La figure I.5 présente un exemple de dispositif possible. Ce microscope est adapté à la mesure d'échauffements de dispositifs micro-électroniques. Ces échauffements peuvent provoquer des ruptures dans les couches des dispositifs, les endommageant fortement.

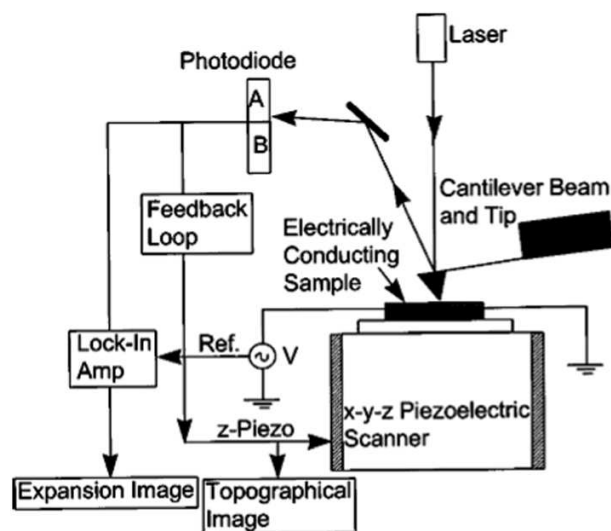


FIG. I.5 – Schéma de principe de la microscopie thermique avec mesure de dilatation due au chauffage Joule (Varesi, 1998). Le chauffage par effet Joule implique un échantillon conducteur, ou l'insertion d'une ligne électrique dans l'échantillon.

### I.3.3 Microscopie thermique à thermocouple

Cette microscopie thermique est basée sur la présence d'un thermocouple micrométrique, à l'extrémité de la pointe de l'AFM. Elle peut consister en deux types de dispositifs :

- le thermocouple est constitué du dépôt d'un matériau métallique sur un autre, qui est au moins en partie un constituant de la pointe de l'AFM
- les deux constituants du thermocouple sont de forme filaire, et constituent l'équivalent de la pointe AFM. Dans ce cas, l'allure de la pointe ressemble à celle de la pointe dite Wollaston.

La figure I.6 montre les deux configurations possibles. La configuration non filaire est celle qui permet la miniaturisation la plus efficace, et elle est donc relativement développée. Cette micro-

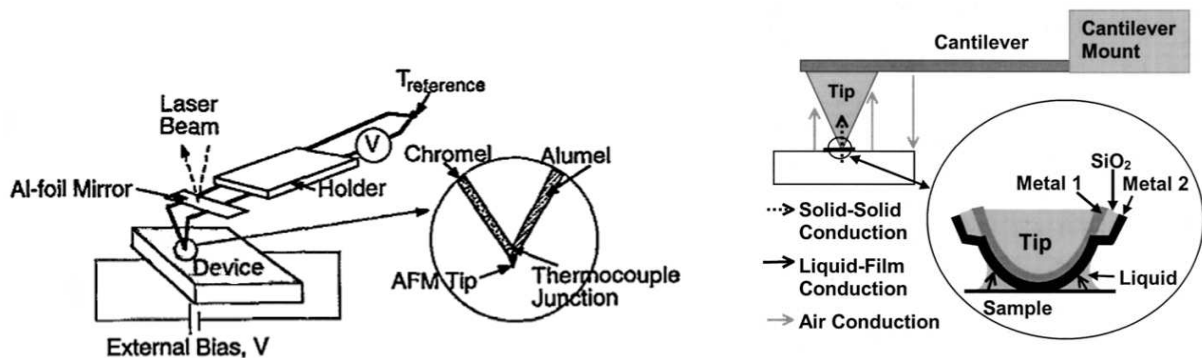


FIG. I.6 – Schéma de principe de la microscopie thermique à thermocouple (Majumdar, 1995; Shi, 2000). (a) A gauche, les 2 fils sont suspendus et forment la pointe. (b) Sur le schéma de droite, les métaux sont déposés sur la pointe de silice.

scopie sert à mesurer des champs de températures. Les échauffements de corps aussi petits que des nanotubes ont aisément été détectés (Shi, 2000).

### I.3.4 Microscopie thermique à thermocouple intrinsèque

Ce type de microscopie repose sur la possibilité de générer une tension Seebeck par le couple thermoélectrique composé de la pointe et de l'échantillon. La tension générée dépend de la température de la jonction. L'analyse thermique n'est possible que pour les métaux ou les semi-conducteurs dopés, ce qui limite cette technique.

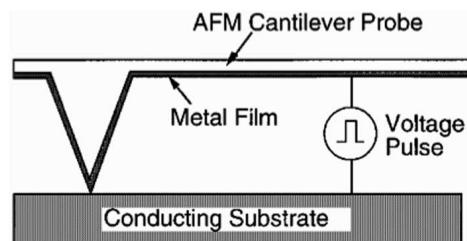


FIG. I.7 – Schéma de principe de la microscopie thermique à thermocouple intrinsèque (Luo, 1996).

### I.3.5 Microscopie thermique à résistance calibrée par bruit Johnson

Dans le cadre du projet *Microtherm*, le groupe de Glasgow dirigé par J. Weaver a conçu une pointe AFM avec une petite résistance (Dobson, 2005). L'intérêt de ce dispositif est la possibilité de calibrer le dispositif en température à partir du bruit de mesure (*bruit Johnson*). L'intensité du bruit de la tension électrique dépend en effet de la température. C'est donc également une mesure de la température dans la résistance. La figure I.8 présente l'allure de la pointe et du levier (cantilever). On remarque la présence d'un thermocouple miniature, qui permet une seconde mesure de température.

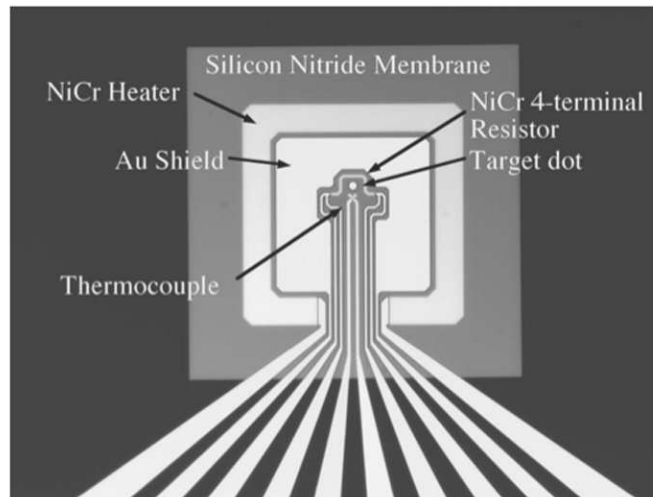


FIG. I.8 – Schéma de principe de la microscopie thermique avec calibration par mesure du bruit Johnson (Dobson, 2005). La membrane de silice fait  $100\ \mu\text{m}$  de large.

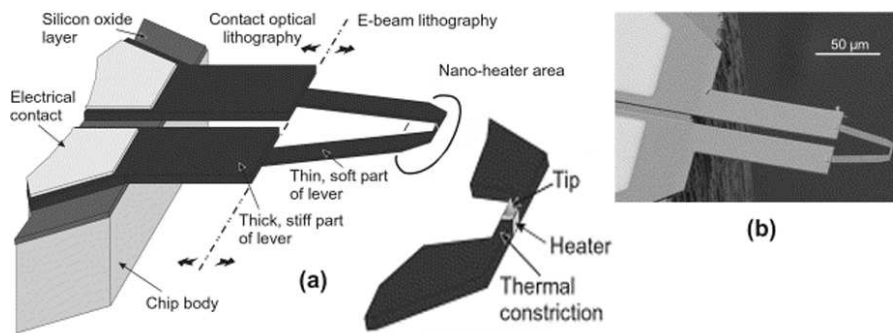
### I.3.6 Microscopie thermique résistive : pointe "Millipede"

La pointe "Millipede" est présentée dans la figure I.9. Elle consiste en un levier (cantilever) conducteur en silicium, qui est dopé sur une zone micrométrique. La pointe AFM conique est placée sous la zone résistive, de sorte qu'en chauffant le levier la pointe s'échauffe également. Le signal thermique est donné par la variation de la tension aux bornes du levier, à courant donné. Cette pointe a été initialement développée par IBM Zürich, dans le but de lire et écrire des données. Celles-ci sont inscrites sous la forme de nanotrous, sur un substrat. Elle est maintenant commercialisée pour ses applications thermiques.

La pointe Wollaston complète ce rapide panorama des instruments de microscopie thermique. Nous détaillerons son fonctionnement dans la section suivante. Remarquons que d'autres instruments ont également été inventés, où la thermique peut être couplée à d'autres effets, comme dans le cas du microscope à sonde de coefficient Seebeck local par exemple. D'une manière générale, nous pouvons dire qu'il existe certains microscopes adaptés à la mesure de température (thermocouples, etc.) et d'autres à la mesure de conductivité thermique, généralement par la mesure de flux thermique. Certaines sondes sont complètement passives comme celles basées sur un thermocouple, d'autres sont actives telles les pointes résistives.

Certains auteurs ont montré la sensibilité de leurs instruments à des objets de dimensions très petites de quelques nanomètres. Mais la résolution de ces instruments, lorsqu'ils comportent un capteur thermique, est en général méconnue. La taille de la zone chauffée dans la pointe elle-même semble en effet cruciale (Lefèvre, 2005b), et peut conditionner la résolution des instruments. La surface de contact entre les pointes AFM et les échantillons est également une grandeur importante.



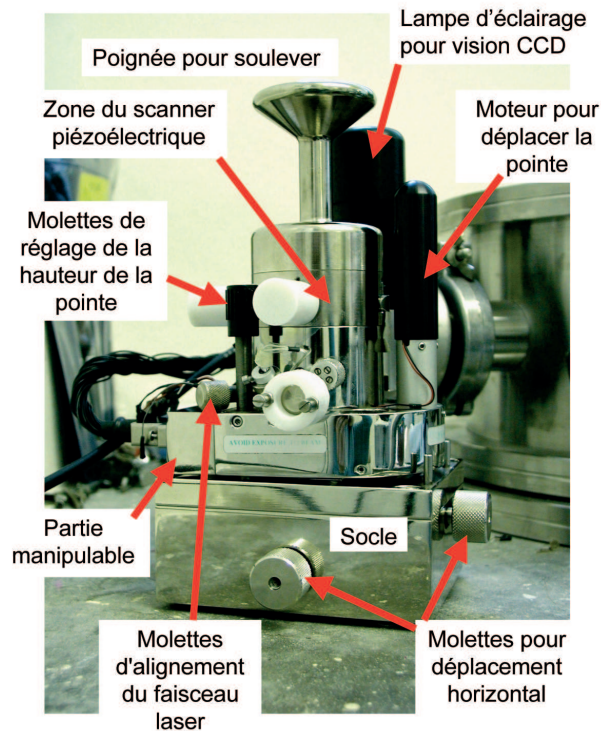


**FIG. I.9** – Schéma de principe de la sonde thermique développée par IBM. A gauche, schéma représentant le fonctionnement, avec un zoom sur la zone résistive située sous la pointe pyramidale. A droite, l'image de la sonde en microscopie électronique à balayage (Drechsler, 2003).

Les résolutions annoncées des instruments varient en général entre quelques dizaines de nanomètres et quelques microns.

## I.4 Présentation de l'instrument SThM Wollaston

### I.4.1 Présentation générale



**FIG. I.10** – Allure extérieure du microscope "stand alone" Explorer de Veeco.

Le microscope thermique à sonde locale que nous utilisons est le modèle "Explorer" de Veeco. Il est renommé pour sa maniabilité, puisque sa configuration est "stand alone". Ceci permet notamment

d'utiliser différents socles en fonctions du type d'échantillon que l'on souhaite sonder. Il dispose également d'une caméra CCD qui permet un positionnement manuel approximatif de la sonde près de l'échantillon. Cette première approche est effectuée à l'aide de vis manuelles. Un moteur piloté informatiquement est ensuite utilisé pour approcher la sonde de l'échantillon jusqu'au contact. La boucle de rétroaction entre la tension de l'actuateur piézoélectrique vertical et les courants électriques différentiels de la photodiode à cadrans est alors mise en route, afin que les courants soient constants et égaux aux consignes.

#### I.4.2 "Pointe Wollaston"

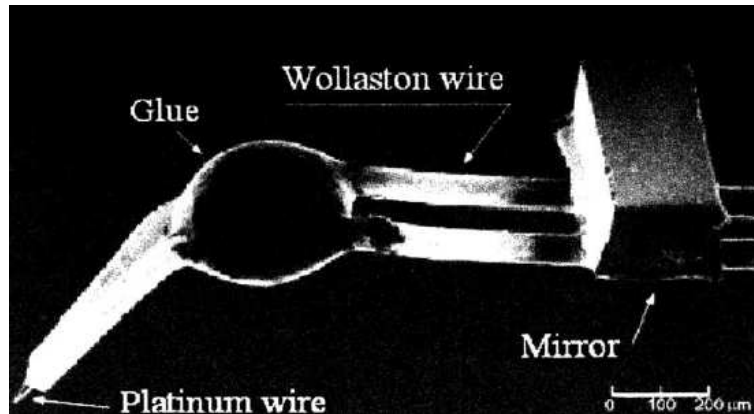
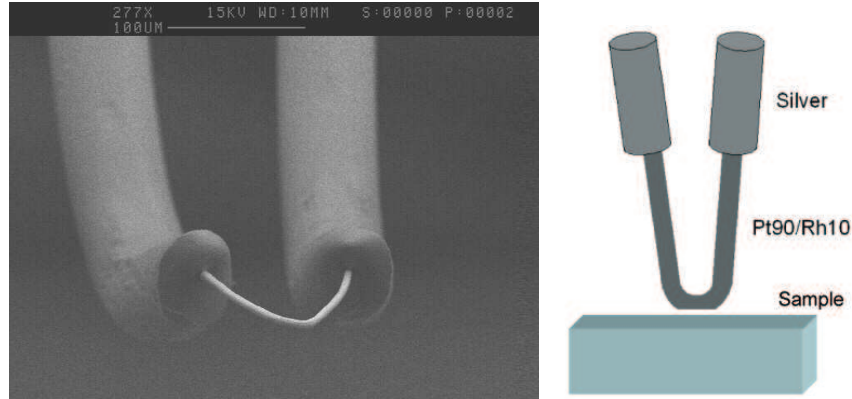


FIG. I.11 – Image de la partie extrême du microscope AFM à sonde thermique locale. On voit le fil de Wollaston et le miroir qui lui est fixé. La partie sonde thermique est à l'extrémité de la partie courbée.

Nous nous focaliserons dans ce chapitre sur le microscope à force atomique sur lequel on a remplacé la pointe conique habituelle par un fil dénudé de Wollaston (Dinwiddie, 1994). Ce type de sonde est donc à élément résistif. Nous présentons cette pointe sur la figure I.11. Elle est initialement constituée d'un fil de Wollaston, composé d'un coeur en alliage de platine rhodié à 10 % (Pt90/Rh10) et d'une gaine d'argent. C'est un fil conducteur électrique. Ce fil est dénudé sur une portion de l'ordre de 200  $\mu\text{m}$  de sorte que n'apparaisse plus alors que la partie centrale et résistive de platine rhodié, comme le montre la figure I.12. Le passage d'un courant dans la sonde entraîne un chauffage de la partie dénudée par effet Joule. Un profil de température est alors créé dans cette partie dénudée. L'utilisation du microscope à force atomique pour la thermique consiste alors à utiliser comme sonde de champ proche l'extrémité de la pointe. La partie chaude se retrouve en contact avec le matériau ou l'objet à analyser. Celui-ci est a priori plus froid : il va donc y avoir un flux de chaleur passant de la pointe vers l'échantillon, ce qui va refroidir la pointe. Ce flux sera dépendant des propriétés thermiques du matériau analysé, sa conductivité thermique et sa température. La mesure du flux perdu par la sonde dans l'échantillon est réalisée par l'analyse de la caractéristique courant-tension de la pointe. En effet, la résistivité de la pointe dépend de la température. La mesure utilise donc une pointe active qui donne accès à la fois à la température et au flux perdu par la sonde.

### I.5 Principe de la mesure avec la pointe Wollaston

L'expérience repose sur la possibilité de mesurer le flux thermique perdu par la pointe lorsqu'elle est chauffée. Deux méthodes sont détaillées : chauffage à l'aide d'un courant continu ou à l'aide d'un courant alternatif.



**FIG. I.12** – *A gauche : sonde thermique, à l'extrémité de la pointe Wollaston, obtenue par microscopie électronique à balayage. La partie active de la pointe est présentée "vue de dessous". A droite : schématisation simple du positionnement de la sonde près d'un échantillon.*

### I.5.1 Méthode DC

La méthode DC est l'utilisation la plus courante (Dinwiddie, 1994; Balk, 1995; Hammiche, 1997; Gmelin, 1998; Gomès, 1999; Buzin, 2002; Lefèvre, 2003; Wang, 2004; Fischer, 2005). La sonde est alimentée par un courant constant. Une puissance Joule  $RI^2$  chauffe par conséquent la sonde. Hors contact, la sonde chauffée a une température  $T_0 + \Delta T_{Joule}^{HC}$ , le sigle *HC* signifiant que la sonde est hors contact et  $T_0$  la température ambiante. En contact (*EC*), une partie du flux passe de la sonde vers l'échantillon. A l'équilibre, la sonde a donc une nouvelle température  $T_0 + \Delta T_{Joule}^{EC} - \Delta T_{ch}$ , où  $\Delta T_{ch}$  dépend fortement des propriétés de l'échantillon. Le principe de la méthode repose sur la dépendance en température de la résistivité de la sonde. En effet, la résistance électrique de la sonde dépend linéairement de la température dans un large domaine :

$$R(T) = R(T_0) [1 + \alpha_{\rho_e}(T - T_0)] \quad (I.1)$$

où  $\rho_e$  désigne la résistivité électrique — résistance électrique et résistivité électrique sont égales à un facteur géométrique près —. En mesurant la tension et en connaissant précisément la tension à un courant d'entrée de référence, on peut déduire la température selon l'expression :

$$U(T) = R(T_0)I [1 + \alpha_{\rho_e}(T - T_0)] \quad (I.2)$$

Une manière simple d'accéder à la température directement est d'utiliser un pont de Wheatstone préalablement équilibré à faible courant. Notons qu'un compromis est à trouver entre faible courant et sensibilité de la sonde. Dans ce cas, l'échauffement de la sonde  $\Delta T$  s'écrit :

$$\Delta T = \frac{\Delta U(T)}{\alpha_{\rho_e} R_0 I} \quad (I.3)$$

Le schéma I.13 montre un pont de Wheatstone alimenté par un générateur de courant. La sonde de résistance  $R_{probe}$  est branchée entre la masse et le point B. Les branches  $R_1/R_2$  et  $R_3/R_{probe}$  sont en parallèle ; deux résistances sont en série sur chaque branche. Le principe de la mesure repose sur la possibilité d'obtenir l'égalité  $V_A = V_B$  grâce à une résistance variable, ici située sur la branche opposée à la sonde Wollaston. Si  $V_A = V_B$  lorsque  $T = T_0$ , on supprime la partie qui ne dépend pas de la température en mesurant  $V_A - V_B$ .

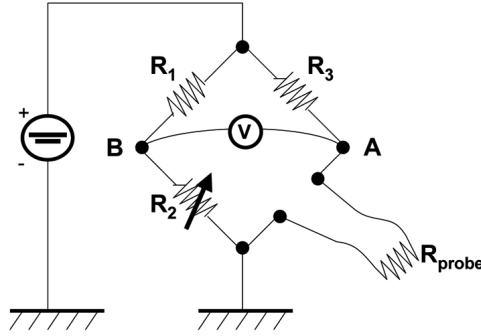


FIG. I.13 – Schéma d'un pont de Wheatstone

### I.5.2 Méthode $3\omega$

L'alimentation de la sonde est également possible avec un courant sinusoïdal  $I(t) = I_0 \cos(\omega t)$  (Lefèvre, 2005a). Dans ce cas, le chauffage, qui vaut  $RI^2$ , impose l'apparition d'harmoniques de températures<sup>1</sup>. En effet, la puissance Joule dissipée dans la sonde sera :

$$\begin{aligned} P_{Joule} &= R I(t)^2 \\ &= R \frac{I_0^2}{2} [1 + \cos(2\omega t)] \end{aligned} \quad (\text{I.4})$$

L'existence d'un flux de chaleur à la fréquence  $2\omega$  entraîne l'apparition d'une harmonique de température à  $2\omega$ . La température s'écrit donc :

$$T = T_0 + \theta_{DC} + \theta_{2\omega} \cos(2\omega t + \phi_{2\omega}) \quad (\text{I.5})$$

$\theta_{DC}$  et  $\theta_{2\omega}$  sont ici les élévations de température DC et à  $2\omega$  par rapport à la température ambiante initiale  $T_0$ . Peut-on mesurer simplement la température  $\theta_{2\omega}$  ? La résistance dépend de la température, donc :

$$\begin{aligned} U &= R(t) I(t) \\ &= R_0 [1 + \alpha_{\rho_e} \Delta T] I_0 \cos(\omega t) \\ &= R_0 [1 + \alpha_{\rho_e} (\theta_{DC} + \theta_{2\omega} \cos(2\omega t + \phi_{2\omega}))] I_0 \cos(\omega t) \\ &= R_0 I_0 [(1 + \alpha_{\rho_e} \theta_{DC}) \cos(\omega t) + \alpha_{\rho_e} \theta_{2\omega} \cos(2\omega t + \phi_{2\omega}) \cos(\omega t)] \\ &= R_0 I_0 \left[ (1 + \alpha_{\rho_e} \theta_{DC}) \cos(\omega t) + \frac{\alpha_{\rho_e}}{2} \theta_{2\omega} \cos(\omega t - \phi_{2\omega}) \right. \\ &\quad \left. + \frac{R_0 I_0}{2} \alpha_{\rho_e} \theta_{2\omega} \cos(3\omega t + \phi_{2\omega}) \right] \end{aligned} \quad (\text{I.7})$$

On remarque finalement que la tension à  $3\omega$  est proportionnelle à l'harmonique de température à  $2\omega$  :

$$U_{3\omega} = \frac{\alpha_{\rho_e} R_0 I_0 \theta_{2\omega}}{2} \cos(3\omega t + \phi_{2\omega}) \quad (\text{I.8})$$

En filtrant la tension de sortie avec une détection synchrone (Lock in Amplifier, LIA), la mesure de l'amplitude  $\theta_{2\omega}$  sera effectuée. On pourra également avoir accès à la phase. Il faut cependant

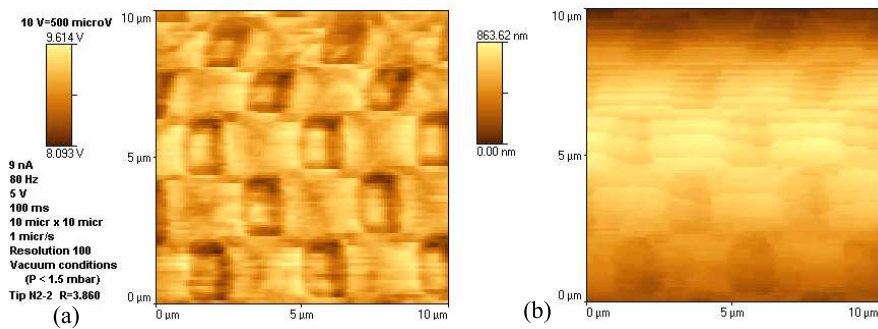
<sup>1</sup>La méthode  $3\omega$  a été inventé initialement par Cahill (Cahill, 1990) pour mesurer la conductivité thermique d'un matériau en déposant une ligne de métal sur sa surface. Des raffinements ont été proposés depuis (voir par exemple (Dames, 2005)). Elle est utilisée en microscopie et d'autres applications semblent aujourd'hui possibles (Barrero, 2007).

remarquer que la température est supposée ici s'écrire sous la forme d'une somme de deux termes, l'un étant stationnaire et l'autre de fréquence  $2\omega$ . En réalité, un plus grand nombre d'harmoniques est susceptible d'apparaître. Nous verrons dans la suite dans quelle mesure il faut en tenir compte.

## I.6 Applications

### I.6.1 Mesure de conductivité thermique locale

Le microscope AFM à sonde thermique locale Wollaston a été utilisé pour différentes applications (voir par exemple (Volz, 2005) et (Volz, 2007a) [Chapitre 9, B. Cretin, S. Gomès, N. Trannoy, P. Vairac]). La plus immédiate est la mesure de conductivité thermique locale, qui a généré un nombre de travaux importants. Ce mode d'utilisation consiste à chauffer la sonde par effet Joule et à observer comment elle se refroidit au contact de l'échantillon. C'est donc un mode d'utilisation actif. Des cartographies ("scans") de surfaces permettent d'obtenir des images telles que celles présentées sur la figure I.14. Cependant, la difficulté des mesures repose sur l'existence d'un couplage entre topographie et transferts thermiques. Les cases du damier de la figure I.14 sont en effet d'altitudes différentes comme le montre l'image topographique obtenue en même temps que l'image thermique. Il apparaît que les sommets des plots correspondent aux zones, qui ont le meilleur contraste dans l'image thermique (a).



**FIG. I.14** – Images d'un damier micrométrique à deux conductivités thermiques différentes. (a) Tension de la sonde SThM représentant la température moyenne de la sonde en microscopie SThM obtenue en mode  $3\omega$ . (b) Image topographique associée.

La microscopie SThM requiert une modélisation qui permet de déterminer quel est le flux absorbé par l'échantillon. C'est l'objet du chapitre suivant.

### I.6.2 Mesure d'échauffement de surface

Il est possible d'utiliser la sonde Wollaston avec des échantillons actifs. Dans le cadre du *Groupe de recherche "Micro et Nanothermique"* (Gomès, 2007), l'étude de la température de surface d'une puce micro-électronique dont les pistes électriques sont enfouies sous une matrice polymère (figure I.15) a été réalisée. L'alimentation des pistes avec un courant modulé à la fréquence  $\omega$  génère un chauffage par effet Joule dans la puce à la fréquence  $2\omega$ . La pointe Wollaston peut détecter l'élévation de température à la surface de la puce. Le principal défaut de la pointe Wollaston réside dans le fait qu'elle nécessite d'être alimentée par un courant, et donc chauffée, pour être capable de détecter des variations de propriété thermique. Mais dans le cas présent, on peut alimenter la pointe par un courant constant. Le flux thermique passant de la pointe SThM vers l'échantillon

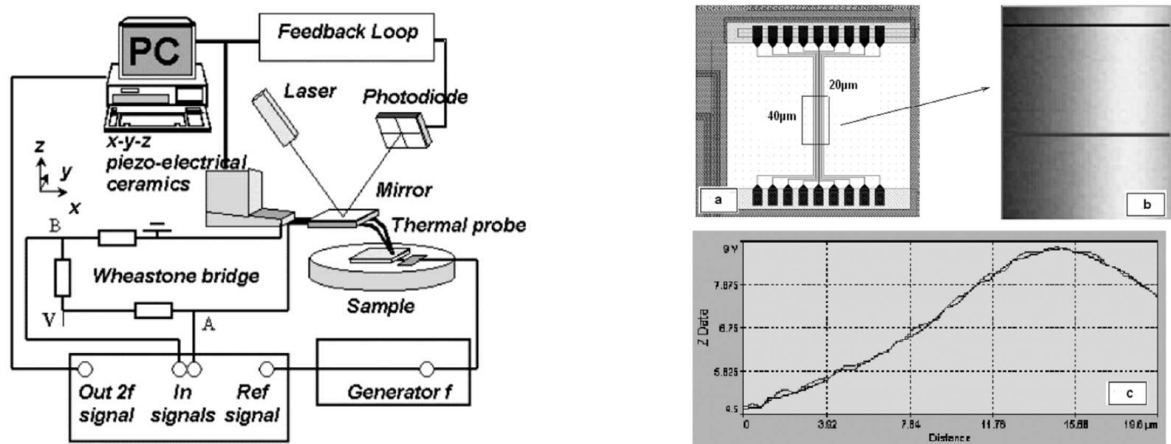


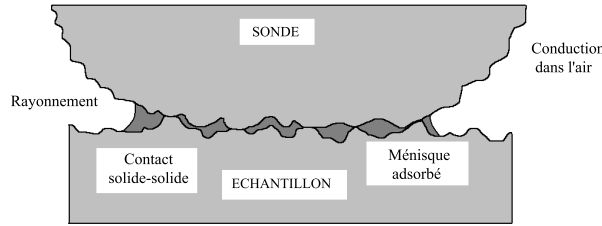
FIG. I.15 – Mesure de la température de surface d'une puce micro-électronique chauffée par des fils électriques enfouis dans une matrice polymère. A gauche, le principe de la méthode. A droite, l'aspect de la puce (a), une cartographie ("scan") de la surface de la puce (b), et une coupe de la cartographie qui donne le module de la température à l'harmonique  $2\omega$  en fonction de l'éloignement des pistes. D'après (Gomès, 2007).

dépend de la température de la surface de l'échantillon. Ce flux aura donc une composante modulée à  $2\omega$ . Ceci implique une faible variation modulée de la température de la pointe. Elle peut être détectée par analyse synchrone de la tension de sonde.

## I.7 Une limitation intrinsèque à la mesure de la conductivité thermique locale ?

### I.7.1 Flux transféré de la sonde vers l'échantillon

Le flux transféré par la sonde chauffée vers l'échantillon emprunte plusieurs trajets. Il peut être transféré par conduction dans l'air à partir des parois de la pointe. Il peut aussi être transféré par conduction à travers les constriction du contact entre les solides. Il peut être transféré à travers le ménisque interstitiel entre les corps solides. C'est ce ménisque qui est responsable de l'hystérésis évoqué au début de ce chapitre. Enfin, le flux peut être transféré par rayonnement des parois de la sonde chaude. Ce rayonnement est négligé dans cette section. La figure I.16 présente ces différents modes de transfert de chaleur. L'importance relative des modes de transferts est mal connue. Une méthode simple pour caractériser ces différents modes de transfert consiste à associer une conductance thermique à chacun d'entre eux. Il a été montré que la surface de l'échantillon est chauffée sur des aires très différentes par ces modes (Lefèvre, 2004b; Lefèvre, 2005b). L'air est supposé chauffer au moins  $1 \mu\text{m}^2$ . La taille du ménisque (Weeks, 2002; Riedo, 2002) dépend fortement de l'hydrophilie des matériaux, de l'humidité et de la température. Comme il n'est constitué que d'au plus quelques couches atomiques, la taille caractéristique de la zone sur laquelle il transfère la chaleur a été estimée à moins de 200 nm (Lefèvre, 2004b).



**FIG. I.16** – Schématisation de la sonde en contact avec l'échantillon. Le transfert thermique se fait via le contact entre les solides, via les menisques fusionnés et par conduction dans l'air. Le rayonnement est négligé dans cette étude.

### I.7.2 Contact mécanique et raréfaction des porteurs de chaleur

Le flux thermique conductif  $\phi$  qui passe à travers la zone de contact mécanique telle qu'elle est illustrée sur le schéma (I.16) est donné par :

$$\phi = G_S^o \theta_S = K \lambda_s D \theta_s \quad (\text{I.9})$$

où  $\lambda_s$  est la conductivité thermique de l'échantillon,  $D$  la taille caractéristique du contact thermique et  $\theta_s$  l'écart de température entre la tâche circulaire chaude et les limites de l'échantillon éloignées du contact.  $G_S^o$  est la conductance thermique associée à la géométrie du contact et  $K$  est un facteur géométrique proche de l'unité qui décrit la constriction des lignes de flux. L'un des objectifs de la microscopie thermique est la mesure de conductivité thermique locale. Dans le vide, l'aire de contact thermique est conditionnée par la taille des constriction de la pointe si l'échantillon est bien plan. Le rayon de contact mécanique est donné par la loi de Hertz et vaut quelques dizaines de nanomètres au plus, si la force appliquée n'est pas trop grande. Le libre parcours moyen  $\Lambda$  des phonons vaut également en général quelques dizaines des nanomètres. Le libre parcours des phonons peut donc atteindre quelques centaines de nanomètres. Il est donc intéressant de se demander dans quelle mesure la taille  $D$  du contact thermique peut influencer le transfert thermique si elle devient comparable au libre parcours moyen des phonons. La figure I.17 montre que les effets ondulatoires restent négligeables, car la longueur caractéristique de ces phénomènes, la longueur d'onde des phonons, est plus faible que 2 nm.

Il faut cependant prendre en compte les effets de raréfaction des phonons si l'inégalité  $\Lambda/D \ll 1$  n'est pas vérifiée. La résistance thermique entre deux bains thermiques peut s'écrire comme la somme de deux résistances thermiques en série (Bahadur, 2005; Prasher, 2006), dont l'une est d'origine purement diffusive, qui prend en compte la constriction des lignes de flux. L'autre a pour origine les collisions avec les frontières du canal formé par les parois externes du contact mécanique. La conductance thermique de l'échantillon s'écrit alors en appliquant la formule de Wexler (Wexler, 1966) :

$$G_S = \frac{G_S^o}{1 + \alpha K_n} \quad (\text{I.10})$$

où  $\alpha$  est une constante qui dépend de la forme du contact mécanique et vaut de l'ordre de l'unité et  $K_n = \Lambda/D$  est le nombre de Knudsen associé au diamètre de la zone la plus faible du canal. Pour les nombres de Knudsen petits, on retrouve bien la conductance habituelle. Par contre, si  $K_n$  commence à ne plus être négligeable devant  $1/\alpha$ , la conductance diminue. Pour une telle situation

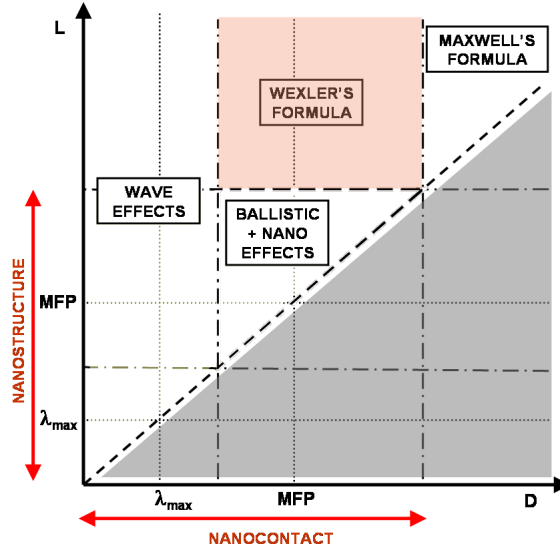


FIG. I.17 – Grandeurs caractéristiques du transport thermique dans les solides à conduction phononique et conductances thermiques associées. D'après (Volz, 2007b).

où  $\alpha K_n \gg 1$ , on obtient alors :

$$G_S = K \lambda_S \frac{D}{\alpha K_n} \quad (\text{I.11})$$

$$= K \frac{\Lambda \rho c_p v}{3} \frac{D^2}{\alpha \Lambda} \quad (\text{I.12})$$

$$= K \frac{\rho c_p v}{3\alpha} D^2 \quad (\text{I.13})$$

où la conductivité thermique est remplacée par son expression classique qui dépend du libre parcours moyen des porteurs d'énergie  $\Lambda$ , de  $c_p$  la capacité calorifique et de  $v$  la vitesse moyenne des porteurs d'énergie (Peierls, 1956). Dans ce paragraphe, tous les phonons sont supposés avoir le même libre parcours moyen et la même vitesse moyenne. L'expression (I.13) fait disparaître toute dépendance au libre parcours moyen  $\Lambda$  des porteurs d'énergie, et dépend de l'aire du contact  $D^2$  au lieu de la simple taille caractéristique  $D$ . La dépendance à  $G_s$  est donc fortement modifiée, et elle ne dépend plus de la conductivité thermique. Le contact devient le paramètre essentiel.

Ceci semble être une limitation intrinsèque à la microscopie thermique à sonde locale : la sensibilité à la conductivité thermique diminue lorsque la taille caractéristique de la zone de sondage approche de la valeur du libre parcours moyen. Si elle devient beaucoup plus faible, la mesure devient complètement indépendante de la conductivité thermique. La mesure fournit alors directement  $\rho c_p v$ .





## Chapitre II

# Modélisation de la microscopie AFM thermique à sonde Wollaston

## II.1 Introduction

LE principe qualitatif de la microscopie AFM à sonde thermique, aussi appelée microscopie SThM, l'acronyme anglais de "scanning thermal microscopy", est donc maintenant connu. Il va s'agir dans ce travail de montrer comment des résultats quantitatifs peuvent être obtenus. En effet, l'expérimentateur a accès à la tension aux bornes de la sonde Wollaston ; nous avons montré dans le chapitre précédent le lien entre tension et température. Mais l'expérimentateur recherche la conductance thermique ou la température de l'échantillon. Il s'avère nécessaire de développer un modèle qui permette de calculer ces données à partir de la connaissance de la température de sonde. Le problème essentiel de la microscopie thermique est en effet de donner des valeurs fiables à ces grandeurs. Les valeurs des résistances de contact entre la pointe et l'échantillon sont cruciales et peuvent mener à des conclusions fausses si elles sont mal estimées. Ceci est un problème général en thermique des nanosystèmes (Swartz, 1989; Majumdar, 1990; Majumdar, 1991).

Dans ce chapitre, nous montrerons que la température de la sonde peut être évaluée en prenant en compte différents couplages thermiques. Nous montrerons notamment qu'en régime modulé les différentes harmoniques de la température sont couplées. Nous montrerons aussi l'impact de la variation de la conductivité thermique et de la diffusivité thermique, paramètres du modèle, en fonction de la température. Nous présenterons enfin un biais possible de mesure, lorsque la sonde n'est pas totalement symétrique, et son influence.

## II.2 Modélisation de la pointe SThM

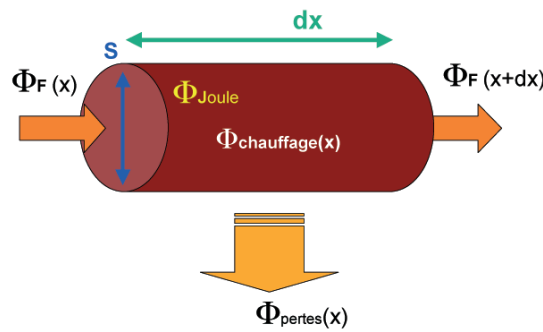
### II.2.1 Equation d'ailette

Nous décrivons dans cette section comment nous allons modéliser la pointe. Elle est constituée d'un fil de platine rhodié d'une longueur de 200  $\mu\text{m}$  environ et un diamètre de 5  $\mu\text{m}$ . Ce fil est obtenu en dénudant un fil de Wollaston, composé par le platine rhodié et une gaine d'argent de diamètre de l'ordre de 75  $\mu\text{m}$ . Le faible diamètre du fil permet de considérer que la section du fil est isotherme (Lefèvre, 2004b). Les conditions sur le nombre de Biot sont analysées en détail dans le chapitre suivant. Lorsque la pointe n'est pas en contact avec la surface, la seule zone où cette approximation n'est pas vérifiée est le contact avec la partie gainée en argent. Nous allons voir qu'elle sera traitée par la prise en compte d'une conductance thermique globale. En effet, la non-isothermie éventuelle près de cette zone est due aux lignes de flux.

Dans le cadre de l'approximation d'ailette à section isotherme intégrant un terme source volumique lié à l'effet Joule, l'équation fondamentale s'écrit :

$$\frac{1}{a} \frac{\partial T}{\partial t}(x, t) = \frac{\partial T}{\partial x^2}(x, t) - \frac{ph(x)}{\lambda S} [T(x, t) - T_{amb}] + \frac{\rho I(x, t)^2}{2\lambda S^2} \quad (\text{II.1})$$

où  $T(x, t)$  est la température associée à un tronçon de fil,  $T_{amb}$  la température ambiante à l'extérieur du fil et  $\rho$  la résistivité électrique du platine rhodié.  $p$  est le périmètre d'une section de fil,  $\lambda$  la



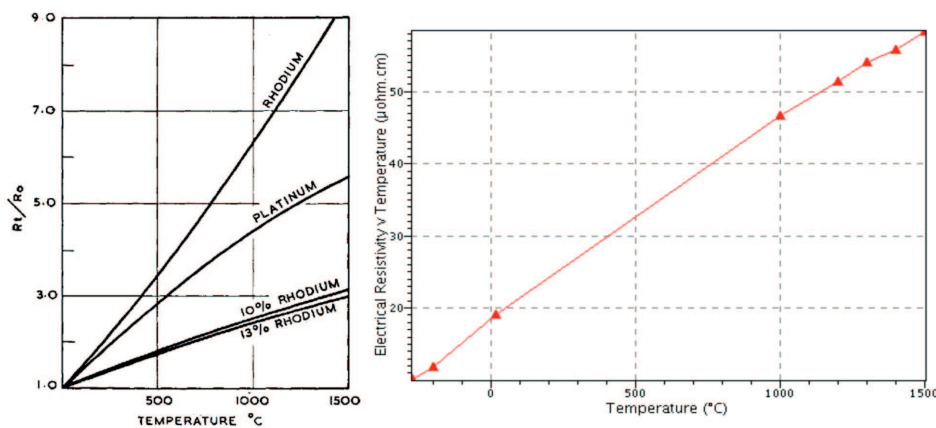
**FIG. II.1** – *Élément de sonde : modèle d'ailette. Cet élément est chauffé (élévation de la température) par effet Joule dû au passage du courant. Il perd de la chaleur par conduction dans la sonde et par "conducto-convection" par ses parois latérales vers l'extérieur.*

conductivité thermique du platine rhodié,  $h(x)$  est le coefficient d'échange thermique de la surface du fil avec le milieu ambiant extérieur et  $I(x, t)$  est l'intensité locale du courant dans le fil.  $a$  est la diffusivité thermique et  $S$  l'aire d'une section de la sonde.

## II.2.2 Paramètres et dépendance à la température

La section précédente a mis en évidence la dépendance de (II.1) à différents paramètres. On sait depuis longtemps que la résistivité du platine rhodié dépend de la température. Le platine rhodié à 10% est un matériau assez bien documenté, car il a été synthétisé pour la première fois en 1886 par Le Chatellier. Cependant, certaines grandeurs moins connues méritent aussi d'être examinées.

### Résistivité



**FIG. II.2** – *Résistance d'un morceau de platine rhodié à 10% . A gauche, la comparaison avec les métaux purs (Platinum Review). A droite, zoom sur le domaine qui nous intéresse (Goodfellow).*

La résistivité électrique du Pt90-Rh10 est présentée sur la figure II.2. Elle dépend linéairement de la température dans une gamme de 500 K selon la relation :

$$\rho(T) = \rho(T_{ref}) [1 + \alpha(T - T_{ref})] \quad (\text{II.2})$$

où

$$\alpha = 1.7 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1} \quad (\text{II.3})$$

La valeur fournie par le fabricant de pointe est en accord avec cette valeur. La formule II.2 nous montre que la résistivité dépend de la localisation dans la sonde, repérée par l'abscisse  $x$ , et du temps à travers la grandeur température  $T = T(x, t)$ .

### Dilatation thermique

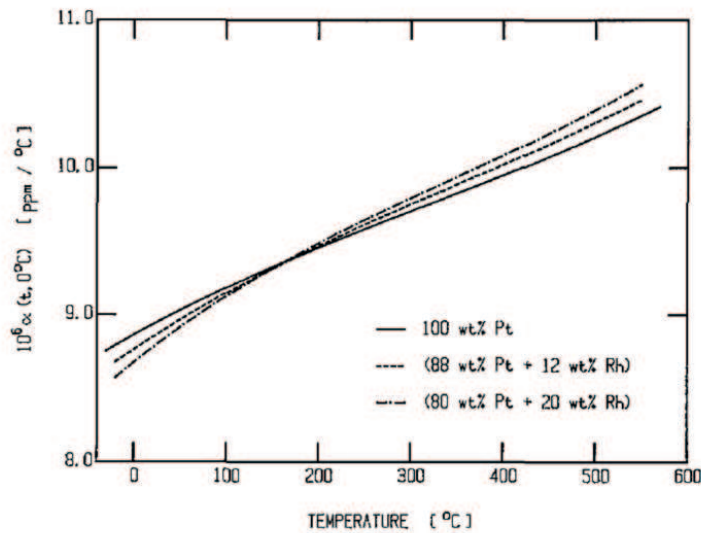
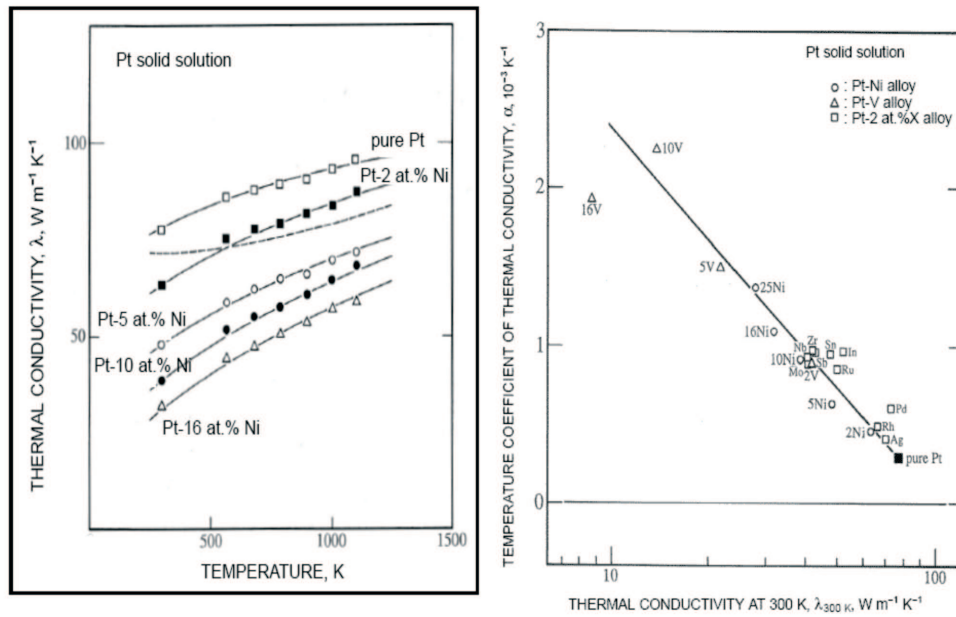


FIG. II.3 – Coefficient d'expansion thermique du platine rhodié pour quelques compositions.

Une question importante est de savoir si la pointe se dilate sous l'action du champ de température. Le coefficient de dilatation linéaire du platine est de l'ordre de  $9 \cdot 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  dans la gamme  $[0 - 100]^\circ \text{C}$ . En conséquence, la dilatation ne jouera pas de rôle notable vu les dimensions faibles. Pour une longueur de  $100 \mu\text{m}$ , l'augmentation de taille de la sonde restera inférieure à  $150 \text{ nm}$ .

### Conductivité thermique

La variation de la conductivité thermique du platine rhodié en fonction de la température n'est à notre connaissance pas connue pour le rapport 90/10. A priori, la conductivité varie peu, puisque l'alliage est utilisé dans les thermocouples de type S pour la grande stabilité de ses propriétés en fonction de la température. La seule étude systématique de la conductivité thermique d'un alliage de platine en fonction la température en notre possession est celle d'un alliage au nickel, présentée sur la figure II.4. De même que le platine, le nickel est un élément de la colonne 10 dans le tableau de Mendeleïev. Le rhodium est classé dans la colonne 9. Une corrélation empirique montre que la dépendance en température de la conductivité thermique d'un alliage au platine dépend essentiellement de la conductivité thermique de l'alliage. On en déduit que la dépendance en température de la conductivité thermique de l'alliage Pt90-Rh10 est très proche de celle du



**FIG. II.4** – Evolution de la conductivité thermique en fonction de la température. A gauche, évolution de la conductivité thermique d’alliages de platine et de nickel en fonction de la température (*Platinum Review*). A droite, coefficient de dépendance à la température à 300 K de la conductivité thermique pour différents alliages en fonction de la conductivité thermique. On voit que le nickel devrait avoir le même type de comportement que le rhodium (*Platinum Review*).

composé Pt90-Ni10. La figure II.4 nous donne le coefficient de dépendance à la température dans le domaine de température linéaire proche de 300 K :

$$\alpha_{\lambda} = 8,5 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1} \quad (\text{II.4})$$

### Diffusivité thermique

La diffusivité thermique  $a$  de la sonde s’exprime sous la forme

$$a = \frac{\lambda}{\rho c_p} \quad (\text{II.5})$$

Il n’existe pas de données de sa variation en fonction de la température. Nous allons donc utiliser une estimation de chacun des trois facteurs. Le comportement de la conductivité thermique  $\lambda$  est déjà connu.

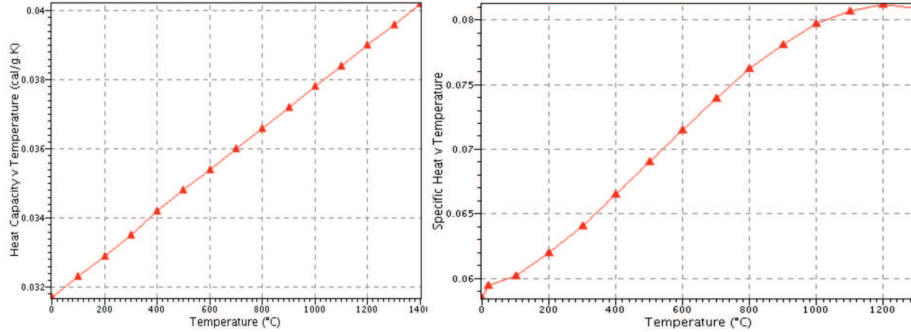
### Densité

Les variations de densités dans la zone de température  $[0 - 500] \text{ }^{\circ}\text{C}$  sont négligées après consultation de celles du platine et du rhodium purs. La valeur retenue est

$$\rho_m = 1,995 \text{ kg m}^{-3} \quad (\text{II.6})$$

### Capacité calorifique massique

Comme il n'existe pas de données pour le composé Pt90/Rh10, les valeurs du platine et du rhodium ont été utilisées. La moyenne à raison des taux de 90% de platine et 10% de rhodium a été déduite. Les capacités calorifiques massiques du platine et du rhodium sont données par la figure II.5.



**FIG. II.5** – Capacités calorifiques massiques du platine (à gauche) et du rhodium (à droite). Les données sont issues de la base (Platinum Review).

Un coefficient de dépendance à la température en est déduit. La capacité calorifique du platine évolue linéairement avec la température, mais celle du rhodium ne suit pas la même évolution en dessous de 300 °C. Le coefficient de température de la chaleur massique du platine vaut  $4.16 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$  et, en s'appuyant sur la zone [20-130] °C, celui du rhodium est évalué à  $4.16 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ . Après pondération, on trouve une estimation du coefficient de dépendance à la température de la capacité calorifique du platine rhodié à 10% :

$$\alpha_{cc} = 3.90 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1} \quad (\text{II.7})$$

### Implications sur la diffusivité thermique de Pt90/Rh10

Finalement, en linéarisant les expressions, il vient

$$\begin{aligned} \alpha_a &= \alpha_{cc} - \alpha_\lambda \\ &= -4.6 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1} \end{aligned} \quad (\text{II.8})$$

La diffusivité thermique décroît donc légèrement lorsque la température augmente. Cette estimation est basée sur la gamme de température [20-130] °C. Au-delà, la diffusivité varierait moins a priori. Des mesures de diffusivités thermiques semblent nécessaires et nous n'avons fait qu'estimer basiquement la valeur du coefficient de dépendance à la température de la diffusivité thermique.

## II.3 Conditions aux limites

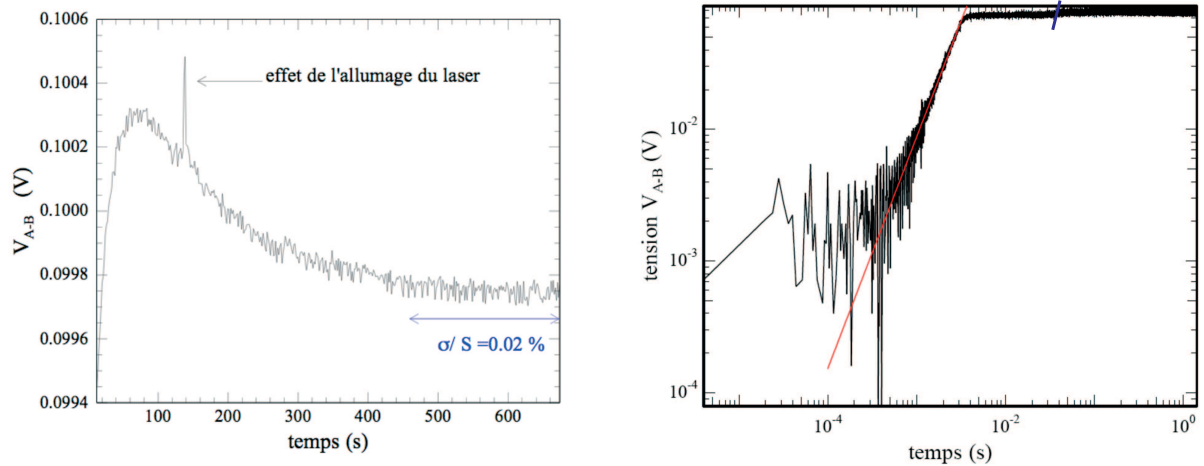
### II.3.1 Sonde hors contact

Pour bien maîtriser l'outil qu'est le microscope thermique, il est utile de se baser sur une configuration simple. Le cas de la sonde hors contact a été proposé afin de calibrer la pointe Wollaston. Un comportement de filtre passe-bas en fréquence a été remarqué, et la fréquence de coupure a été reliée aux paramètres géométriques de la sonde (Lefèvre, 2004b; Lefèvre, 2004a; Chirtoc, 2006).

Le fil de Wollaston, de conductivité thermique bien plus élevée que le fil de platine rhodié -  $\lambda_{Argent} = 429 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  et  $\lambda_{Pt} = 38 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ ) - et de section également bien plus grande -  $75 \mu\text{m}$  de diamètre par rapport à  $5 \mu\text{m}$  - peut être assimilé *a priori* à un puits thermique pour la sonde (Lefèvre, 2004b). On va donc supposer que

$$T_{Wollaston} = T_{amb} \quad (\text{II.9})$$

Ceci est notamment totalement valable pour les signaux harmoniques du régime AC, qui oscillent et dont le chauffage moyen reste nul. La conductance du fil de Wollaston a cependant été estimée égale à  $G_{Wollaston} = 5 \cdot 10^{-3} \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  dans les travaux précédents (Lefèvre, 2004b). La courbe II.6 montre bien que la température de la sonde n'est pas constante avec le temps, et que le temps d'établissement du régime stationnaire est très long. La chaleur générée dans la sonde diffuse dans le fil de Wollaston, puis sur le miroir par exemple. Il est donc important de réaliser les expériences sur des temps courts ou, idéalement, de déconvoluer le signal de température.



**FIG. II.6** – Evolution de la tension de sonde (en Volts) en réponse à une marche de tension (continue) aux bornes de la sonde. La figure de gauche montre l'évolution aux longues durées et celle de droite aux très courtes durées (échelles logarithmiques). On constate plusieurs constantes de temps caractéristiques : la plus courte (ligne rouge) vaut  $4 \cdot 10^{-3}$  s, une autre 80 s (sommet de la courbe de gauche). Le temps de stabilisation complète de la température est ici de l'ordre de 550 s. L'allumage de la diode laser implique également un chauffage de la pointe.

Le temps caractéristique de chauffage de la sonde est 4 ms d'après la figure II.6.

Finalement, les deux extrémités du platine donnent les deux conditions aux limites. Alternative-ment, il est aussi possible d'établir, hors contact, que le flux qui traverse le milieu du fil est nul, du fait de la symétrie. On a alors une condition à une extrémité de la sonde et la condition de symétrie au centre de la sonde en fournit une seconde.

### II.3.2 Sonde en contact

Dans le cas de la sonde en contact, la condition de symétrie au centre de la sonde n'est plus valable. En effet, il existe un flux thermique qui est perdu par la demi-sonde à son extrémité en contact avec l'échantillon. La condition de symétrie est donc remplacée par une condition de flux qui conduit



aux relations suivantes :

$$\phi_{x=0, G \rightarrow S} = \frac{G E_{qu}}{2} (T(x=0) - T_S) \quad (\text{II.10})$$

$$\phi_{x=0, D \rightarrow S} = \frac{D E_{qu}}{2} (T(x=0) - T_S) \quad (\text{II.11})$$

où on a séparé les contributions des flux générés dans la partie gauche de la sonde et dans la partie droite de la sonde. Les indices  $G$  et  $D$  représentent les parties gauche et droite de l'échantillon  $S$ .

## II.4 Equation de la chaleur et résolution

### II.4.1 Observation expérimentale

En premier lieu, une observation expérimentale de l'évolution de la tension de la sonde est présentée sur la figure II.7, en fonction de la tension sinusoïdale d'entrée à une fréquence donnée de 80 Hz. La sonde est ici hors contact. Les tensions aux harmoniques  $\omega$  et  $3\omega$  ont les amplitudes les plus élevées. Il est possible de montrer que l'évolution de ces courbes est proportionnelle au cube de la tension. La cinquième harmonique apparaît également en chauffant, mais avec une loi de dépendance à la tension différente, plus forte. Son amplitude vaut entre 1/150 et 1,8% de celle de la troisième harmonique. La seconde harmonique apparaît brusquement. Sa valeur vaut au mieux 0,5% de la valeur de la troisième harmonique et 0,22% aux hautes températures. La quatrième harmonique reste quasiment toujours inférieure au bruit.

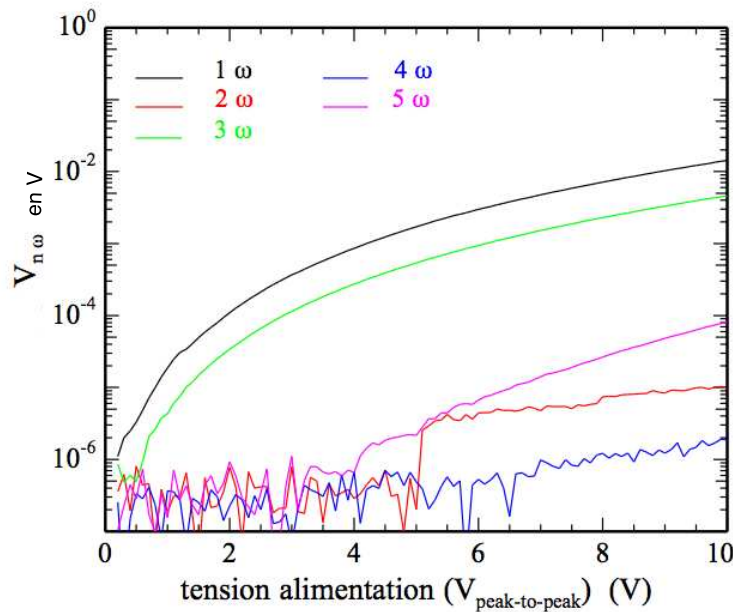


FIG. II.7 – Evolution de l'amplitude de quelques harmoniques en fonction de l'amplitude du signal d'alimentation à  $\omega$ .

L'analyse de ce spectre en fonction de la tension permet de caractériser deux régimes :

- le régime habituel à  $3\omega$ , où seuls coexistent les signaux à  $\omega$  et  $3\omega$
- un régime à plus haute température, où les harmoniques  $5\omega$  et  $2\omega$  apparaissent. Comme la sensibilité est a priori meilleure à haute température, il est intéressant d'analyser le signal dans ce domaine.

### II.4.2 Equations de la chaleur

Les évaluations précédentes nous donnent l'équation :

$$\begin{aligned}
& [1 + \alpha_a (T(x, t) - T_0)] \frac{1}{a} \frac{\partial T}{\partial t}(x, t) \\
= & \frac{\partial^2 T}{\partial x^2}(x, t) - \frac{ph(x)}{\lambda S} [T(x, t) - T_{amb}] [1 - \alpha_\lambda (T(x, t) - T_0)] \\
& + \frac{\rho_e I(x, t)^2}{\lambda S^2} [1 + (\alpha_{\rho_e} - \alpha_\lambda)(T(x, t) - T_0)]
\end{aligned} \tag{II.12}$$

En notant encore  $\theta(x, t) = T(x, t) - T_{amb}$  et en supposant  $T_0 = T_{amb}$ , il vient :

$$\begin{aligned}
& [1 + \alpha_a \theta(x, t)] \frac{1}{a} \frac{\partial \theta}{\partial t}(x, t) \\
= & \frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2}(x, t) - \frac{ph(x)}{\lambda S} \theta(x, t) [1 - \alpha_\lambda \theta(x, t)] \lambda S^2 \\
& + \frac{\rho_e I(x, t)^2}{[1 + (\alpha_{\rho_e} - \alpha_\lambda) \theta(x, t)]}
\end{aligned} \tag{II.13}$$

Cette équation est non linéaire puisque quadratique. Il est donc difficile de la résoudre complètement. On suppose dans toute la suite que le coefficient  $h$  d'échange thermique avec l'extérieur ne dépend pas de la température, donc  $h(x) = h$ .

### II.4.3 Alimentation par un courant continu

Nous allons considérer ici que nous alimentons la sonde en régime DC, avec un courant continu  $I = I_0$ . Le premier terme non-linéaire de l'équation (II.14) disparaît, contrairement à celui du membre de droite. On peut alors l'exprimer sous la forme suivante :

$$\frac{d^2 \theta}{dx^2}(x) - \frac{ph}{\lambda S} \theta(x) (1 - \alpha_\lambda \theta) + J [1 + (\alpha_{\rho_e} - \alpha_\lambda) \theta(x)] = 0 \tag{II.14}$$

On a adopté ici la notation  $J = \frac{\rho_e I_0^2}{\lambda S^2}$ . Il convient maintenant d'établir une approximation qui consiste à linéariser le terme non-linéaire. Pour tout tronçon de la sonde Wollaston, il sera supposé que :

$$[1 - \alpha_\lambda \theta(x)] \simeq (1 - \alpha_\lambda \beta \bar{\theta}) \tag{II.15}$$

où  $\bar{\theta}$  correspond à la moyenne spatiale de  $\theta$  et  $\beta$  est un facteur correctif constant qui va être évalué. De la sorte, l'équation devient linéaire et il est aisé de la résoudre formellement. Elle peut être réécrite :

$$\frac{d^2 \theta}{dx^2}(x) - \frac{ph}{\lambda S} \theta(x) [1 - \alpha_\lambda \beta \bar{\theta}] + J [1 + (\alpha_{\rho_e} - \alpha_\lambda) \theta(x)] = 0 \tag{II.16}$$

En notant  $\lambda_2 = \lambda / (1 - \alpha_\lambda \beta \bar{\theta})$  et  $\alpha = \alpha_{\rho_e} - \alpha_\lambda (\simeq 8,5 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1})$ , il apparaît enfin que :

$$\frac{d^2\theta}{dx^2}(x) - \theta(x) \left( \frac{ph}{\lambda_2 S} - \alpha J \right) = -J \quad (\text{II.17})$$

et on pose  $m^2 = \frac{ph}{\lambda_2 S} - \alpha J$ . Les conditions aux limites sont  $\theta(x = -L) = \theta(x = L) = 0$ . La solution de l'équation différentielle est obtenue :

$$\theta(x) = \frac{J}{m^2} \left( 1 - \frac{ch(mx)}{ch(mL)} \right) \quad (\text{II.18})$$

La température moyenne de la sonde s'écrit :

$$\bar{\theta} = \frac{J}{m^2} (1 - thc(mL)) \quad (\text{II.19})$$

où  $thc$  représente la fonction tangente hyperbolique cardinale (Chirtoc, 2006). Stéphane Lefèvre a montré précédemment (Lefèvre, 2004b) que les valeurs de  $m$  obtenues pour la sonde Wollaston, relativement faibles, impliquent un profil quasi-parabolique. L'Appendice 1 rappelle le profil de température dans la sonde pour l'approximation  $m = 0$ .

La résolution de l'équation n'est pas encore achevée.  $\beta$  doit être évalué. Pour cela, il suffit d'intégrer l'équation (II.14) entre les deux extrémités de la sonde. Il apparaît que :

$$\frac{\partial\theta}{\partial x}(L) - \frac{\partial\theta}{\partial x}(0) - m_0^2 \int_0^L \theta(x) (1 - A\theta(x)) dx + JL = 0 \quad (\text{II.20})$$

où  $m_0^2 = \frac{ph}{\lambda S} - \alpha J$  et  $A = \alpha \lambda \frac{ph/\lambda S}{ph/\lambda S - \alpha J}$ . Pour qu'il y ait conservation de l'énergie, le terme de l'intégrale doit être conservé dans le cadre de l'approximation. L'équation (II.20) s'écrit alors :

$$\frac{\partial\theta}{\partial x}(L) - \frac{\partial\theta}{\partial x}(0) - m_0^2 \int_0^L \theta(x) (1 - A\beta\bar{\theta}) dx + JL = 0 \quad (\text{II.21})$$

En conséquence,  $\beta$  se déduit de l'expression :

$$\beta \bar{\theta}^2 L = \int_0^L \theta(x)^2 dx \quad (\text{II.22})$$

Cette expression permet de choisir  $\beta$  de manière à ce que l'énergie soit conservée. Il apparaît que  $\beta$  vaut de l'ordre de 18/15 (cas où  $m \rightarrow 0$ ).

La figure II.8 ci-dessous précise l'écart de température moyenne dans la sonde calculé en fonction du courant d'entrée  $I_0$  à l'aide de notre approximation. L'écart de température peut paraître faible, mais un calcul de température le plus correct possible sera nécessaire dans la suite. Eviter des erreurs de l'ordre de 2-3 % est donc important.

#### II.4.4 Alimentation par un courant alternatif

La sonde est maintenant alimentée par un courant sinusoïdal  $I(t) = I_0 \cos(\omega t)$ . La puissance Joule locale dissipée s'écrit donc  $P_J(t) = \rho_e(T) \frac{I_0^2}{2} (1 + \cos(2\omega t))$ . On va considérer un développement en série de Fourier de la température est introduit comme suit :

$$\begin{aligned} \theta(x, t) &= \sum_{k=-\infty}^{+\infty} \theta_k(x) e^{i(k\omega t + \phi_k)} \\ &= \sum_{k=-\infty}^{+\infty} \underline{\theta}_k(x) e^{i k \omega t} \end{aligned} \quad (\text{II.23})$$

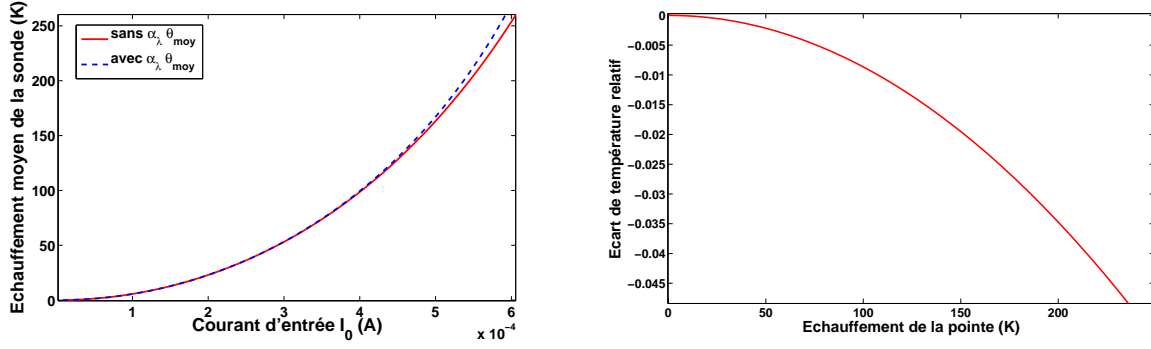


FIG. II.8 – Effet de l'augmentation de la conductivité thermique sous l'action de la température. A gauche, l'échauffement de la pointe en fonction du courant d'entrée. A droite, l'écart relatif de température en fonction de l'échauffement. Les paramètres du calcul sont  $h=2000 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$  et  $R_{\text{pointe}} = 3,2 \Omega$

où  $\underline{\theta}$  est l'amplitude complexe. Dans la suite, cette notation complexe sera simplifiée  $\theta$ . Comme la température  $\theta$  est réelle, on a bien évidemment  $\theta_k^* = \theta_{-k}$ . L'injection de (II.24) dans (II.14) semble difficile à cause des termes quadratiques. Nous allons négliger dans un premier temps les non-linéarités, puis nous les prendrons en compte à l'aide de corrections.

### Très faible température

Dans le cas des très faibles températures, seuls les termes du premier ordre sont conservés :

$$\begin{aligned} \frac{1}{a} \frac{\partial \theta}{\partial t}(x, t) &= \frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2}(x, t) - \frac{ph(x)}{\lambda S} \theta(x, t) + \frac{\rho_e I(t)^2}{\lambda S^2} \\ &= \frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2}(x, t) - \frac{ph(x)}{\lambda S} \theta(x, t) + \frac{\rho_e I_0^2}{4\lambda S^2} (2 + e^{2i\omega t} + e^{-2i\omega t}) \end{aligned} \quad (\text{II.24})$$

A basse température, les seules harmoniques de température qui peuvent être excitées sont les harmoniques 0 et  $2\omega$  -  $-2\omega$  est la température complexe conjuguée de  $2\omega$ . Ce cas a été traité par Stéphane Lefèvre dans sa thèse (Lefèvre, 2004b). Il suffit de séparer les termes constant, en  $e^{2i\omega t}$  et en  $e^{-2i\omega t}$  puisque les équations sont découplées. Notant  $J_{DC} = \frac{\rho_e I_0^2}{2\lambda S^2}$  et  $K = \frac{G_{qu}}{2\lambda S m_{DC}}$  avec  $m_{DC}^2 = \frac{ph}{\lambda S}$ , nous déduisons :

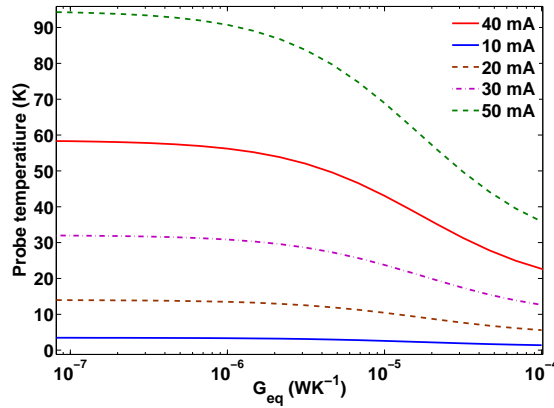
$$\bar{\theta}_{DC} = \frac{J_{DC}}{m_{DC}^2} - \frac{J_{DC}}{m_{DC}^3 L} \frac{sh(m_{DC}L) + 2K(ch(m_{DC}L) - 1)}{Ksh(m_{DC}L) + ch(m_{DC}L)} \quad (\text{II.25})$$

Le même type de calcul pour le terme à  $2\omega$ , en notant cette fois-ci  $J_{2\omega} = \frac{\rho_e I_0^2}{4\lambda S^2}$  et  $m_{2\omega}^2 = \frac{ph}{\lambda S} + i\frac{2\omega}{a}$ , implique que :

$$\underline{\theta}_{2\omega} = \frac{J_{2\omega}}{m_{2\omega}^2} - \frac{J_{2\omega}}{m_{2\omega}^3 L} \frac{sh(m_{2\omega}L) + 2K(ch(m_{2\omega}L) - 1)}{Ksh(m_{2\omega}L) + ch(m_{2\omega}L)} \quad (\text{II.26})$$

La température totale est alors la somme de la température constante et de la somme des températures complexes aux fréquences  $2\omega$  et  $-2\omega$ . Le second terme est réel puisque ces deux températures sont des nombres complexes conjugués. La méthode  $3\omega$  donne un accès direct à la moyenne de la température  $2\omega$  comme indiqué au chapitre précédent. La conductance d'échange avec l'échantillon se déduit par inversion.

Le problème de la méthode  $3\omega$  à faible courant est illustré par la figure II.9. Plus le chauffage est faible, plus la sensibilité, représentée par la pente des courbes, se dégrade. En effet, si un courant de



**FIG. II.9** – Sensibilité de la sonde pour un courant d’entrée alternatif, représentée par le calcul de la température moyenne en fonction de la conductance équivalente.

l’ordre de 30 mA par exemple est injecté, les tensions détectées ne sont que de quelques centaines de microvolts au plus, et l’écart entre la tension hors contact et en contact avec l’échantillon n’est au plus que de quelques dizaines de microvolts. Le bruit est de l’ordre de  $2 \mu V$  sur la détection synchrone. La détection de l’influence de l’échantillon sur la conductance d’échange est donc difficile, car le rapport signal à bruit est mauvais. Il apparaît préférable de chauffer davantage la sonde pour améliorer ce rapport. Ceci permet de gagner sur deux aspects : d’une part, les écarts de températures entre positions en contact et hors contact sont plus grands. D’autre part, la température minimale détectable diminue. Rappelons que la troisième harmonique de la tension de pointe s’écrit  $V_{3\omega} = R_0 I_0 \alpha \theta_{2\omega} / 2$ . La température minimale détectable est

$$\Delta\theta_{min} = \frac{2V_{3\omega}^{bruit}}{R_0 \alpha} \frac{1}{I_0} \quad (\text{II.27})$$

Celle-ci est inversement proportionnelle au courant d’entrée. Le niveau de bruit  $V_{3\omega}^{bruit} = 2 \mu V$  implique pour une amplitude de courant  $I_0 \sim 30 \text{ mA}$  une sensibilité à la température  $\Delta\theta_{min} \simeq 3 \cdot 10^{-2} \text{ K}$ .

### Écarts de température de 100 K

Il a été montré au paragraphe précédent que certains paramètres de la sonde pouvaient varier en fonction de la température. Ces variations vont maintenant être prises en compte.

L’analyse de la figure II.7 montre que les harmoniques prépondérantes sont les harmoniques impaires. Le signal de température à  $2\omega$ , qui reste faible en général, sera négligé. Considérons les températures aux harmoniques  $DC$ ,  $2\omega$  et  $4\omega$ . Un système de 5 équations couplées est obtenu. Comme les fréquences négatives sont conjuguées des fréquences positives correspondantes, seules les équations pour ces dernières sont rédigées. En notant désormais  $H = ph/\lambda S$ , le système suivant

apparaît :

$$\left\{ \begin{array}{l} \theta''_{DC}(x) - \theta_{DC} \left[ H(1 - \alpha_\lambda \theta_{DC}) - \frac{\alpha J}{2} \right] \\ \quad = -\frac{J}{2} [1 + \alpha \operatorname{Re}(\theta_{2\omega})] - 2H\alpha_\lambda (|\theta_{2\omega}|^2 + |\theta_{4\omega}|^2) \\ \\ \theta''_{2\omega}(x) - \theta_{2\omega} \left[ H(1 - 2\alpha_\lambda \theta_{DC}) - \alpha \frac{J}{2} + \frac{2i\omega}{a} (1 + \alpha_a \theta_{DC}) \right] \\ \quad = -\frac{J}{4} (1 + \alpha \theta_{DC}) - \alpha \frac{J}{4} \theta_{4\omega} + \left( \frac{2i\omega}{a} \alpha_a - 2H\alpha_\lambda \right) \theta_{4\omega} \theta_{-2\omega} \\ \\ \theta''_{4\omega}(x) - \theta_{4\omega} \left[ H(1 - 2\alpha_\lambda \theta_{DC}) - \alpha \frac{J}{2} + \frac{4i\omega}{a} (1 + \alpha_a \theta_{DC}) \right] \\ \quad = -\alpha \frac{J}{4} \theta_{2\omega} + \left( \frac{2i\omega}{a} \alpha_a - H\alpha_\lambda \right) \theta_{2\omega}^2 \end{array} \right. \quad (\text{II.28})$$

De nombreux termes quadratiques apparaissent. Dans un premier temps, le système d'équations sans les termes quadratiques est résolu. Ensuite, l'approximation de moyennage présentée précédemment sera appliquée à ces équations, ce qui permettra de résoudre le système avec les termes quadratiques approchés. Sans les termes quadratiques, le système devient :

$$\left\{ \begin{array}{l} \theta''_{DC}(x) - \theta_{DC} \left( H - \frac{\alpha J}{2} \right) = -\frac{J}{2} [1 + \alpha \operatorname{Re}(\theta_{2\omega})] \\ \\ \theta''_{2\omega}(x) - \theta_{2\omega} \left( H - \alpha \frac{J}{2} + \frac{2i\omega}{a} \right) = -\frac{J}{4} (1 + \alpha \theta_{DC}) - \alpha \frac{J}{4} \theta_{4\omega} \\ \\ \theta''_{4\omega}(x) - \theta_{4\omega} \left( H - \alpha \frac{J}{2} + \frac{4i\omega}{a} \right) = -\alpha \frac{J}{4} \theta_{2\omega} \end{array} \right. \quad (\text{II.29})$$

Ce système peut être résolu formellement, mais il est plus aisé de le résoudre numériquement. Les valeurs des températures moyennes obtenues sont utilisées pour linéariser les termes quadratiques de (II.29). De la sorte, une erreur sur tous les termes quadratiques est introduite, mais ces termes sont au moins traités partiellement. La température est surévaluée près du contact avec le puits thermique en argent et sous-évaluée dans la partie chaude. Sur le schéma II.10, la courbe rouge représente le profil de température attendu et la courbe bleue représente l'approximation. La température moyenne de la sonde n'est pas trop modifiée après moyennage sur la longueur de sonde, mais la pente de la courbe près du centre de la sonde est un peu modifiée. Une erreur sur la détermination de la conductance  $G_q$  est commise parce que la pente de la température est légèrement différente près du centre de la sonde.

Le système à résoudre après obtention des valeurs moyennes est le suivant :

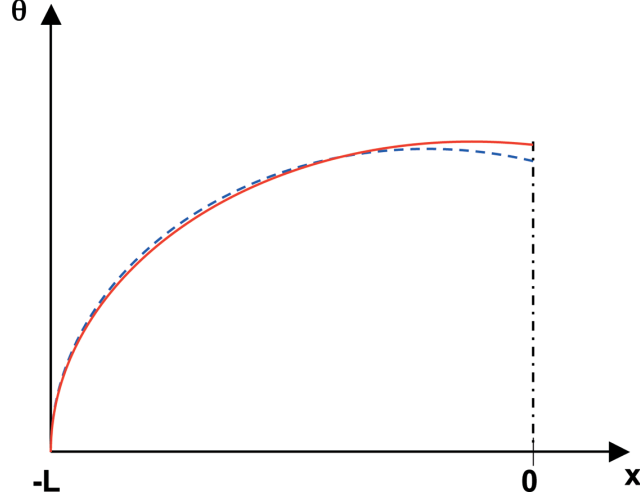


FIG. II.10 – Schéma du profil de température dans la sonde. La courbe rouge présente le profil attendu et la courbe bleue représente le profil calculé dans l'approximation de moyennage des termes quadratiques.

$$\left\{ \begin{array}{l}
 \theta''_{DC}(x) - \theta_{DC} \left[ H \left( 1 - \alpha_\lambda \beta_{DC} \bar{\theta}_{DC} \right) - \frac{\alpha J}{2} \right] \\
 \quad = -\frac{J}{2} [1 + \alpha Re(\theta_{2\omega})] \\
 \quad \quad - 2H\alpha_\lambda \left( \beta_{2\omega/2\omega} \bar{\theta}_{2\omega}^* \theta_{2\omega} + \beta_{4\omega/4\omega} \bar{\theta}_{4\omega}^* \theta_{4\omega} \right) \\
 \\
 \theta''_{2\omega}(x) - \theta_{2\omega} \left[ H \left( 1 - 2\alpha_\lambda \beta_{2\omega/DC} \bar{\theta}_{DC} \right) \right. \\
 \quad \quad \left. - \alpha \frac{J}{2} + \frac{2i\omega}{a} (1 + \alpha_a \beta_{2\omega/DC} \bar{\theta}_{DC}) \right] \\
 \quad = -\frac{J}{4} (1 + \alpha \theta_{DC}) - \alpha \frac{J}{4} \theta_{4\omega} \\
 \quad \quad + \left( \frac{2i\omega}{a} \alpha_a - 2H\alpha_\lambda \right) \beta_{4\omega/-2\omega} \bar{\theta}_{4\omega} \theta_{-2\omega} \\
 \\
 \theta''_{4\omega}(x) - \theta_{4\omega} \left[ H \left( 1 - 2\alpha_\lambda 4\omega \beta_{4\omega/DC} \bar{\theta}_{DC} \right) \right. \\
 \quad \quad \left. - \alpha \frac{J}{2} + \frac{4i\omega}{a} (1 + \alpha_a \beta_{4\omega/DC} \bar{\theta}_{DC}) \right] \\
 \quad = -\alpha \frac{J}{4} \theta_{2\omega} + \left( \frac{2i\omega}{a} \alpha_a - H\alpha_\lambda \right) \beta_{2\omega} \bar{\theta}_{2\omega} \theta_{2\omega}
 \end{array} \right. \quad (II.30)$$

où les coefficients  $\beta$  sont définis par  $\beta_{X/Y} \bar{\theta}_X \bar{\theta}_Y L = \int_0^L \theta_X(x) \theta_Y(x) dx$ . Si  $X$  et  $Y$  sont identiques, on note simplement  $\beta_X$ .

Finalement, pour une valeur de la conductance équivalente, quatre valeurs de températures peuvent être déduites à partir des différents modèles :

- le modèle initial de Stéphane Lefèvre (Lefèvre, 2005a)
- le modèle qui prend en compte la variation de la résistivité, qui comporte des signaux aux harmoniques  $\omega$  et  $3\omega$  (Chapuis, 2006b)

- le modèle qui prend en compte le développement multifréquentiel, dû à la variation de la résistivité (Grossel, 2007)
- le modèle qui prend en compte le développement multifréquentiel et l'approximation des couplages dûs à la variation en température des paramètres de sonde.

La comparaison des ces modèles nous montre que, premièrement, il est nécessaire de prendre en compte le couplage résistif (Chapuis, 2006b). Deuxièmement, le développement multifréquentiel (Grossel, 2007; Lefèvre, 2007) n'influence pas réellement la valeur de la température  $2\omega$ . Mais il fait apparaître une température à  $4\omega$ , qui perturbe notre mesure de tension à l'harmonique  $3\omega$ . Il est en fait nécessaire de prendre en compte la température  $4\omega$  pour le traitement de la mesure. Troisièmement, le chauffage de la sonde, lorsque la puissance Joule dissipée augmente, entraîne une variation de la conductivité thermique et de la diffusivité thermique qui peut être traitée à l'aide d'une approximation dans une certaine gamme de puissance. La variation de ces paramètres implique la variation de la température. Elle ne peut donc pas être négligée.

## II.5 Un biais de mesure possible

L'objectif de ce paragraphe est de montrer l'influence du positionnement de la sonde sur la mesure de température. En effet, à notre connaissance, il a toujours été considéré que la sonde était positionnée en contact avec l'échantillon en son milieu, ce qui n'est en pratique pas toujours le cas. Les pointes ne sont jamais parfaites, et peuvent aussi être abîmées. C'est pourquoi une étude de sensibilité à la zone de contact s'impose. Les calculs de cette section sont basés sur l'approximation présentée dans l'Appendice 1. La pointe est donc chauffée faiblement en régime DC, et on néglige les pertes thermiques  $h$ . Ici,  $m = 0$  et le profil est parabolique loin du contact. Cette analyse permet de comprendre qualitativement le régime  $3\omega$  aux faibles fréquences, lorsque le temps de diffusion est inférieur à la période du courant injecté dans la sonde.

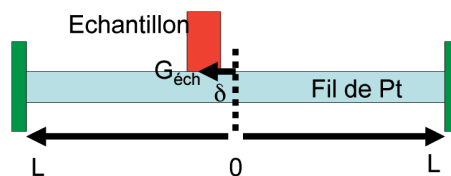


FIG. II.11 – Le contact a lieu en un point décalé de l'axe du fil, ici en  $x = -\delta$ .

Supposons que le contact entre la sonde et l'échantillon soit décalé d'une distance  $\delta$ , de telle sorte que ce contact ait lieu en  $x = -\delta$ . La symétrie par rapport au milieu de la sonde est donc brisée. Le problème doit être traité sur toute la longueur de la sonde. Le flux "pompe" par l'échantillon n'est plus le même à gauche et à droite. Dans la partie droite, la solution s'écrit :

$$\theta_d(x) = \frac{-J}{2}x^2 + A_dx + B_d \quad (\text{II.31})$$

$$\theta_d(L) = 0 \quad (\text{II.32})$$

$$\lambda S \frac{d\theta_d}{dx}(-\delta) = s G_S \theta_d(-\delta) \quad (\text{II.33})$$

et dans la partie gauche :



$$\theta_g(x) = \frac{-J}{2}x^2 + A_gx + B_g \quad (\text{II.34})$$

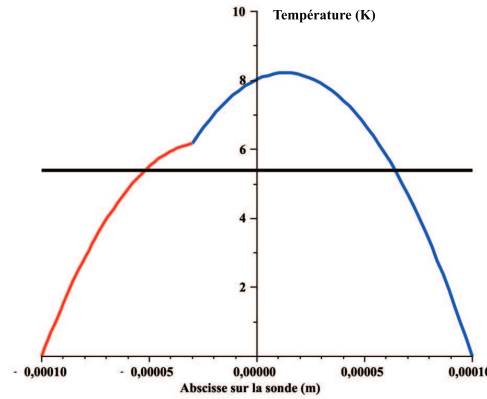
$$\theta_g(-L) = 0 \quad (\text{II.35})$$

$$-\lambda S \frac{d\theta_g}{dx}(-\delta) = -t G_{E_{qu}} \theta_d(-\delta) \quad (\text{II.36})$$

avec  $s + t = 1$  du fait de la conservation de l'énergie. Le calcul aboutit à :

$$s = -\frac{1 - \delta^3 G_{E_{qu}} - \delta^2 G_{E_{qu}} L + L^3 G_{E_{qu}} + 4L\lambda S\delta + \delta G_{E_{qu}} L^2}{2(G_{E_{qu}} L(\delta^2 - L^2))} \quad (\text{II.37})$$

Finalement, un profil de température non-symétrique est obtenu, avec une élévation de température supérieure dans une des moitiés de la sonde.



**FIG. II.12** – *Ecart de température dans la sonde par rapport à l'ambiante. La sonde est en contact avec un échantillon, mais le positionnement n'est pas idéal. Le contact a lieu en  $x = -\delta$  (ici  $\delta = 30 \mu\text{m}$ ).*

Il s'agit maintenant de déterminer si le point de contact influence fortement ou non le flux thermique de la pointe vers l'échantillon. Pour cela, l'échauffement de la sonde est tracé en fonction de la distance  $\delta$  sur la figure II.13. Cette courbe indique que l'échauffement moyen semble varier relativement peu en fonction de  $\delta$ . Notamment, la température moyenne de la sonde augmente lorsque le positionnement du point de contact n'est pas idéal. Cet effet est renforcé si la conductance d'échange est grande, donc notamment lorsque les échantillons sont très conducteurs thermiquement.

La température moyenne de la sonde est le paramètre mesuré. Or, si celle-ci semble n'être que peu affectée par un déplacement du point de contact sonde-échantillon, rien n'indique que le flux thermique perdu par la sonde dans l'échantillon ne soit pas plus fortement influencé par l'augmentation de  $\delta$ . En effet, le profil de température est largement modifié comme le montre la figure II.12. Le flux normalisé par la valeur prise pour  $\delta = 0$  est représenté sur la figure II.15. Le flux est modifié pour toutes les conductances d'échanges. Lorsque la conductance diminue, le flux thermique s'écarte de sa valeur idéale. Le comportement du flux en fonction de la conductance est donc inverse de celui de la température moyenne. Pour un écart important  $\delta = 30 \mu\text{m}$ , la diminution est supérieure à 10% dans le cas d'une conductance inférieure à  $3 \cdot 10^{-7} \text{ WK}^{-1}$ . La modification du flux existe donc, même si elle reste faible.

Pour finir, la figure II.15 indique l'échauffement de la pointe en fonction de la conductance d'échange pour différentes valeurs de  $\delta$ . Cette courbe permet d'évaluer l'erreur commise lorsque le

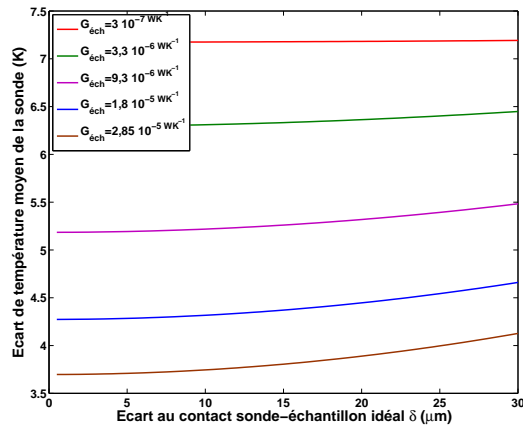


FIG. II.13 – Température moyenne de la sonde en fonction de l'écart au contact idéal. La courbe est tracée pour quelques valeurs de la conductance d'échange.

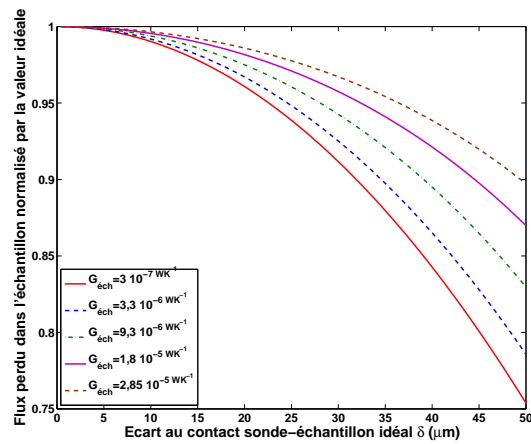
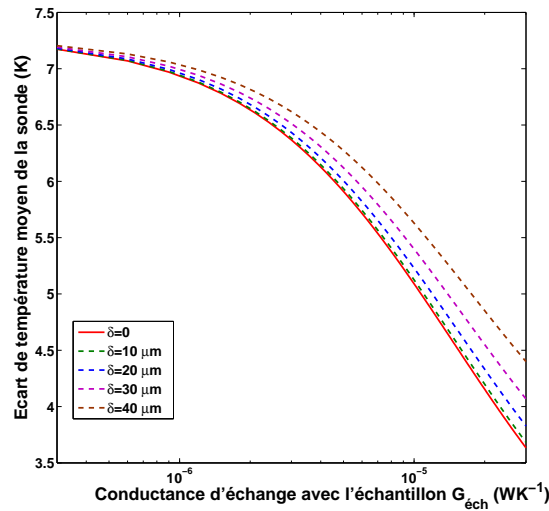


FIG. II.14 – Flux perdu par la sonde dans l'échantillon en fonction de l'écart au contact idéal, pour différentes valeurs de la conductance d'échange

contact est supposé idéal alors qu'il ne l'est pas. Pour une mesure de l'échauffement moyen de la sonde, la plage de valeurs de conductances d'échange possibles peut être observée. L'erreur absolue est beaucoup plus grande pour les grandes valeurs de la conductance d'échange.

Nous déduisons des courbes précédentes que, pour le régime DC, la microscopie thermique à sonde Wollaston semble assez robuste et peu sensible au fait que le contact ne soit pas centré au milieu du filament de platine. Une mesure quantitative se devra cependant de prendre en compte une correction. La zone de contact peut être déduite en analysant la pointe au microscope électronique à balayage (MEB), ce qui permet ensuite de déterminer la valeur de la conductance d'échange avec une meilleure précision.



**FIG. II.15** – *Echauffement moyen de la pointe en fonction de la conductance d'échange, pour quelques valeurs de  $\delta$ . La courbe est semi-logarithmique.*

## II.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une modélisation de la pointe du microscope à sonde thermique. Nous avons montré comment il est possible de décrire le contact avec l'échantillon par l'intermédiaire d'une conductance thermique. Celle-ci représente la perte de flux thermique de la sonde en son milieu.

L'intérêt du chapitre réside dans l'étude systématique des paramètres du modèle de température de sonde. Nous avons montré l'utilité de chauffer plus la sonde afin d'augmenter la sensibilité de l'instrument. Dans ce cas, un certain nombre de couplages thermiques apparaissent, qui complexifient le modèle de température. Nous avons montré qu'il est nécessaire de prendre en compte les harmoniques de la température, et nous avons montré comment il est possible de traiter les couplages dans une certaine gamme de puissance, lorsque les effets non-linéaires ne sont pas trop marqués.

Parallèlement, nous avons montré comment un mauvais positionnement de la sonde peut être responsable d'une erreur sur la détermination de la conductance thermique d'échange avec l'échantillon. Ces constatations démontrent que le microscope à sonde thermique Wollaston est un instrument moins simple qu'il n'y paraît au premier abord. Nous allons l'utiliser dans le chapitre suivant pour étudier le transfert thermique dans l'air.

## II.7 Appendice 1 : Profil de température dans la sonde en négligeant les pertes thermiques

Dans ce paragraphe, nous rappelons l'allure du profil de température dans la sonde en régime DC. En régime alternatif à basse fréquence, le profil de température est assez proche du profil DC. Les pertes thermiques vers le gaz sont négligées, et la sonde est supposée être chauffée faiblement.

### II.7.1 Sonde hors contact

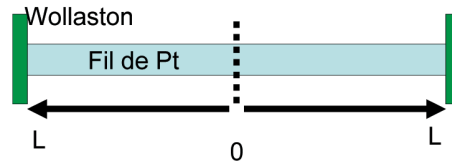


FIG. II.16 – Schématisation du fil de platine rhodié dans sa partie dénudée entre les puits thermiques que sont les fils de Wollaston.

La figure II.16 montre le principe du calcul : une ailette de platine rhodié est située entre deux puits thermiques. En régime stationnaire, l'équation d'ailette donne :

$$\frac{dT}{dx^2}(x) - \frac{ph(x)}{\lambda S} [T(x, t) - T_{amb}] + \frac{\rho I_0^2}{\lambda S^2} = 0 \quad (\text{II.38})$$

### Sonde hors contact alimentée par un courant DC faible

L'ailette est alimentée par un courant constant  $I_0$ . Dans cette section, pour plus de simplicité, les pertes thermiques latérales sont négligées dans un premier temps. Ceci conduit à un profil de température parabolique :

$$\theta(x) = \frac{-J}{2}x^2 + Ax + B \quad (\text{II.39})$$

où  $A, B$  sont des constantes à déterminer, et  $J = \frac{\rho I_0^2}{\lambda S^2}$ . Lorsque la sonde est hors contact, les conditions aux limites sont  $\theta(L) = \theta(-L) = 0$ , d'où :

$$\theta(x) = \frac{J}{2}(L^2 - x^2) \quad (\text{II.40})$$

Le profil de température est parabolique, avec un maximum au centre de la sonde.

### II.7.2 Sonde en contact alimentée par un courant DC faible

La sonde est supposée maintenant en contact avec un échantillon. Celui-ci est décrit par une conductance d'échange  $G_{Equ}$ .

La symétrie du problème peut être utilisée en ne considérant plus que la moitié du fil de platine rhodié.

L'équation de la chaleur reste identique, donc le profil est toujours parabolique dans la demi-sonde :

$$\theta(x) = \frac{-J}{2}x^2 + Ax + B \quad (\text{II.41})$$

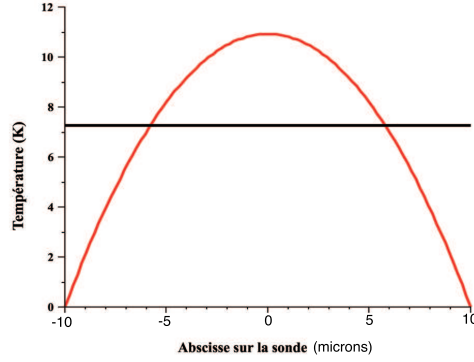


FIG. II.17 – Ecart de température dans la sonde par rapport à l'ambiante. La sonde est supposée dans le vide.

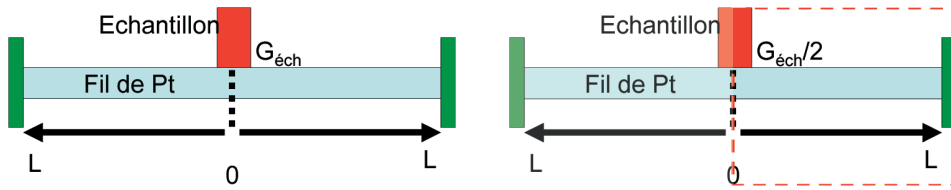


FIG. II.18 – Schématisation du fil de platine rhodié. Le contact avec l'échantillon a lieu en son milieu, et est modélisé par une conductance d'échange  $G_{Equ}$ . Le calcul peut être simplifié en ne considérant plus que la moitié du fil.

Néanmoins, les conditions aux limites sont changées. D'une part, il demeure la condition suivante :

$$\theta(-L) = \theta(L) = 0 \quad (\text{II.42})$$

mais d'autre part :

$$\begin{aligned} \phi(0) &= \frac{G_{Equ}}{2} \theta(0) \\ &= \lambda S \frac{dT}{dx}(0) \end{aligned} \quad (\text{II.43})$$

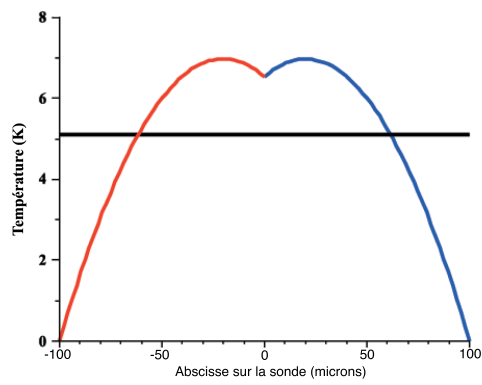
Notant  $G_p = \frac{\lambda S}{2L}$  et  $r = \frac{G_{Equ}}{G_p}$ , l'expression de la température devient :

$$\theta(x) = \frac{J}{2} \left( -x^2 + \frac{r}{1+r} L|x| + \frac{L^2}{1+r} \right) \quad (\text{II.44})$$

qui, pour la comparaison avec le cas précédent, peut aussi se mettre sous la forme :

$$\theta(x) = \frac{J}{2} \left[ (L^2 - x^2) + \frac{r}{1+r} L (|x| - L) \right] \quad (\text{II.45})$$

Cette expression comporte la fonction initiale corrigée par une fonction négative qui atteint son maximum en valeur absolue en  $x = 0$ .



**FIG. II.19** – *Ecart de température dans la sonde par rapport à l'ambiante. La sonde est en contact avec un échantillon en son milieu.*



## Chapitre III

# Etude expérimentale des transferts thermiques conductifs dans l'air en régime micro et nanométrique



## III.1 Introduction

Nous allons étudier les transferts de chaleur dans l'air dans des géométries micrométrique ou nanométrique. Les transferts thermiques dans l'air sont habituellement décrits par des régimes de convection ou de diffusion thermique. La convection impose des distances caractéristiques assez grandes, afin que les forces d'Archimède puissent vaincre la viscosité. Le critère de Rayleigh implique des distances caractéristiques supérieures à 10 microns. La conduction par diffusion thermique existe lorsque les tailles du système sont grandes par rapport au libre parcours moyen des porteurs d'énergie du milieu, qui sont ici les molécules chauffées de l'air. Le libre parcours moyen des molécules dans l'air est de l'ordre de 60 nanomètres : il est donc nécessaire d'étudier en détail la conduction thermique partiellement diffusive et partiellement balistique dans les systèmes nanométriques. La conduction thermique balistique est aujourd'hui assez bien connue à faible pression, lorsque la densité de molécules est très faible, dans le cadre des applications spatiales ou pour les systèmes à vide. Le vrai régime à pression ambiante pour un grand nombre de systèmes sera plutôt intermédiaire, ou quasi-balistique.

Dans ce chapitre, nous montrerons des résultats expérimentaux de microscopie thermique à basse pression que nous comparerons aux travaux préexistants. Ceci nous permettra d'observer que le transfert thermique pointe-échantillon a lieu majoritairement à travers l'air. Nous étudierons l'échange thermique de la sonde dans l'air en fonction de la pression. Finalement, nous montrerons l'évolution de la température de sonde en fonction de la distance à l'échantillon.

## III.2 Microscopie thermique à sonde locale sous vide

### III.2.1 Montage expérimental

#### Problématique pour la microscopie à force atomique

Nous avons placé le microscope à force atomique dans un système à vide, afin de mesurer l'évolution de la température de pointe en fonction de la pression. Nous avons commencé par concevoir un premier dispositif d'essai. En effet, le microscope *Veeco Explorer* n'était pas conçu pour fonctionner sous vide. Un certain nombre de problèmes avaient été envisagés :

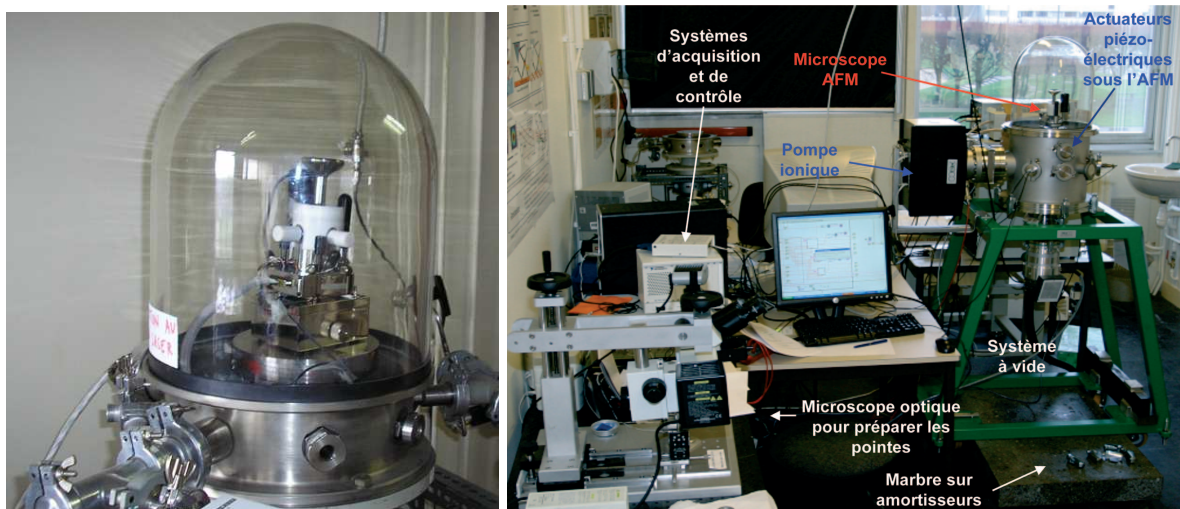
- Le comportement du cube piézoélectrique dans le vide n'était pas connu. Le dégazage des molécules d'air emprisonnées dans la structure est le principal danger mis en avant par les fabricants d'actuateurs piézoélectriques sous vide.
- L'échauffement des composants électriques était probable, dans la mesure où ils ne seraient plus refroidis par l'air environnant.
- La table anti-vibration sur laquelle repose le microscope à force atomique n'était pas utilisable pour les expériences sous vide pour cause d'encombrement. Les transmissions de vibrations par le sol semblaient donc possibles.
- Le microscope n'est pas réglable, pour la partie manuelle, lorsqu'il est sous vide. Ceci peut poser

problème si l'alignement du faisceau laser qui illumine la photodiode est dérégulé au cours de la mise sous vide.

- Les pompes à vide sont mécaniques. Les tuyaux reliés à l'enceinte peuvent transmettre les vibrations.

### Solution envisagée

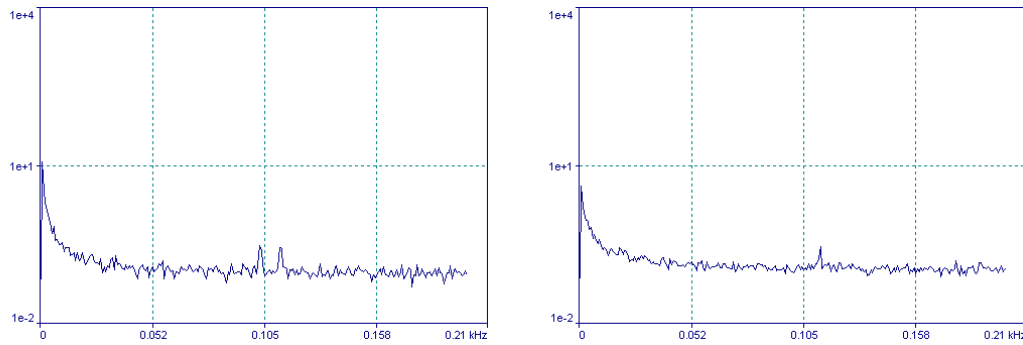
Une enceinte à vide préalablement existante, en métal a été utilisé comme démonstrateur. Nous avons instrumenté des connexions pour les câbles électriques. La figure III.1 montre l'utilisation d'une cloche transparente qui permet le contrôle visuel de l'allumage de la diode laser. Nous avons



**FIG. III.1** – (a) A gauche, démonstrateur de système à vide primaire, monté sur un marbre reposant sur des amortisseurs en caoutchouc. (b) A droite, système à vide monté également sur marbre et amortisseurs, permettant aisément l'utilisation de vide secondaire en l'absence de vibrations.

utilisé un marbre de grande surface de base placé sur des amortisseurs en caoutchouc pour tenter de diminuer la transmission des vibrations vers l'instrument (figure III.1). L'observation du spectre du signal de photodiode sur la figure III.2 révèle que ce dispositif semble suffisant pour éviter la transmission des vibrations par le sol. Aucun pic n'est présent dans le spectre. Le système à vide sommaire permet d'atteindre des niveaux de vide primaire, après pompage de quelques dizaines de minutes ( $10^{-2}$  mbar en plus d'une demi-heure). Le tube reliant la pompe primaire à l'enceinte a été vissé dans le sol pour amortir les vibrations, et un tuyau flexible mou a été utilisé pour la jonction avec l'enceinte. Le microscope n'a été utilisé que lorsque la pompe primaire était arrêtée. En conséquence, certaines expériences ont été réalisées avec célérité pour éviter les remontées de pression.

Nous n'avons pas observé de modification du comportement de l'actuateur piézoélectrique sous vide primaire. Par contre, nous avons remarqué une dérive du signal de photodiode sur des temps très longs. Lorsque l'expérience est courte, cette dérive est cependant négligeable. D'une manière général, tous les éléments électriques du microscope chauffent plus sous vide, car ils ne sont pas refroidis par l'air. Les fils électriques qui ne sont pas prévus pour l'utilisation sous vide doivent être remplacés plus souvent.



**FIG. III.2** – Spectre du signal de photodiode en  $\sqrt{n\text{Å}}/\text{Hz}$  en fonction de la fréquence en kHz pour le système sous vide. À gauche, la pointe est hors contact, et à droite, elle est en contact.

### Dispositif final (2007)

#### Nouveau système à vide

Dans un second temps, une nouvelle enceinte métallique a été fabriquée, afin d'atteindre des meilleurs niveaux de vide, et un système de pompes primaire sèche et secondaires turbomoléculaire amortie et ionique a été utilisé. Ces trois pompes ont été choisies afin d'empêcher tout dégazage d'huile dans l'enceinte et d'éviter la transmission de vibration. Notamment, la pompe ionique a été utilisée non pour obtenir un ultra-vide, mais pour pomper en l'absence de vibration (elle n'est pas "mécanique"). Le second système à vide a été également placée sur le marbre. Il est donc possible d'utiliser ce système avec les pompes à vide en fonctionnement.

#### Déplacement de l'échantillon

Dans le microscope "Explorer" de Veeco, les actuateurs piézoélectriques sont disposés dans la tête du microscope. Ceci implique que la pointe du microscope se déplace vers l'échantillon. En conséquence, le signal de diode varie au cours de l'approche. Afin de décorréliser complètement le signal de diode du signal thermique, nous avons alors conçu un système d'actuateur piézoélectrique à déplacement vertical, utilisé comme porte-échantillon. De la sorte, c'est l'échantillon qui est déplacé. Le signal de la diode laser ne varie que lorsqu'il y a contact entre l'échantillon et la pointe. Le déplacement de l'échantillon est connu avec précision grâce à une jauge capacitive présente sur l'actuateur. Le pas théorique possible est inférieur à 1 nm. Cependant, l'actuateur piézoélectrique *PiezoJena* spécialement conçu pour fonctionner sous vide n'est pas utilisable dans la gamme de pression [ $10^{-2}$  –  $10^{-5}$  bar].

L'expérience, qui nécessitait la mesure point par point, a été automatisée à l'aide du contrôleur LabView.

### III.2.2 Approche pointe-échantillon en régime micrométrique

#### Première étude avec le moteur du microscope

Le moteur du scanner de microscope AFM a été utilisé dans un premier temps pour observer le refroidissement de la pointe pendant son approche. Ceci permet une première étude qualitative. Cette démarche avait permis à Stéphane Lefèvre (Lefèvre, 2004b) de montrer que la sonde est capable de détecter l'échantillon lorsque la distance pointe-échantillon vaut  $150 \mu\text{m}$  à pression ambiante. La figure III.4 présente les résultats obtenus. On y représente la troisième harmonique

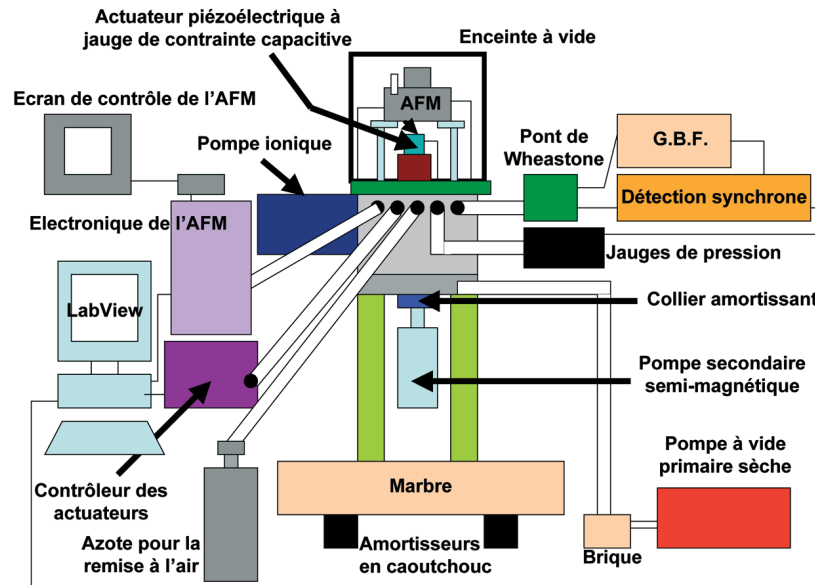
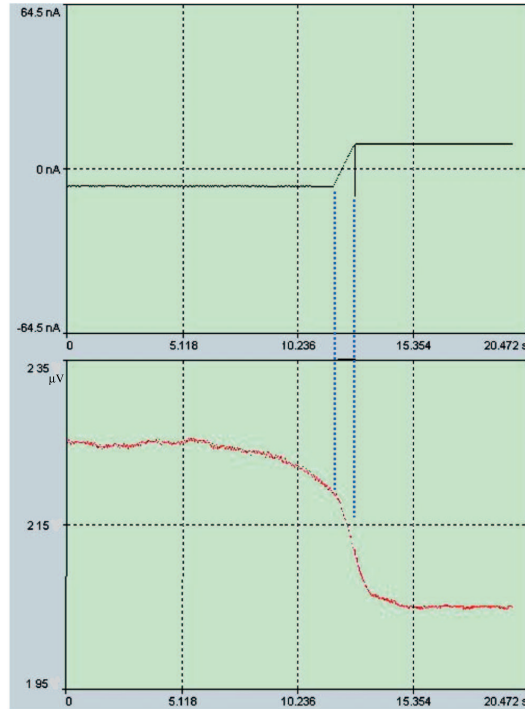


FIG. III.3 – Principe de l'expérience : l'échantillon est déplacé verticalement à l'aide d'un actuateur piézoélectrique sur lequel il repose dans une enceinte à vide.

de la tension en fonction du temps. Le moteur est en phase d'approche, à une vitesse de descente estimée de l'ordre de  $10 \mu\text{ms}^{-1}$  à  $20 \mu\text{ms}^{-1}$ . Cette courbe correspond à une mesure de la température de la sonde en fonction de la distance pointe-échantillon. Le niveau de bruit est assez élevé. Nous supposons notamment la présence de vibrations du cantilever dues à la descente par petits accoups.

**Approche dans l'air** Trois approches sont superposées sur la figure III.5. On constate en premier lieu en comparant les températures à  $t = 0$  que celles-ci dépendent de la pression lorsque les sondes sont éloignées de l'échantillon. Une sonde en air raréfié est en effet moins refroidie qu'une sonde à pression atmosphérique. Nous constatons également que la chute de température entre les situations "hors contact" et "en contact", matérialisée par les flèches bleues, diminue en fonction de la pression. En effet, l'échantillon absorbe du flux thermique issu de la sonde chaude et transféré par l'air. En régime raréfié, les porteurs de chaleur qui transfèrent l'énergie de la sonde vers l'échantillon sont moins nombreux : la sonde est moins refroidie. Les distances pendant lesquelles la sonde se refroidit dans l'air sont matérialisées par les flèches vertes. Il semble a priori difficile d'évaluer si le refroidissement de la pointe commence à des distances supérieures lorsque la pression diminue. Les flèches noires matérialisent la chute de température due au transfert de chaleur par l'air juste avant le contact.

**Effet du contact** La stabilisation de la température est progressive après contact mécanique. Un régime stable est obtenu au bout de quelques secondes, notamment pour les courbes à 1 bar et 0,01 bar. Ce retard est attribué au temps nécessaire pour qu'il y ait établissement de l'équilibre thermique dans l'échantillon. Au début, il est possible que l'extrémité de la pointe se déplace sous l'action de la force exercée par le cantilever en écrasant les constrictions interstitielles. Dans cette phase, la surface d'échange thermique et donc le flux évoluent.



**FIG. III.4** – Capture d'écran des données acquises par le logiciel SPMLab. Le signal de diode et la tension  $3\omega$  en  $\mu V$  sont donnés en fonction du temps en secondes. Le signal de diode montre l'instant du contact (premiers pointillés bleus), puis l'instant où la force exercée par la surface sur la pointe est égale à la consigne spécifiée (deuxièmes pointillés bleus). La fréquence est  $f = 300$  Hz, l'échantillon est une pastille d'oxyde d'yttrium ( $Y_2O_3$ ) et la tension aux bornes du pont de Wheatstone est  $U = 4$  V. L'instant de stabilisation du contact (force constante, deuxièmes pointillés bleus) n'est pas directement retranscrit dans le signal thermique. Cela est dû au moyennage du signal sur une demi-seconde par la détection synchrone.

### III.2.3 Effet de la pression sur la température de sonde et implications

La figure III.6 présente l'évolution de la tension  $3\omega$  en fonction de la pression pour deux situations. L'échantillon est composé d'oxyde d'yttrium, de conductivité thermique  $\lambda = 12 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ . La courbe tracée en violet correspond à la situation où la sonde est placée loin de la surface, à une distance de l'ordre de 2 mm. La courbe bleue correspond à un contact sonde-échantillon, avec une consigne de 10 nA. La différence de tension diminue lorsque la pression diminue. Les tensions ne sont plus influencées par la pression lorsque celle-ci est inférieure à 0,5 mbar. Pour ces pressions, la différence de tension est uniquement due au contact solide-solide. Celle-ci est *a priori* indépendante de la pression. En conséquence, à pression ambiante, la chute de tension associée au transfert thermique par les constriction du contact des solides est 3,3 fois inférieure à celle associée au transfert thermique par l'air. La première conclusion est donc qu'il semble qu'à pression ambiante la plus grande partie du flux thermique soit transférée par l'air.

La seconde observation est que la chute de tension ayant pour cause les pertes thermiques dans l'air est supérieure à celle qui est due au transfert de flux dans l'échantillon. A pression ambiante, elle est au moins deux fois supérieure. Il s'avère donc que les valeurs des paramètres du modèle d'ailette présenté au chapitre précédent sont extrêmement importantes afin d'éviter des erreurs. Une sous-évaluation des pertes dans le gaz peut notamment entraîner une surévaluation du flux transféré vers l'échantillon.

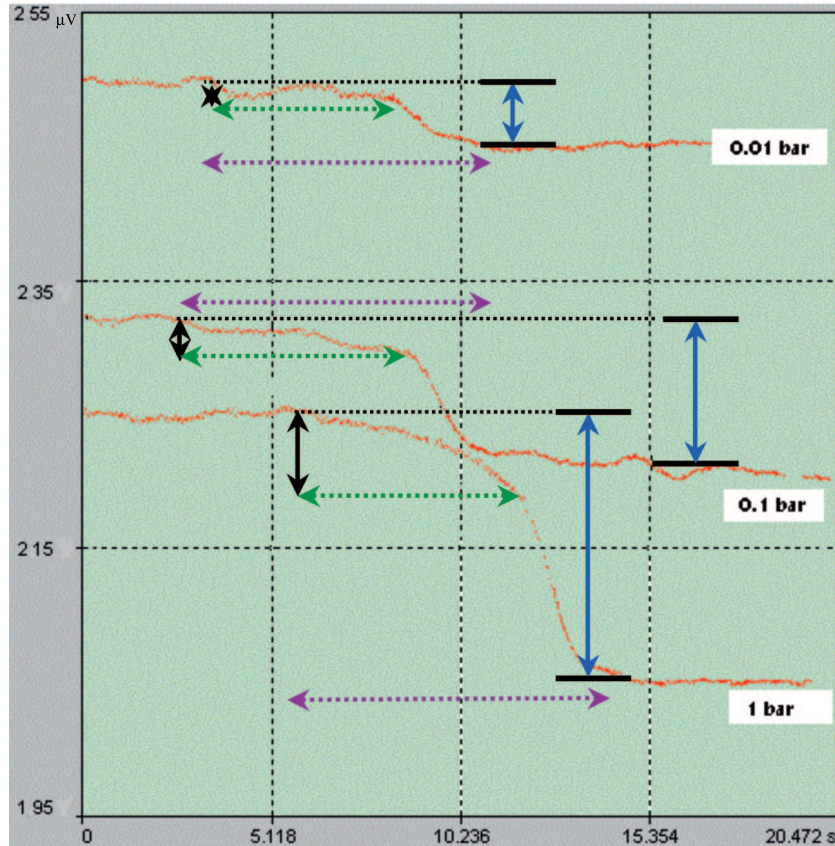


FIG. III.5 – Tension  $3\omega$  en  $\mu V$  en fonction du temps en  $s$ , pour 3 pressions différentes (vide primaire). Les flèches bleues représentent la chute de température entre la situation où la pointe n'interagit pas avec l'échantillon et celle où elle est en contact. Les flèches vertes représentent la durée où l'interaction thermique entre échantillon et sonde a lieu uniquement à travers l'air. Les flèches violettes représentent la durée entre les régimes thermiques stationnaires que sont l'absence d'interaction thermique d'une part et l'interaction constante lorsqu'il y a contact mécanique avec une force spécifiée entre sonde et échantillon d'autre part.

### III.3 Détermination expérimentale du coefficient de pertes thermiques dans l'air

Il faut donc déterminer précisément le coefficient de pertes thermiques dans l'air  $h$  de la sonde SThM Wollaston. A température et pression ambiantes, ce coefficient représente les pertes thermiques par conducto-convection (Taine, 2003). A plus basse pression, il va essentiellement représenter les pertes par conduction balistique entre la sonde et son environnement. Il est donc important de rétracter la sonde à une distance assez grande de l'échantillon, pour que l'interaction sonde-échantillon soit négligeable. L'ajustement du modèle de température de sonde dans le vide ( $P < 0,5$  mbar) permet de déterminer la situation où  $h \simeq 0$ . En effet, dans le vide, les pertes sont dues uniquement au rayonnement qui est faible comme nous allons le voir.

#### III.3.1 Pertes par rayonnement

Le filament a un diamètre de  $5 \mu m$ . Cette taille est comparable à la longueur d'onde caractéristique du rayonnement thermique  $\lambda \simeq 10 \mu m$  à température proche de l'ambiante, donc il n'est pas

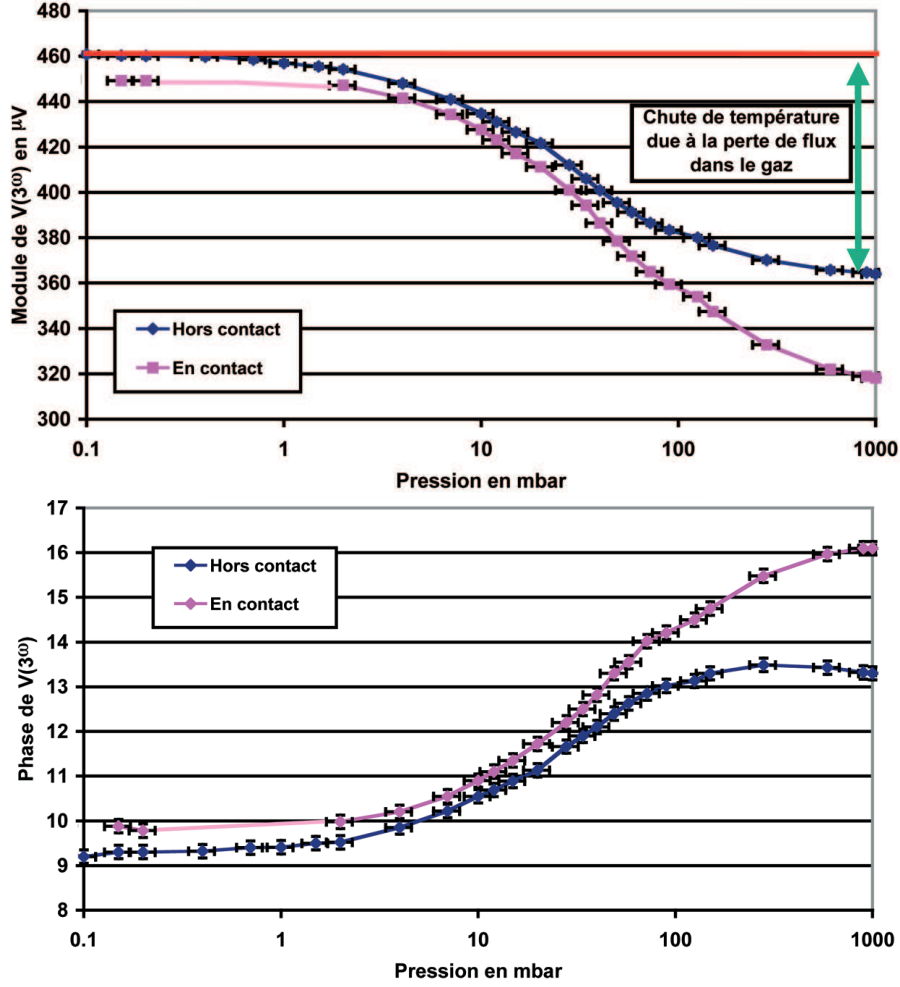


FIG. III.6 – Module et phase en degrés de la tension  $3\omega$  en fonction de la pression

possible de considérer le modèle d'émissivité due au rayonnement d'une surface. Ceci n'est en effet possible que si le diamètre est beaucoup plus grand que la longueur d'onde. Un modèle satisfaisant consisterait à prendre en compte la polarisabilité (électrique et magnétique, voir partie II de ce mémoire) du fil de platine rhodié assimilé à un cylindre et à calculer l'échange radiatif avec un cylindre concentrique de rayon beaucoup plus grand. Ce calcul peut être fait avec la théorie de Mie pour un cylindre. Cependant, comme le fil n'a un diamètre qu'une demi-fois inférieure à la longueur d'onde  $\lambda$ , nous pouvons estimer que son émissivité surfacique ne devrait pas être trop considérablement supérieure à l'émissivité surfacique habituelle. Nous prenons en compte les effets ondulatoires avec un facteur multiplicatif  $f_s$  qui vaut au maximum 20. L'émissivité classique d'une surface de platine vaut environ  $\epsilon_{Pt} \simeq 0,05$  à 300 K dans l'infrarouge. La valeur pour le rhodium est similaire. Le facteur de forme du fil est maximisé à 1. Une valeur maximum est déterminée :

$$h_{\text{ray max}} = \pi \sigma f_s \frac{\overline{T}_{\text{fil}}^4 - T_{\text{amb}}^4}{\overline{T}_{\text{fil}} - T_{\text{amb}}} \quad (\text{III.1})$$

Pour un corps noir macroscopique,  $h_0$  vaut environ  $6 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$  (Taine, 2003) si  $T_{\text{amb}} = 300 \text{ K}$  et  $T_{\text{fil}} \simeq 300 \text{ K}$ . On a donc dans notre cas

$$h_{\text{ray max}} \simeq \epsilon_{Pt} f_s h_0 \quad (\text{III.2})$$

$$\simeq 6 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1} \quad (\text{III.3})$$

### III.3.2 Pertes par convection naturelle

Les pertes par convection naturelle externe sont généralement représentées, pour une plaque plane horizontale chauffée à une température proche de l'ambiante et dont l'air chaud peut s'écouler vers le haut sous l'action des forces d'Archimède, par un coefficient macroscopique  $h_{cc} \simeq 4 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$  (Taine, 2003). La situation présente est radicalement différente, avec un filament de diamètre ( $5 \mu\text{m}$ ) inférieur à l'épaisseur de la couche limite de la plaque plane valant de l'ordre de  $30 \mu\text{m}$ .

En thermique, les coefficients de pertes dans le gaz sont déterminés à partir de corrélations liées au nombre de Nusselt Nu. Celui-ci s'écrit :

$$\text{Nu} = \frac{hd}{\lambda} \quad (\text{III.4})$$

où  $d$  est une distance caractéristique de l'objet qui échange du flux thermique avec son environnement et  $\lambda$  est la conductivité thermique du fluide. Ce nombre de Nusselt est exprimé en fonction du nombre de Rayleigh, qui compare le transfert de chaleur dû aux forces d'Archimède et la diffusion thermique. On définit le nombre de Rayleigh de la manière suivante :

$$\text{Ra} = \frac{g \beta \Delta T d^3}{a \nu} \quad (\text{III.5})$$

où  $g$  est la gravité,  $\beta$  le coefficient de dilatation à pression constante,  $\Delta T$  l'écart de température entre l'élément solide et son environnement,  $a$  la diffusivité thermique et  $\nu$  la viscosité cinématique. Si  $d$  est le diamètre du cylindre,  $\text{Ra}$  vaut dans notre cas  $1,2 \cdot 10^{-6}$ .

Deux types de corrélations ont retenu notre attention.

**Corrélation de Collis et Williams** Le modèle de Collis et Williams (Mahony, 1957; Morgan, 1975) est conçu spécialement pour les fils micrométriques utilisés en anémométrie. Il considère un nombre de Nusselt défini par :

$$\text{Nu} = 0,675 \text{ Ra}^{0,058} \quad (\text{III.6})$$

Dans ce modèle, la distance caractéristique à prendre en compte pour le calcul du nombre de Rayleigh est le diamètre  $D$  du cylindre. Pour  $\Delta T \simeq 50 \text{ K}$ , on trouve  $\text{Nu} \simeq 0,43$ . Ceci conduit à la valeur :

$$h_{\text{Collis}} \simeq 1530 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1} \quad (\text{III.7})$$

**Corrélation donnée par Petit** Dans l'ouvrage "Transferts thermiques" (Taine, 2003) une relation est donnée pour les cylindres. Elle considère deux tailles caractéristiques pour un cylindre, son diamètre  $D$  et sa hauteur  $L$  également. Le nombre de Nusselt est donné dans ce cas par :

$$\text{Nu} = 0,93 \left( \text{Ra}(D) \frac{D}{L} \right)^{0,05} \quad (\text{III.8})$$

pour les valeurs de  $\text{Ra}(D) \frac{D}{L}$  inférieures à 0,05. A pression ambiante,  $\text{Nu} \simeq 0,37$ . On peut alors déterminer que :

$$h_{\text{Petit}} \simeq 2820 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1} \quad (\text{III.9})$$

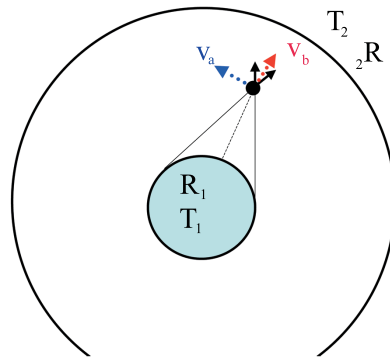


On constate que les valeurs de  $h_{Collis}$  et  $h_{Petit}$  sont assez différentes, puisque leur rapport vaut presque 2. Cependant elles sont du même ordre de grandeur. Une conclusion importante de ce paragraphe est que la convection refroidit la sonde beaucoup plus que le rayonnement.

Lorsque la pression diminue, le régime de convection naturelle externe décrit ici se transforme en un régime de convection naturelle où le flux est sensible aux parois de la cloche à vide et aux parois du microscope. Les pertes thermiques seront alors dues à un régime de convection naturelle interne (Taine, 2003).

### III.3.3 Pertes par conduction thermique dans l'air

Lorsque la pression diminue, le libre parcours moyen des molécules de l'air augmente. Ces deux grandeurs sont en effet inversement proportionnelles. Cette dépendance provient du fait que la densité est proportionnelle à la pression et que le libre parcours moyen varie de manière inverse à la densité : moins il y a de molécules dans le gaz, moins il y a de collisions entre elles. Ceci implique que la pression dans la chambre à vide diminue, la conduction thermique dans l'air passe progressivement d'un régime diffusif à un régime balistique, où les molécules ne s'entrechoquent plus. La chute de la densité des molécules a un impact sur les pertes thermiques de notre filament dans le gaz : il y a moins de porteurs d'énergie pour effectuer l'échange de chaleur. A la limite d'un vide parfait, le coefficient d'échange de chaleur avec l'air  $h_{air}$  est égal à 0. En diminuant la pression, on va donc passer par un premier régime où la convection est supprimée au bénéfice de la diffusion thermique, puis par un second régime où la conduction est balistique. Lees et Liu (Lees, 1962) ont proposé un modèle basé sur la résolution de l'équation de Boltzmann et qui fournit le flux thermique échangé entre deux cylindres concentriques. Ce n'est pas précisément la géométrie de l'expérience décrite dans ce chapitre, mais il est possible de comprendre la physique du transfert à l'aide de ce modèle.



**FIG. III.7** – Deux cylindres concentriques. Les molécules d'air ayant une vitesse de direction opposée au cylindre de plus faible rayon ( $v_b$ ) ont une distribution de température qui dépend fortement de la température  $T_1$ . Elles ont une vitesse dans le cône d'influence du cylindre 1.

Il consiste à résoudre l'équation de Boltzmann en considérant qu'il y a deux températures possibles en chaque point,  $T_1$  si la molécule est dans le cône d'influence du cylindre 1, ou  $T_2$  dans le cas contraire. La figure III.7 présente la configuration étudiée et le "cône d'influence" entre les deux flèches noires. Pour des écarts de température faibles par rapport à la température absolue (ici 300 K), on trouve le flux thermique  $\phi$  normalisé perdu par le cylindre de rayon  $R_1$  à travers le gaz :

$$\frac{\phi_F}{\phi} = 1 + \frac{1}{\frac{4}{15} \frac{R_1}{\Lambda_1} \ln\left(\frac{R_2}{R_1}\right)} \quad (\text{III.10})$$

où  $\phi_F$  est le flux de Fourier correspondant à la conduction diffuse.  $\Lambda_1$  réfère au libre parcours moyen évalué pour les conditions du cylindre 1. Il s'exprime sous la forme suivante :

$$\Lambda_1 = \frac{\mu_1}{2\rho_1} \frac{2\pi m}{k_B T_1} \quad (\text{III.11})$$

et il vaut 42 nm pour l'azote atomique. Ici,  $\mu$  est la viscosité dynamique,  $\rho$  la masse volumique,  $m$  est la masse de l'azote et  $k_B$  la constante de Boltzmann. On voit que  $\Lambda$  dépend de l'inverse de la densité  $\rho$ , proportionnelle à la pression. Notons l'apparition dans (III.11) du nombre de Knudsen  $\text{Kn} = \frac{\Lambda_1}{R_1}$ , rapport du libre parcours moyen à la distance caractéristique du système. Le nombre de Knudsen permet la prise en compte des effets de raréfaction des porteurs d'énergie lorsqu'il devient grand.

Le calcul précédent a été fait pour l'azote atomique. En réalité, le gaz majoritaire de l'atmosphère est du diazote, et le libre parcours moyen vaut 64 nm. En effet, un facteur  $\sqrt{2}$  s'introduit dans le calcul de  $\Lambda$  lorsqu'on considère un gaz diatomique. De plus, le facteur 4/15 de la relation III.10 doit être corrigé, et a été multiplié par 2 dans le cas d'un gaz diatomique par un certain nombre d'auteurs (Lees, 1962). On écrira en simplifiant l'équation (III.10) que

$$\phi = h_0 / (1 + \alpha P^{-1}) \quad (\text{III.12})$$

qui révèle qu'en régime balistique le flux est proportionnel à la pression.

Nous allons maintenant déterminer expérimentalement les pertes de flux latérales dans le gaz pour la sonde Wollaston en platine rhodié. Elles incluent les contributions des différents transferts thermiques dans l'air.

### III.3.4 Détermination expérimentale du coefficient de pertes thermiques

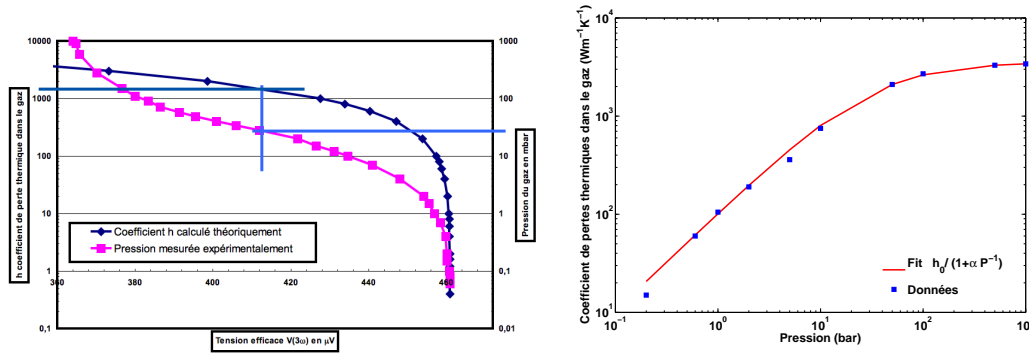
Pour déterminer les pertes de flux thermique dans le gaz, la pointe est éloignée au minimum de quelques millimètres de tout échantillon. Le modèle présenté au chapitre précédent est utilisé pour simuler la valeur de la température. On égale ensuite cette température à la valeur mesurée. La référence est donnée par le vide poussé, lorsque le coefficient de transfert  $h(P) \rightarrow 0$ . La figure (III.8) montre l'évolution du coefficient en fonction de la pression. Elle est analogue à celle obtenue par (Bomelburg, 1959) pour un fil d'anémométrie. Le même type de comportement a été obtenu par (Lee, 2007) pour une pointe AFM résistive en 2007. Un coefficient de perte thermique de l'ordre de  $3500 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  est obtenu à pression ambiante. Ceci est supérieur aux deux estimations données par (III.7) et (III.9), mais s'approche cependant de la seconde. La fiabilité de l'évaluation de  $h$  diminue lorsque la pression décroît du fait du bruit de mesure, mais la pente  $h \sim 1/P$  attendue aux pressions plus basses est bien retrouvée.

Les paramètres obtenus pour la courbe  $h(P) = h_0 / (1 + \alpha P^{-1})$  correspondant à III.12 sont :

$$h_0 = 3524 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1} \quad (\text{III.13})$$

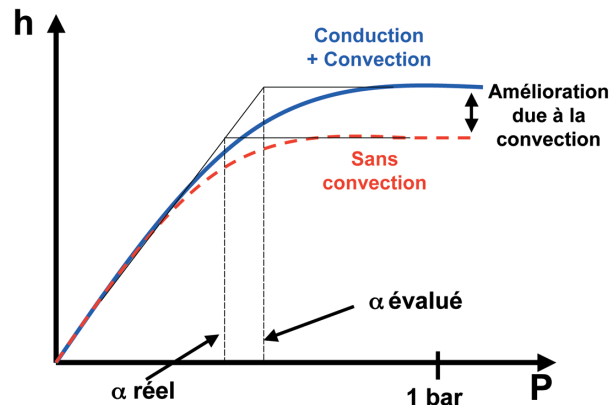
$$\alpha = 3390 \text{ Pa} \quad (\text{III.14})$$

Il est possible d'extraire un rayon moyen  $R_2$  autour de la sonde en comparant (III.14) et (III.10), en prenant en compte le facteur 8/15 pour un gaz diatomique. Un rayon  $R_2$  de l'ordre de 10 microns est obtenu. Celui-ci est nettement inférieur à la distance à laquelle se situe l'enceinte, de l'ordre



**FIG. III.8** – Détermination du coefficient  $h$  de pertes thermiques dans le gaz en fonction de la pression. (a) Sur la première figure, la pression est tracée en fonction de la tension  $3\omega$  expérimentale et la valeur de  $h$  en fonction de  $V_{3\omega}$  simulée. L'ajustement des paramètres du modèle permet de faire coïncider les courbes pour  $h \rightarrow 0$ . Ceci permet (traits bleus) de déterminer le coefficient  $h$  correspondant pour une pression donnée. (b) La seconde figure présente le coefficient de pertes thermiques dans le gaz  $h(P)$  en fonction de la pression. La comparaison avec une fonction du type  $h(P) = h_0/(1 + \alpha P^{-1})$ , où  $h_0$  et  $\alpha$  sont les paramètres obtenus par une méthode des moindres carrés, apparaît satisfaisante.

de 10 cm. Ceci est dû au phénomène de convection naturelle qui améliore l'efficacité du transfert thermique vers le gaz. La sonde est similaire à une jauge de Pirani (Jitschin, 2004), mais avec de la convection. En ne la prenant pas en compte ici, on décale le rayon obtenu comme le montre le schéma (III.9). Ce rayon dépend de la pression critique de changement de régime notée ici  $\alpha$ , et varie en sens inverse.



**FIG. III.9** – Schéma représentant la valeur du coefficient de pertes thermiques dans le gaz  $h$  en fonction de la pression. La valeur de la pression  $\alpha$  caractéristique du changement de régime est surévaluée lorsqu'on approche la courbe complète par une fonction en  $h(P) = h_0/(1 + \alpha/P)$  valable pour la conduction.

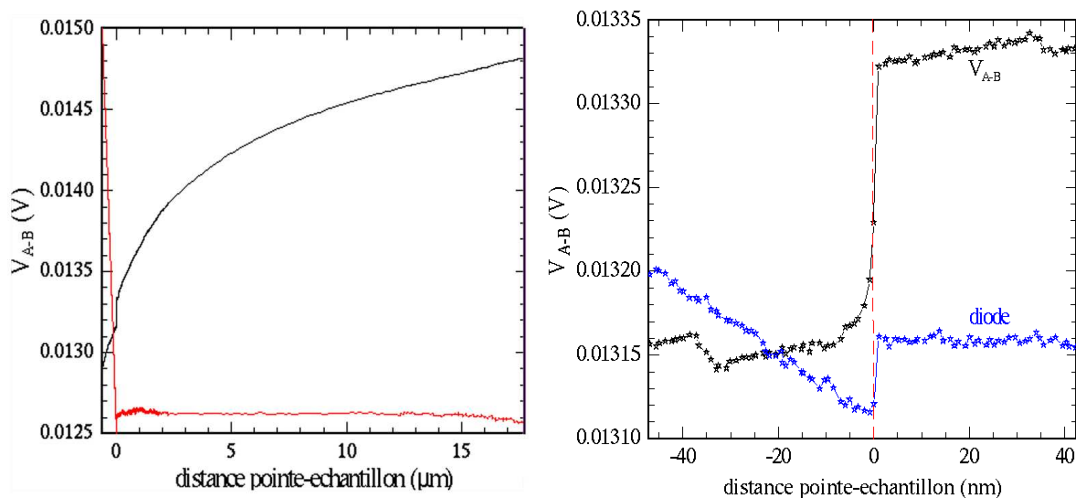
Nous avons obtenu dans ce paragraphe la valeur du coefficient  $h$  décrivant les pertes thermiques dans le gaz, appelé à pression ambiante *coefficient de convection*. De plus, une loi de dépendance en pression a été obtenue pour ce coefficient  $h$ . Nous allons maintenant pouvoir étudier le transfert de chaleur vers l'échantillon.

## III.4 Détermination de la conductance d'échange par l'air

### III.4.1 Courbe expérimentale

#### Régime DC

Pour déterminer le flux perdu par la sonde dans l'échantillon, nous avons procédé en approchant pas à pas l'échantillon vers la sonde fixe. Le pas vertical est variable et vaut jusqu'à 1 nm. Les pertes thermiques dans le gaz sont supposées constantes lorsque sonde et échantillon sont approchés. De la sorte, la variation de la température peut être attribuée à la présence de l'échantillon. Un



**FIG. III.10** – Tension de sonde au cours de l'approche de l'échantillon de niobium vers la sonde thermique en mode DC (courbe noire). Le signal de diode (courbe rouge à gauche et bleue à droite) superposé est stable jusqu'à ce qu'il y ait contact. (a) La zone qui semble être bruitée pour le signal de diode correspond en fait uniquement à l'acquisition d'un plus grand nombre de points près du contact. (b) Zoom sur les derniers nanomètres de l'approche

échantillon de niobium, dont la conductivité thermique  $\lambda = 59 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  est très supérieure à celle de l'air, est utilisé. Elle ne vaut cependant qu'une fois et demie celle du platine rhodié. Il est important de noter que les figures III.10 représentent les tensions en fonction du déplacement de l'actuateur piézoélectrique. Au cours de l'approche, la sonde se déplace également sous l'action des forces de Van Der Waals, et de forces électrostatiques si sonde et échantillon ne sont pas au même potentiel (Torricelli, 2005). Ces courbes ne sont pas corrigées par cet affaissement de la sonde Wollaston, qui est de plus responsable d'un décalage (saut) de l'ordre de 20 nm entre le dernier point hors contact et premier point en contact. La figure III.11 présente une courbe corrigée en distance à l'aide du signal de photodiode. En contact, il est possible de calibrer la variation du signal de photodiode en fonction de la distance verticale, qui varie uniquement à cause du déplacement de l'actuateur piézoélectrique. Ceci nous permet d'établir la figure III.11.

La figure III.11 montre que la tension diminue légèrement avant le contact, puis celui-ci est responsable d'une diminution brutale de la tension. Un zoom sur les derniers nanomètres de l'approche avant le saut permet de voir que le contact semble relativement franc et qu'on n'observe pas de zone de transition. La figure (III.12) présente la tension de sonde en fonction de la distance au contact mécanique avec l'échantillon. On remarque un changement de l'évolution de la tension lorsqu'on s'approche de la sonde à une distance de 1  $\mu\text{m}$ .

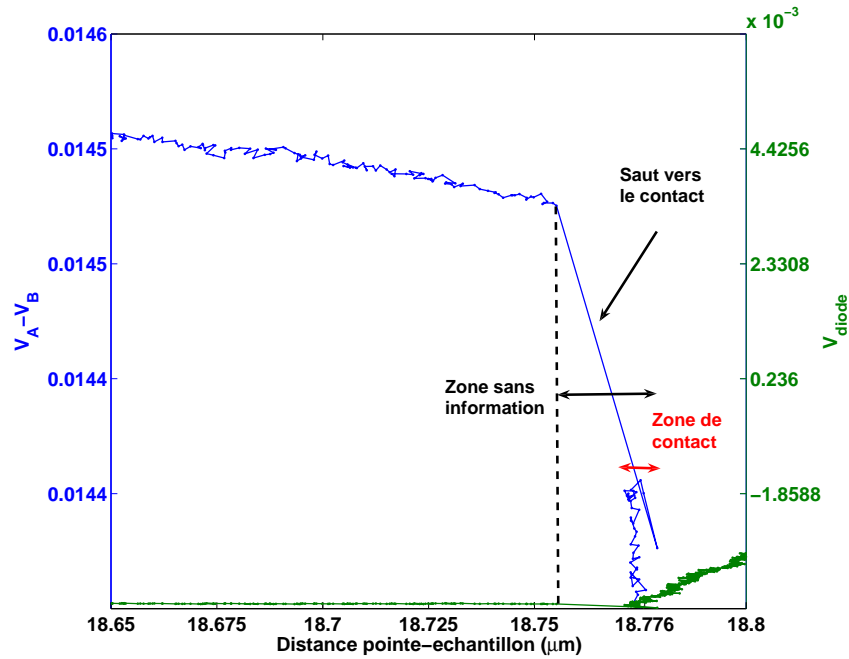


FIG. III.11 – Tension de sonde au cours de l'approche de l'échantillon de niobium vers la sonde thermique en mode DC. L'échelle de distance a été corrigée grâce au signal de photodiode. La référence de distance est arbitraire.

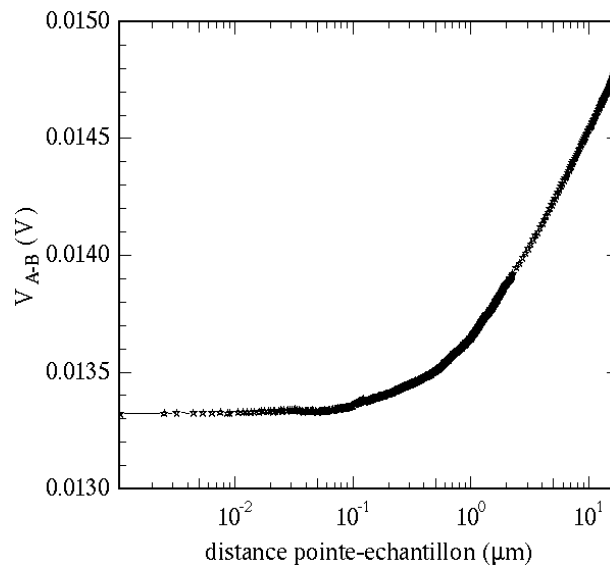


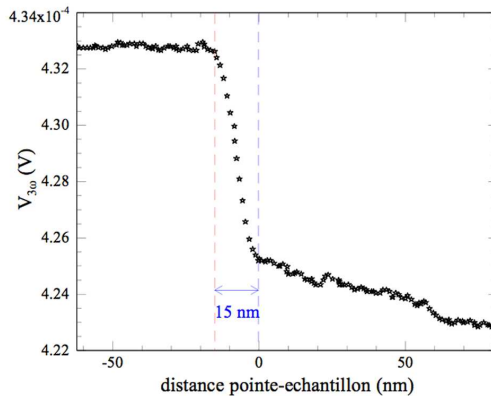
FIG. III.12 – Tension de sonde au cours de l'approche de l'échantillon vers la sonde thermique en mode DC, en échelle semi-logarithmique, en fonction de la distance au contact mécanique. Un changement de régime est observé dès 1  $\mu\text{m}$ . Cette courbe n'est pas corrigée par le signal de photodiode.

Ceci montre que la sonde est fortement sensible au déplacement de l'échantillon dans le régime micrométrique et submicrométrique.

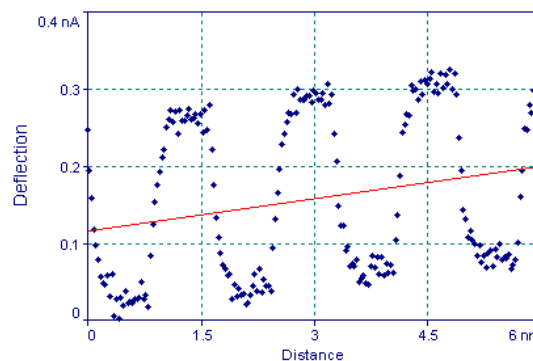
## Régime AC

A courte distance, nous avons en général fait des mesures en régime DC. En effet, les premières mesures en régime AC ont montré la présence d'un contact thermique intermittent aux faibles distances. Celui-ci est dû à la dilatation de la sonde en régime modulé. La sonde touche l'échantillon à un instant donné, puis sa taille diminue assez pour qu'il n'y ait plus contact, puis sa taille augmente de nouveau et ainsi de suite. Comme le signal thermique est moyenné sur quelques périodes, on ne perçoit pas clairement la différence de température entre le régime hors contact et le régime en contact. Il s'avère donc qu'aux distances inférieures à 50 nm, il vaut mieux utiliser le régime DC. La figure III.13 montre la zone où le contact est intermittent. Elle peut commencer à une à plusieurs dizaines de nanomètres de distance du contact complet (ici 15 nm pour une courbe non corrigée).

La figure III.14 présente une autre preuve de la dilatation de la pointe lorsqu'elle est chauffée en régime modulé. Lorsque l'actuateur piézoélectrique se dilate linéairement au cours du temps, de larges variations du signal de photodiode apparaissent. La pointe, en s'allongeant, appuie fortement sur l'échantillon, et la dilatation est observable avec une période égale à  $2f$ , où  $f$  est la fréquence.



**FIG. III.13** – Tension de sonde au cours de l'approche de l'échantillon vers la sonde thermique en mode AC, pour des distances pointe-échantillon inférieures à 50 nm. On ne constate pas de chute brusque de la température, qui correspondrait à un contact avec l'échantillon. Ici, l'extrémité de la sonde oscille entre contact et hors contact, ce qui mène à un régime de tapping thermique qui lisse la tension près du contact.



**FIG. III.14** – Signal de photodiode en nA, réponse à une dilatation du piézoélectrique linéaire en fonction du temps. La pointe est chauffée en régime modulé à 200 Hz, ce qui implique de grosses variations de l'intensité de la photodiode

### III.4.2 Modélisation de l'échange par l'air

Nous avons essayé de modéliser le transfert thermique dans l'air entre la sonde et l'échantillon pour interpréter les courbes obtenues au paragraphe précédent. Ceci est possible en se basant sur les travaux de Stéphane Lefèvre (Lefèvre, 2004b). Le trajet des lignes de flux est décrit à l'aide de deux conductances thermiques en série, l'une décrivant le trajet dans l'air ( $G_{air}$ ) et l'autre décrivant leur expansion dans l'échantillon ( $G_s$ ). La figure III.15 présente une schématisation de ce trajet.

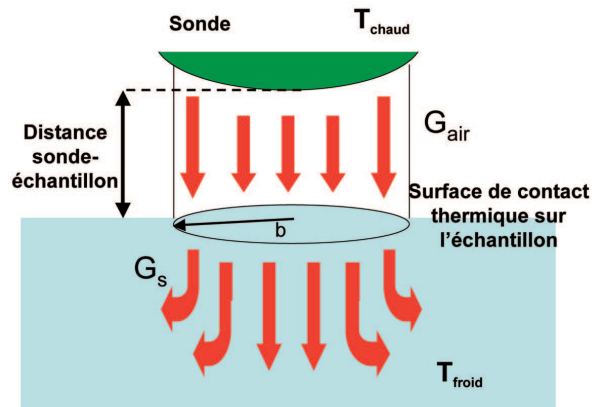


FIG. III.15 – Modélisation du trajet des lignes de flux thermique entre la sonde chauffée et l'échantillon supposé plan

#### Modélisation de la sonde

L'aspect de la sonde, qui est un fil de platine rhodié plié à son extrémité, a été modélisé par un demi-tore de rayon de courbure valant 15 microns et de rayon de fil de 2,5 microns. L'inclinaison de l'axe du demi-tore par rapport à la verticale n'est pas considérée pour plus de simplicité. De la sorte, une modélisation de la sonde est obtenue telle que la représente la figure (III.16). La modélisation

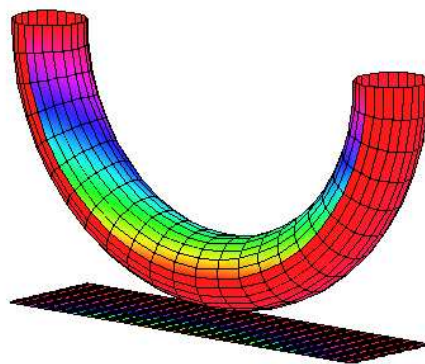


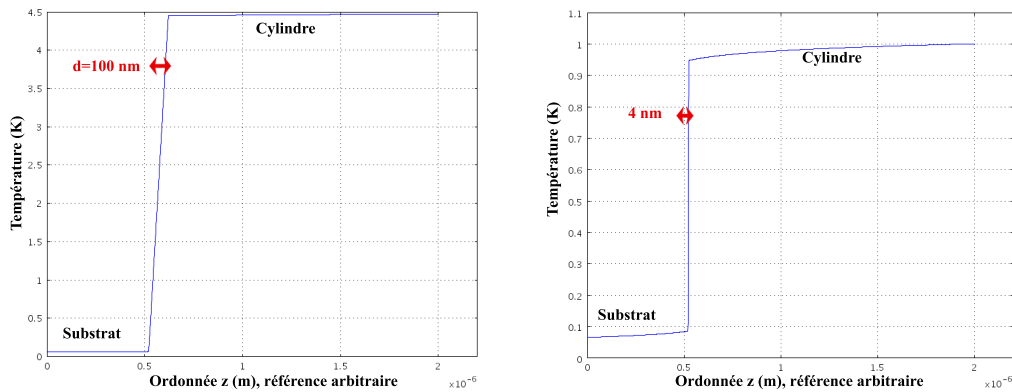
FIG. III.16 – Modélisation de l'extrémité de la sonde SThM, ici présentée à une distance de  $1 \mu\text{m}$  de l'échantillon supposé plan.

de la sonde, décrite au chapitre précédent, est basée sur un modèle d'ailette de section isotherme. Il s'avère important de vérifier que le modèle de section isotherme est toujours valable dans le cas présent, qui consiste à approcher une face de la sonde près de l'échantillon pour rendre possible le transfert de flux thermique de la pointe vers l'échantillon. Dans l'azote, le flux thermique balistique

entre deux plans infinis a été calculé dans (Volz, 2007a)[Chapitre 2, R. Carminati]. Le coefficient de transfert thermique surfacique  $h$  associé a été évalué de l'ordre de  $10^5 \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ . La température sera isotherme sur une section si le nombre de Biot reste faible. Ce nombre compare le flux perdu latéralement et le flux conductif. Son expression est la suivante (Lefèvre, 2004b) :

$$\text{Bi} = \frac{hD}{4\lambda_{\text{sonde}}} \quad (\text{III.15})$$

Dans notre cas, le nombre de Biot est de l'ordre de quelques pourcents si l'on suppose que le coefficient de transfert surfacique vaut au plus de l'ordre de dix fois celui du cas plan-plan. La simulation numérique 2D de type éléments finis (Comsol) utilisée pour la figure III.17 considère un cylindre chauffé par un terme source volumique homogène en face d'un demi-espace. Elle montre que la température est homogène dans le cylindre, même aux faibles distances. Par contre, la température du cylindre est fortement diminuée lorsque la distance diminue. La température dans le substrat est beaucoup plus faible, car la résistance thermique de l'air reste importante.



**FIG. III.17** – Température sur l'axe cylindre-substrat calculée à l'aide d'une simulation 2D basée sur la loi de Fourier. La température est homogène dans le premier cylindre ( $d = 100 \text{ nm}$ ), car le nombre de Biot reste faible. Ceci n'est plus valable pour les courtes distances ( $d = 4 \text{ nm}$ ).

### Modélisation de la conductance thermique d'échantillon

La simulation de l'échange thermique met en jeu une hauteur effective contribuant au transfert thermique. Celle-ci vaut quelques centaines de nanomètres à quelques microns. Cette hauteur permet de définir une forme appelée spirique de Persée ou ovale de Cassini, qui est la section horizontale du tore. Pour un transfert thermique avec lignes de flux verticales, la surface de l'échantillon  $S$  par laquelle passent les lignes de flux a la même forme.

Une première approximation consiste à supposer que l'échantillon est isotherme à sa surface sur une aire délimitée par une telle forme, chauffée par la sonde. Un rayon thermique de contact sur l'échantillon  $b$  peut être associé. Ce rayon est obtenu de la manière suivante :  $b = \sqrt{S/\pi}$ . Les lignes de flux se dispersent ensuite dans l'échantillon suivant un modèle à aire de contact circulaire. La conductance du demi-espace inférieur s'écrit alors en fonction de la conductivité thermique  $\lambda_{\text{éch}}$  de l'échantillon :

$$G_s = \lambda_{\text{éch}} b \quad (\text{III.16})$$

Le rayon thermique de contact  $b$  est estimé à l'aide de la distribution surfacique de flux thermique comme présenté dans l'appendice 1.



### Modélisation de la conductance thermique dans l'air

En première approximation, les faibles variations de température à l'extrémité de la pointe, sur une distance d'au plus quelques microns, sont négligées. La conductance d'échange par l'air peut alors être exprimée de la manière suivante :

$$G_{\text{air}}^{\text{cont}} = \int_{x,y} \frac{\lambda_{\text{air}}}{d + z(x,y)} dx dy \quad (\text{III.17})$$

où  $x$  et  $y$  représente les coordonnées dans le plan horizontal,  $d$  la distance entre l'extrémité de la sonde et l'échantillon et  $z$  le supplément d'altitude pour un élément de surface de la sonde par rapport à cette extrémité.

$G_{\text{air}}^{\text{cont}}$  peut prendre de très grandes valeurs aux courtes distances, lorsque  $d \rightarrow 0$ . Ceci peut impliquer des cas où le nombre de Biot n'est plus aussi faible. A 5 nm, il vaut 0,15. Bien que tous les calculs aient été faits pour l'hypothèse de section isotherme, nous garderons à l'esprit que ce n'est pas le cas pour un tel modèle lorsqu'un élément de sonde est vraiment proche de l'échantillon. Cela ne concerne néanmoins qu'une surface très réduite.

### Correction de la loi de Fourier

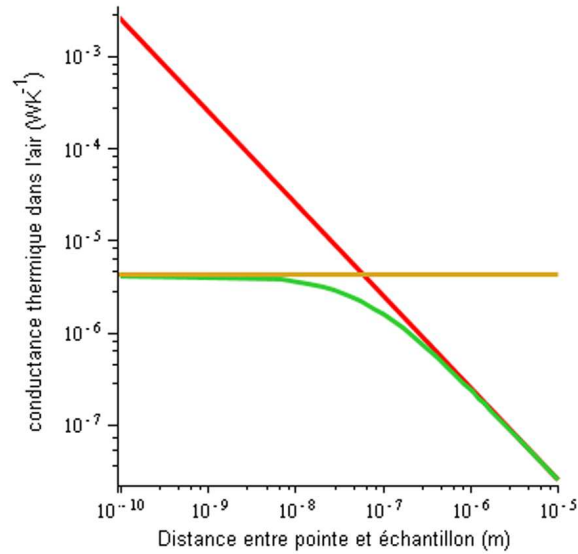
Cette écriture de la conductance est basée sur la loi de Fourier, qui suppose la proportionnalité du flux au gradient thermique  $\frac{\Delta T}{d+z(x,y)}$ . Or il n'est plus possible d'écrire la loi de Fourier lorsque des distances de l'ordre du libre parcours moyen des porteurs d'énergie sont mises en jeu. Le libre parcours moyen des porteurs de chaleur, les molécules d'air  $\Lambda$  essentiellement composé de diazote, vaut 64 nm. Il faut donc corriger l'écriture de la conductance thermique pour les distances faibles. Il est possible de modifier l'expression de la conductance thermique de la manière suivante :

$$G_{\text{air}}^{\text{subcont}} = \int_{x,y} \frac{\lambda_{\text{air}}}{d + z(x,y) + \Lambda} dx dy \quad (\text{III.18})$$

Ceci permet d'imposer un transfert thermique borné pour des distances  $d + z$  inférieures à  $\Lambda$ . Dans ce cas, le flux thermique reste proportionnel à l'écart de température mais n'est plus inversement proportionnel à l'écart de distance. Pour des distances supérieures, cette expression tend vers la précédente III.17. On a représenté sur la figure III.18 la conductance thermique entre deux surfaces planes parallèles ayant une surface d'échange de  $1 \mu\text{m}^2$ . La conductance thermique diffusive diverge lorsque  $d \rightarrow 0$ . Le modèle présenté ici permet d'éviter cette divergence.

### Application à la géométrie tore-surface

La température de sonde a été calculée à l'aide des équations présentées au chapitre précédent. Les résultats sont présentés dans la figure (III.19), et comparés à la courbe expérimentale. La longueur de la sonde étant un paramètre mal connu, la demi-longueur  $L$  est fixée afin que les échelles soient comparables. La variation de  $L$  impliquée est de l'ordre de 5%. Les allures des courbes expérimentale et simulée sont identiques, mais la courbe expérimentale a une décroissance plus douce que la courbe simulée aux faibles distances. Cela est dû au fait que les transferts thermiques latéraux ne sont pas pris en compte dans cette simulation de la température. Ceux-ci mettent en jeu des distances plus grandes et ont tendance à diminuer la pente de la courbe aux basses pressions. La courbe simulée croît moins vite lorsqu'on augmente la distance entre pointe et échantillon de plus de 15 microns. La modélisation de la pointe par son extrémité uniquement est moins valable pour ces distances et une modélisation plus correcte prendrait en compte une plus grande surface



**FIG. III.18** – Conductance entre deux surfaces, ici pour une surface d'échange thermique de  $1 \mu\text{m}^2$ . L'échelle est logarithmique. La courbe rouge représente le modèle purement diffusif, la courbe jaune la limite purement balistique et la courbe verte représente le modèle complet.

d'échange. Néanmoins, cette modélisation permet d'observer un comportement similaire à celui de l'expérience.

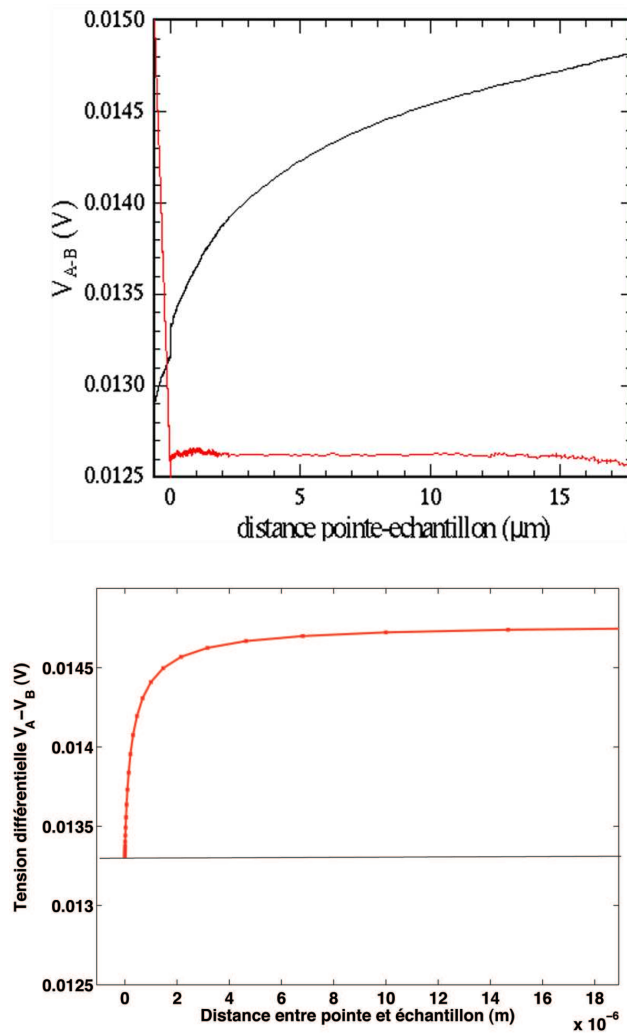
L'intérêt de la modélisation réside dans le fait de pouvoir étudier la transition entre régime diffusif pur et le régime courte distance où régimes diffusif et balistiques sont présents. En effet, la figure (III.20b) montre l'influence des deux modèles de conductances sur la tension. On remarque que les deux modèles se distinguent par l'apparition du plateau, marque du régime balistique.

Les tensions de sonde expérimentale et simulée en échelle semi-logarithmique permettent de comparer les comportements pour les distances nanométriques. On constate que les courbes sont bien similaires. Cependant, la pente de la courbe expérimentale est moins abrupte que celle de la courbe simulée, pour les raisons évoquées précédemment : tout le flux n'est pas pris en compte et la dispersion latérale des lignes de flux n'est pas prise en compte. Ceci est essentiellement important pour les longues distances. Enfin, remarquons que notre modèle de tore parfait et de surface rigoureusement plane est une idéalisation, la rugosité de l'échantillon et de la sonde diminuant probablement le flux balistique. Ceci ne remet pas en cause nos conclusions comme le montre l'Appendice 2. L'Appendice 3 montre que même si on fait une erreur sur la détermination du contact, les comportements mis en évidence restent valables.

Une remarque importante ici est qu'on voit sur la simulation que la pente de la courbe verte n'est pas égale à la pente de la courbe de rouge dès l'entrée dans le domaine submicrométrique. Cela suggère que le régime balistique est déjà opérant pour des distances plus grandes que le libre parcours moyen.

Il faut d'ailleurs remarquer que le modèle de régime de glissement ("slip regime") utilisé dans (Shi, 2002; Lefèvre, 2005b) et basé sur la diminution des collisions dans la couche limite (Rohsenow, 1961) consiste à remplacer  $\Lambda$  par  $2F\Lambda$  dans l'équation III.18, pour les distances supérieures à  $\Lambda$ . Les valeurs de  $F = \frac{2(2-A)\gamma}{A(\gamma+1)Pr}$ , où  $A$  est le coefficient d'accommodation thermique légèrement inférieur à  $1^1$ ,  $\gamma = 1,4$  le rapport des capacités calorifiques et  $Pr \simeq 0,7$  le nombre de Prandtl,

<sup>1</sup>Il existe une certaine diversité de valeurs dans un grand nombre d'articles. Voir par exemple (Rebrov, 2003)



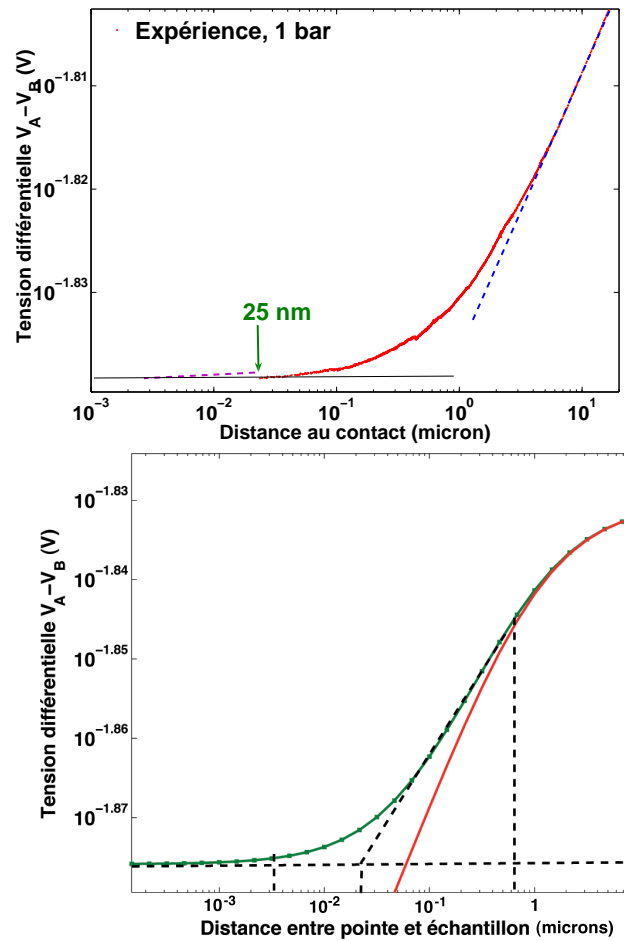
**FIG. III.19** – Tension différentielle  $V_A - V_B$  en fonction de la distance sonde-échantillon. (a) Courbe expérimentale (noire) et signal de diode (rouge). (b) Courbe simulée pour les mêmes paramètres expérimentaux, avec une demi-longueur de sonde  $L = 92,25$  microns. Le trait horizontal indique la tension expérimentale juste avant le contact pour comparaison.

sont supérieures à 1, donc laissent supposer que la sensibilité au régime balistique pourrait débiter pour des distances encore plus élevées.

Nous avons donc vu dans ce paragraphe qu'une contribution balistique apparaît dès les distances sub-micrométriques. Le flux pourrait saturer pour les distances inférieures à 20 nm. La modélisation a permis d'expliquer le comportement des courbes expérimentales, même si les valeurs quantitatives ne sont pas exactement identiques.

### III.4.3 Effet de l'échantillon sur le flux thermique transféré

Nous avons pu observer qualitativement que les courbes d'approche sont différentes selon l'échantillon que l'on utilise. La figure (III.21) montre que la pente de la courbe d'approche est beaucoup plus faible pour le titane dans le régime micrométrique et submicrométrique. Cela est dû au fait que l'échantillon échange déjà un flux avec la pointe pour des distances plus grandes. Le verre, qui est plus isolant, n'absorbe du flux thermique que lorsque sonde et échantillon sont proches. En



**FIG. III.20** – Tension différentielle  $V_A - V_B$  expérimentale et simulée en échelle logarithmique en fonction de la distance pointe-échantillon. On a tracé les modèles diffusif (rouge) et complet (vert). La décroissance très forte de la pente de la courbe expérimentale, qui semble éventuellement tendre vers un plateau, est la preuve du régime balistique.

conséquence, la pente de la courbe devient plus importante tout près de l'échantillon.

#### III.4.4 Effet de la pression sur le flux thermique transféré

Nous avons pu obtenir des courbes d'approche pour différentes pressions avec l'échantillon de niobium. Elles sont représentées sur la figure III.22. Ces pressions sont comprises entre 1 bar et 15 mbar, car l'actuateur piézoélectrique ne peut être utilisé dans la gamme de pressions comprises entre 10 mbar et  $10^{-2}$  mbar. On constate que le flux échangé entre la sonde et l'échantillon diminue du fait de la raréfaction des porteurs d'énergie. La température diminue près de 7 % à 1 bar, de près de 4,5 % à 260 mbar et de moins de 1 % pour une pression égale à 20 mbar. La chute de température n'est donc pas proportionnelle à la densité des porteurs d'énergie. Ces résultats préliminaires doivent servir à calculer le flux thermique transféré par la sonde à l'échantillon.

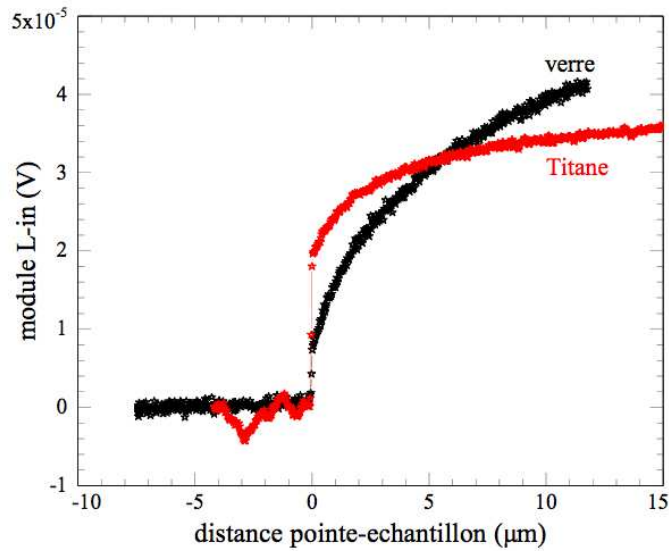


FIG. III.21 – Tension différentielle  $V_A - V_B$  expérimentale en mode  $3\omega$  pour deux échantillons en verre ( $\lambda \simeq 1,5 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ ) et en titane ( $\lambda \simeq 22 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ ). Les courbes ont été placées de telle sorte que leur tension après contact mécanique soit identique. Pour le titane, la chute de tension avant contact est beaucoup plus faible que pour le verre.

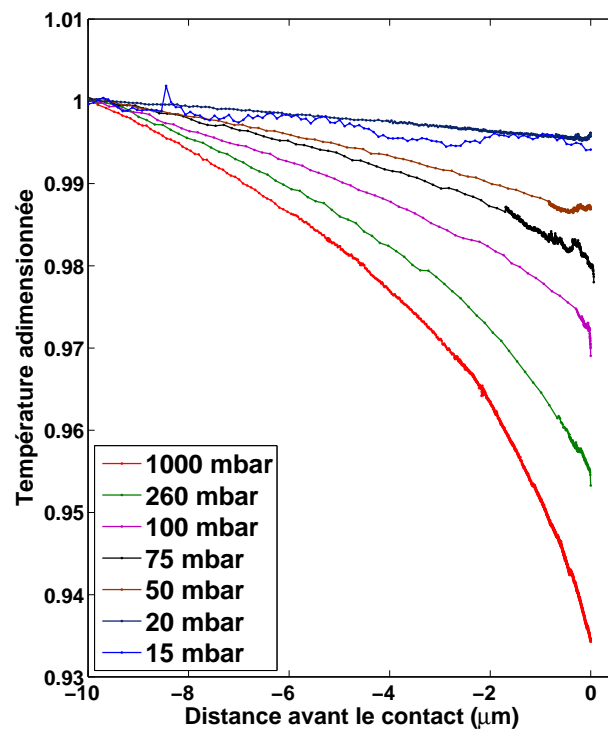


FIG. III.22 – Tension différentielle  $V_A - V_B$ , adimensionnée par sa valeur à  $10 \mu\text{m}$ , en fonction de différentes pressions.

### III.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié les transferts thermiques conductifs par l'air. La mise sous vide du microscope à force atomique a permis d'étudier les pertes thermiques dans le gaz en fonction

de la pression, et la détermination expérimentale du coefficient  $h$  de pertes convectives à pression ambiante. Ces pertes deviennent conductrices diffusives puis balistiques lorsque la pression diminue. Nous avons montré que le flux échangé par la pointe et l'échantillon était majoritairement transféré par l'air. A l'aide de courbes d'approche résolues en régime nanométrique, nous avons ensuite étudié les transferts thermiques conductifs par l'air entre une sonde Wollaston et un échantillon supposé plan. Ceci a permis de mesurer l'effet du régime balistique sur le transfert thermique dans l'air. Nous avons utilisé un modèle tenant compte du fait que le gradient thermique est borné lorsque l'on diminue l'écart entre deux surfaces de températures différentes pour interpréter les mesures de microscopie. Enfin, nous avons présenté un cas d'évolution des transferts thermiques pointe-échantillon en fonction la conductivité thermique de l'échantillon et des courbes d'approche en fonction de la pression.

Cette première clarification du rôle du transfert dans l'air doit permettre à l'avenir d'améliorer la compréhension de l'influence du contact mécanique sur les transferts thermiques entre pointe AFM et échantillon.

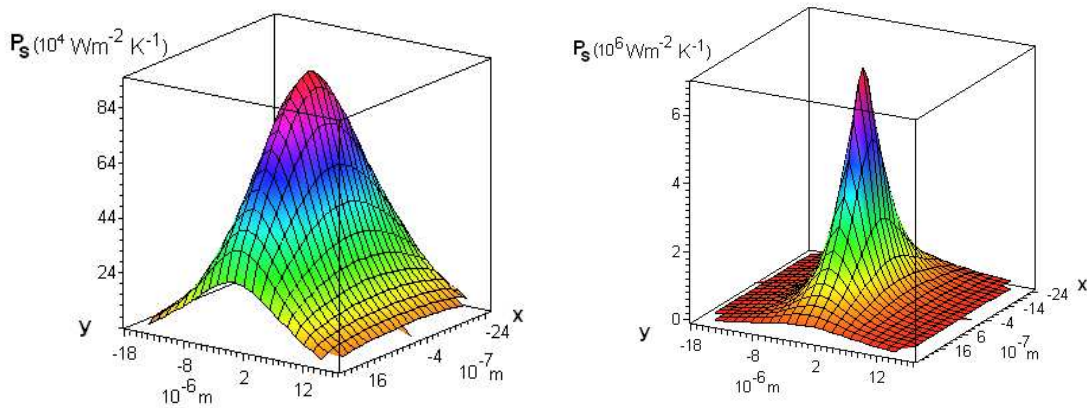
### III.6 Appendice 1 : Conductance d'échantillon sous la sonde Wollaston

Dans ce mémoire, nous modélisons le flux thermique diffusé dans l'échantillon en considérant qu'il est issu d'un disque isotherme à la surface de l'échantillon. Le flux est alors donné par l'expression suivante :

$$\phi = \lambda_0 b \Delta T \quad (\text{III.19})$$

qui met en jeu la conductance d'échantillon  $G_s = \lambda_0 b$  avec le rayon du disque  $b$ . Il est donc important de comprendre comment ce rayon  $b$  est déterminé. Dans le cas de la sonde Wollaston, il est en effet évident que le flux ne sera pas issu d'un disque isotherme. Tout d'abord, la géométrie de la sonde n'est pas à symétrie de révolution, donc on s'attend plutôt à une distribution avec deux axes principaux, ceux de la sonde. Nous faisons ici l'approximation que l'expression de la conductance pour la géométrie réelle peut se ramener à notre expression, à un facteur proche de l'unité près.

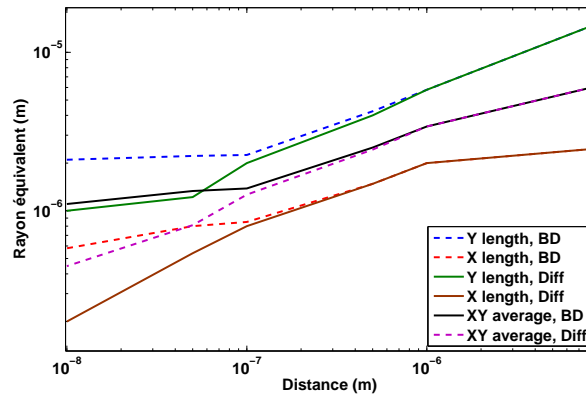
Cependant, le flux reçu par la sonde sur sa surface n'est pas à intensité constante. Nous avons donc décidé de fixer les axes de l'ovale de Cassini ou de la spirique de Persée, formes géométriques auxquelles se rapporterait notre configuration, en considérant les cartes de flux sur la surface. Sur chaque axe, la distance caractéristique est donnée par la distance pour laquelle le flux surfacique vaut la moitié du flux surfacique maximum. Cette distance varie clairement en fonction de la distance entre la pointe et l'échantillon. On présente ci-dessous les flux surfaciques en fonction des variables  $x$  et  $y$  du plan horizontal, pour deux altitudes de sonde. On remarque bien deux allures très différentes. Il faut noter également qu'à courte distance, les rayons ainsi calculés peuvent être



**FIG. III.23** – Flux surfacique reçu par le substrat dans le plan horizontal. (a) La distance sonde-surface (altitude de la sonde) est 1 micron. (b) L'altitude de la sonde est 80 nm.

différents pour les modèles diffusif pur et complet. Ceci s'explique par le fait que le pic du maximum du flux surfacique peut devenir très grand pour le modèle diffusif. Ceci a pour conséquence que le rayon  $b$  peut devenir très faible. La conductance d'échantillon peut devenir très limitante dans le cas purement diffusif. La figure III.24 présente les rayons associés aux modèles diffusif et complet. On constate bien que le modèle diffusif a des conductances d'échantillons qui deviennent très faibles pour les courtes distances.

Un calcul nous a montré qu'on peut alors obtenir une remontée de la température moyenne lorsqu'on diminue la distance sonde-échantillon si on garde ce critère *a priori* "de bon sens" aux très courtes distances (inférieures à 10 nm) pour le régime diffusif, alors qu'on transfère plus de flux. Nous avons alors fixé le rayon thermique à 1  $\mu\text{m}$  au minimum. Cette valeur impose une saturation



**FIG. III.24** – Distance caractéristique ("rayon équivalent") de l'étalement du flux sur la surface de l'échantillon, en fonction de l'altitude de la sonde. On présente les courbes obtenues pour le modèle diffusif (Diff) et le modèle complet (BD) et pour chaque axe (X petit axe du tore, Y grand axe). On représente aussi pour chaque modèle la moyenne géométrique des deux axes, qui sert de rayon équivalent dans l'expression de la conductance d'échantillon.

au flux diffusif et est atteinte pour des distances courtes. Une étude numérique 2D de type éléments finis a confirmé que la conductance d'échantillon n'est pas limitante en tout cas pour les distances supérieures à 5 nm.



### III.7 Appendice 2 : Conductance thermique entre deux surfaces avec une aspérité

Dans cet appendice, nous traitons le cas de deux surfaces parallèles en approche. Cependant, l'une des surfaces possède une aspérité hémisphérique de rayon  $R_{asp}$ . La figure III.25 présente la configuration étudiée. Nous allons voir comment cette aspérité modifie la conductance thermique d'échange en fonction de l'écart entre les deux surfaces.

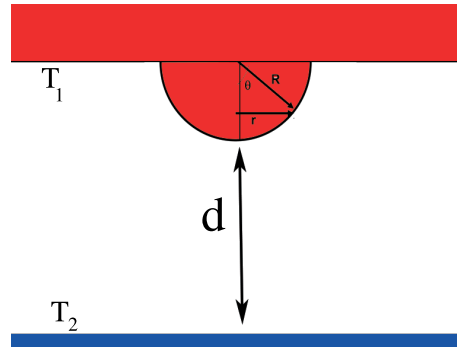


FIG. III.25 – Deux surfaces de températures différentes dont l'une possède une aspérité hémisphérique.

#### III.7.1 Flux conductif entre un hémisphère et une surface plane

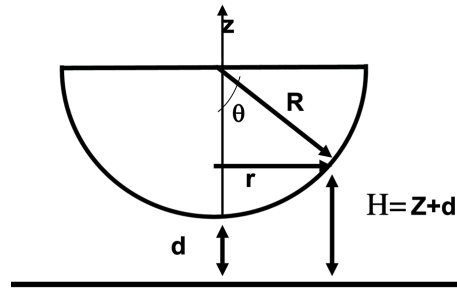


FIG. III.26 – Flux échangé entre une demi-sphère et une surface plane.

Le flux thermique associé à la figure III.26, dans l'approximation des lignes de flux parallèles et des surfaces isothermes, peut être exprimé de la manière suivante :

$$\phi = \int_0^R 2\pi r dr H(r) \Delta T \quad (\text{III.20})$$

où  $H(r)$  est l'altitude d'un élément de sphère et  $\Delta T$  l'écart de température entre les deux surfaces. Dans le cas diffusif, on a :

$$H(r) = \frac{\lambda_0}{d + z} \quad (\text{III.21})$$

et la figure III.26 nous montre que  $z = R(1 - \cos\theta)$  et  $r = R \sin\theta$ . Posant  $X = R/d$ , on doit calculer :

$$\phi = \int_0^{\pi/2} 2\pi d\theta R X \frac{\sin\theta \cos\theta \lambda_0}{1 + X(1 - \cos\theta)} \Delta T \quad (\text{III.22})$$

Le flux s'écrit alors

$$\phi = 2\pi R X \lambda_0 \left[ \frac{-1}{X} + \frac{1+X}{X^2} \ln(1+X) \right] \Delta T \quad (\text{III.23})$$

qu'il est possible de réécrire sous la forme générale :

$$\phi = 2\pi \lambda_0 \left[ -R + (R+d) \ln\left(1 + \frac{R}{d}\right) \right] \Delta T \quad (\text{III.24})$$

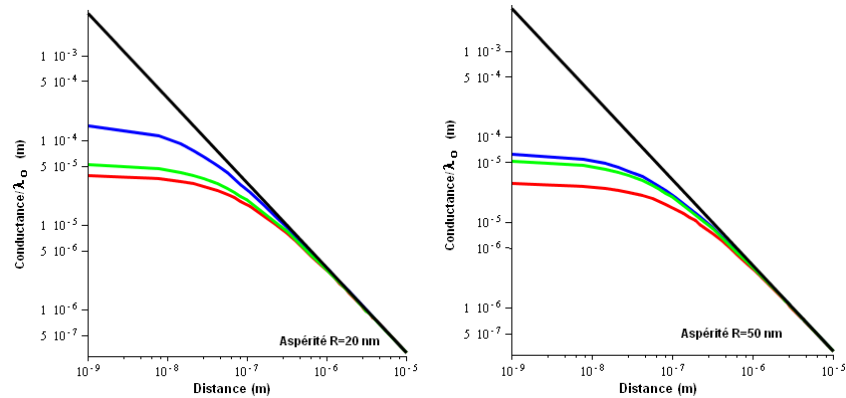
Au très petites distances  $d$ , on aura donc :

$$\phi \simeq 2\pi \lambda_0 R \ln\left(\frac{R}{d}\right) \Delta T \quad (\text{III.25})$$

On peut considérer le flux balistique en remplaçant  $d$  par  $d + \Lambda$ .

### III.7.2 Effet de l'aspérité sur la conductance entre deux surfaces

La conductance thermique entre deux surfaces dont l'une possède l'aspérité et l'autre est plane a été calculée. La surface plane est un disque de rayon 1 micron. La figure III.27 permet de comparer les cas avec et sans aspérité, pour deux rayons  $R_{asp}$ . On constate que la conductance thermique diffusie diverge bien. Lorsqu'il y a présence de l'aspérité, le flux transféré est toujours plus faible. Cependant, les courbes tenant compte du régime balistique présentent des déviations par rapport aux courbes purement diffusives pour des distances allant jusqu'à 200 nm. Même en ne connaissant pas parfaitement la géométrie du contact, il est possible de mettre en évidence la partie balistique en montrant qu'il existe, à une distance donnée, un maximum pour la conductance thermique réelle. Il ne peut pas y avoir confusion avec une courbe de régime purement diffusif dans une autre géométrie, car celle-ci prendrait forcément des valeurs de conductances supérieures à ce maximum. Ceci est illustré par la courbe (b) verte, cas avec régime balistique purement plan, valeur de conductance maximale pour une distance au contact donnée. La courbe bleue, qui représente le cas diffusif avec une aspérité de taille importante, se distingue de la courbe verte pour des distances aussi importantes que  $d = 50$  nm.

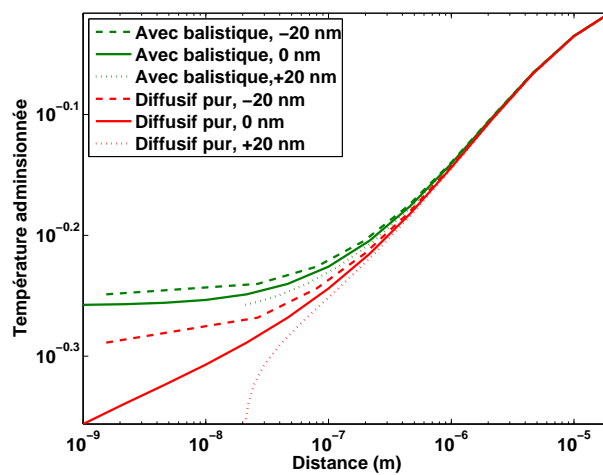


**FIG. III.27** – Rapport de la conductance thermique à la conductivité thermique habituelle  $\lambda_0$  entre deux surfaces dont l'une possède une aspérité et l'autre est plane, en fonction de l'écart au contact  $d$ . La surface plane est un disque de rayon  $1 \mu\text{m}$ . (a) Aspérité de rayon  $R_{asp} = 20 \text{ nm}$ . (b) Aspérité de rayon  $R_{asp} = 50 \text{ nm}$ . Courbe noire : modèle diffusif sans aspérité, courbe verte : modèle avec régime balistique sans aspérité. Courbe bleue : modèle diffusif avec aspérité, courbe rouge : modèle avec régime balistique avec aspérité.

### III.8 Appendice 3 : Effet d'un mauvais calibrage du contact ; comportements diffusif et réel

Une erreur possible est une mauvaise détermination de l'instant du contact. En effet, on peut voir par exemple sur la figure (III.11) qu'il y a une zone de quelques nanomètres dans laquelle a lieu le contact, et qu'on ne peut pas déterminer précisément (zone de la flèche rouge). La comparaison avec le modèle peut alors sembler difficile. Nous montrons ici qu'il n'en est rien.

Nous avons tracé les courbes simulées représentant la température en fonction de la distance, pour les modèles diffusif et complet. Cependant, nous avons volontairement décalé le "zéro", instant du contact pour regarder l'effet. On constate que si on considère qu'il a lieu trop tôt (courbe "20 nm"), les courtes distances sont aplaties. Cependant, les comportements restent très différents pour les modèles diffusif et complet, alors même que l'on a surestimé l'erreur de distance possible (20 nm).



**FIG. III.28** – *Température (adimensionnée) en fonction de la distance au contact mécanique. La même simulation est représentée avec un modèle diffusif et avec un modèle prenant en compte le régime balistique. Les courbes sont représentées dans un cas où on estime trop tôt que le contact a lieu, dans le bon cas, et dans un cas où on l'estime trop tard.*



## Chapitre IV

# Echanges thermiques conductifs dans l'air entre une nano-pointe et une surface

Ce chapitre en anglais présente les résultats publiés dans *Nanotechnology* en mai 2006, sous le titre "Heat transfer between a nano-tip and a substrate". Les coauteurs de l'article sont Jean-Jacques Greffet, Karl Joulain et Sebastian Volz. Il concerne l'étude du chauffage ultra-local de surface par une pointe chaude. Une annexe en français présente le profil de température attendu dans une pointe micrométrique qui serait chauffée à son extrémité par un nano-élément tel que celui considéré dans ce chapitre.

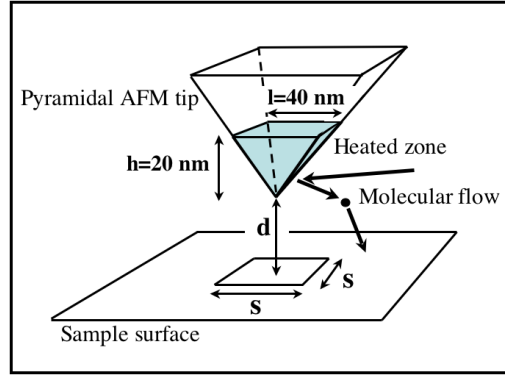
## IV.1 Abstract

We study quasi-ballistic heat transfer through air between a hot nanometer-scale tip and a sample. The hot tip/surface configuration is widely used to perform non-intrusive confined heating. Using a Monte-Carlo simulation, we find that the thermal conductance reaches  $0.8 \text{ MW.m}^{-2}\text{K}^{-1}$  on the surface under the tip and show the shape of the heat flux density distribution (nanometer-scale thermal spot). These results show that a surface can be efficiently heated locally without contact. The temporal resolution of the heat transfer is a few tens of picoseconds.

## IV.2 Introduction

Understanding the heat transfer between a hot tip and a substrate is a key issue in nanometer-scale devices operating at high temperatures such as scanning thermal microscopy (SThM) (Wickramasinghe, 1986; Dinwiddie, 1994) and also thermally assisted data storage (Vettiger, 2002). Indeed, several of the future methods to write or read information are based on the use of heat transfer between an Atomic Force Microscope (AFM) probe and the disk, because a spatial resolution below 100 nm can be achieved due to the small size of the tip (Drechsler, 2003). Contact heating can be used to write by melting the substrate (Vettiger, 2002). But the tip-sample contact is then responsible of tip damaging (Yang, 2005). Moreover, in such devices, heat is dissipated over large distances if the hot part of the tip is micrometric (Lefèvre, 2005b). A non-contact localized heating through air with a moving media could be a solution. Different methods as Joule (*e.g.* (Hamann, 2004)) or Peltier heating, *e.g.* (Shi, 2002), are possible to heat the extremity of the tip. A quantitative estimation of the heat transfer through air clearly appears as a key step to design thermally assisted data storage techniques. In this paper we report a calculation of the heat transfer between the apex of a tip and a surface. We discuss the leading mechanism, the spatial and temporal resolution.

When a hot tip and a cold sample are not in contact, heat can be exchanged through conduction (Shi, 2002) or radiation (Mulet, 2001b). The radiation contribution can be evaluated using the model described in ref.(Mulet, 2001b). The heat conduction cannot be modelled by classical Fourier diffusion because the air mean free path (MFP) is on the order of the average distance between the tip and the sample. Pure ballistic transfer is neither valid : this problem has to be solved in the intermediate regime. 3D effects have also to be included to observe the impact of the tip geometry. We therefore use a Monte-Carlo approach associated with the linear response theory in



**FIG. IV.1** – A skip of the tip. Typical lengths used are  $l=40$  nm and  $h=20$  nm. The distance  $d$  is in the nanometric range.

order to directly solve space and time dependent problems. This model also allows to study the time dynamics of heat conduction through the air gap.

We consider the extremity of a pyramidal AFM tip with a square base of  $l \times l$  with  $l=40$  nm and a height  $h=20$  nm. The distance  $d$  between the tip and the surface is in the nanometric range. We give the thermal characteristics of heat diffusion in the tip. In the stationary regime, heat confinement remains realistic since heat diffusion in the tip generates a significant temperature decay over a few tens of nanometers. In the transient regime, the heat diffusion in the tip has a characteristic time ( $h^2/a$ , where  $a$  is the diffusivity of the material) on the order of 1 ns.

We now describe how the radiation is evaluated. The radiation between a sphere with same volume as the heated zone of the tip and the surface was calculated for different materials. For a distance 20 nm between the center of the sphere at 800 K and the surface of same material at 300 K, we found a flux of  $5 \cdot 10^{-17}$  W for Si and  $1 \cdot 10^{-14}$  W for silver. As discussed in ref.(Mulet, 2001b), this flux can be increased if both the tip and the surface have an infrared active optical phonon resonance. For glass, we found  $9 \cdot 10^{-9}$  W.

### IV.3 A numerical model for quasi-ballistic air conduction

We now turn to the description of the conduction model. Its basis consists in calculating the time evolution of the local heat flux on the sample  $\langle q_{th}^R(r, t, T_{tip}) \rangle$  due to an impulse of molecular flux leaving the tip. The heat flux response  $q_{th}(r, t)$  to a given molecular flux excitation  $q_m^{tip}(\tau)$  is then given by

$$q_{th}(r, t) = \int_0^t \langle q_{th}^R(r, t - \tau, T_{tip}(\tau)) \rangle S_{tip} \cdot q_m^{tip}(\tau) d\tau \quad (IV.1)$$

where  $\langle q_{th}^R \rangle$  plays the role of a susceptibility.  $S_{tip}$  is the area of the heated part of the tip.

Let us now discuss how the susceptibility is computed using a Monte-Carlo approach. The heat transfer is due to air molecules which are in first approximation nitrogen molecules. A molecule is considered to carry the translational and rotational energy  $\frac{5}{2}k_B T$  where  $k_B$  is the Boltzmann's constant (reference (Rohsenow, 1961)). A cold molecule is heated when impacting the hot tip and then flies with a velocity chosen according to a Boltzmann's law at  $T_{tip}$ . The emission laws for velocity  $v$  and direction described by the cylindrical angles  $\theta$  and  $\varphi$  are derived from the equilibrium



molecular flux leaving the probe at  $T_{tip}$

$$q_m^{tip} = n_{tip} \left( \frac{m}{2\pi k_B T_{tip}} \right)^{3/2} \int_{v=0}^{\infty} v^3 \exp\left(\frac{-mv^2}{2k_B T_{tip}}\right) dv \times \int_{\theta=0}^{\frac{\pi}{2}} \cos\theta \sin\theta d\theta \int_{\varphi=0}^{2\pi} d\varphi. \quad (IV.2)$$

where  $m$  is the diatomic molecular mass.  $n_{tip}$  is the number of molecules per unit volume derived from the condition of null molecular flux at the tip surface. The sample and gas are at the ambient temperature  $T_a$ . Neglecting the increase of  $T_a$  due to the presence of the tip, the incident molecular flux is given by Eq. (2) where  $n_{tip}$  is replaced by the number of molecules per unit volume in the gas denoted  $n_g$  and  $T_{tip}$  is replaced by  $T_a$ . A molecule leaving the tip flies until undergoing a collision with another molecule or with the sample surface. The path length between two collisions is computed according to an exponential law with a characteristic decay length given by the MFP  $\Lambda = \frac{1}{\pi\sqrt{2}(2R_{pot})^2 n}$  which is 55 nm at atmospheric pressure.  $R_{pot} = 0.2075$  nm (Bird, 1994) denotes the molecular radius. The velocity of the collision partners are computed with Boltzmann's law taken at ambient temperature  $T_a$ . It allows to define a new velocity and a new direction after the collision for the test-molecule according to the Very Hard Sphere model (Bird, 1994). A molecule may undergo several collisions before it reaches the sample surface. Hot molecules which remain in the gas are discarded and the contribution of collision partners to the tip-sample heat flux is neglected. Finally, the thermal flux received by an element  $\delta x \times \delta y$  of the surface is

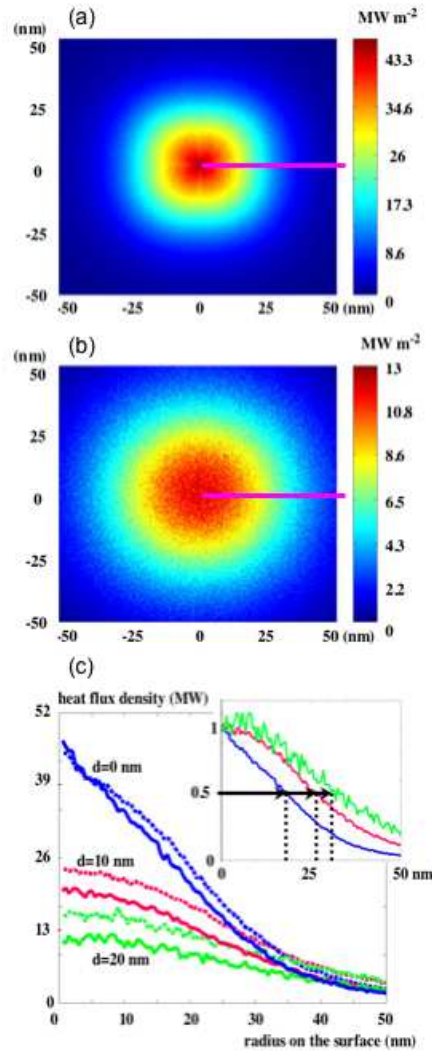
$$\langle q_{th}^R(r, t, T_{tip}) \rangle = \frac{E(r, t)}{\delta x \delta y \delta t N} \quad (IV.3)$$

where  $N$  is the number of emitted molecules and  $E(r, t)$  is the net energy transferred by the molecules emitted by the tip and falling in the area  $\delta x \delta y$  during the time interval  $\delta t$ . Each molecule arrives with an energy determined by the Monte-Carlo simulation and leaves the area with the mean energy  $T_a$ . We assume therefore that the kinetic energy is fully absorbed<sup>1</sup>. Those molecules are considered to leave the tip at the same initial time and the arrival time  $t$  is given by their flight time. The calculated susceptibility is a statistical average over  $N \sim 4 \times 10^8$  molecules. At  $T_{tip} = 800$  K, the mean power given by the tip to air molecules is about 90 nW.

## IV.4 Results and discussion

Figures 2(a) and 2(b) represent the heat flux density deposited on the sample surface when the tip is in contact (top) and when  $d = 10$  nm (bottom) in a steady-state analysis. It is obtained by temporal integration of the susceptibility. The characteristic size (FWHM) of the heated zone in contact is a square of edge 35 nm. This corresponds to the best spatial resolutions for SThM and also to disk densities up to Tbit.in<sup>-2</sup>. The geometry of the heat flux density reproduces the square shape of the tip projection in the case of contact. For heights larger than  $d = 10$  nm, the imprint of the tip is lost and the deposited energy becomes axisymmetric. This shows that the shape of the tip no longer influences the heat transfer. This behavior is still observed if we do not include collisions in the model. It follows that it is due to the isotropy of the velocity distribution of emitted molecules. Previous models based on vertical projection might not reproduce correctly this phenomenon under  $d = 10$  nm (Shi, 2002). Levels of heat flux densities obtained for tip temperature of 800 K are higher than 45 MWm<sup>-2</sup> in contact. The values that we found correspond to a total power on the order of 10 nW much larger than the radiation contribution when using silicon. The temperature of a 10 nm thick film of insulator material (thermal conductivity  $k=1$  Wm<sup>-1</sup>K<sup>-1</sup>) would be increased by about 80 K in 1  $\mu$ s in contact and by 25 K when  $d = 10$  nm. This indicates

<sup>1</sup>The accommodation factor is bigger than  $\alpha = 0.87$  (see reference (Rohsenow, 1961)).

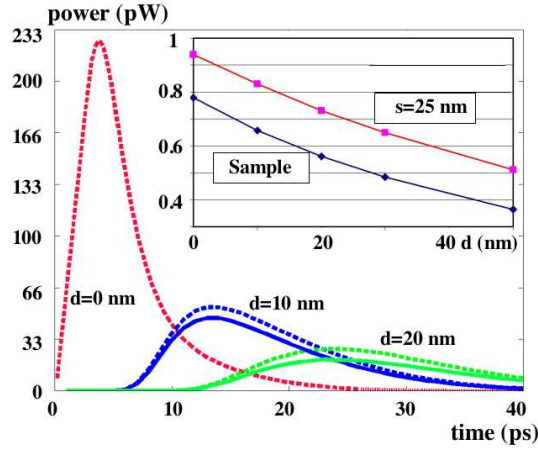


**FIG. IV.2** – Heat flux density on the substrate. (a)  $d = 0$  nm (b)  $d = 10$  nm (c) Heat flux density along the section shown in (a)(b). Dashed lines show results when collisions are not taken into account. The inset shows the normalized heat flux density.

that heating through air with a moving media is feasible. On Figure 2(c), we report the radial distribution of the heat flux density. In contact, a linear decrease is found until 35 nm. As seen in the inset, the FWHM of the thermal spot increases by more than 10 nm when  $d$  increases from  $d = 0$  to 20 nm. The comparison of dashed lines and plain lines shows that the effect of the collisions is to further reduce the heat flux.

Figure 3 represents the evolution of the susceptibility<sup>2</sup>  $\langle q_{th}^R(r, t, T) \rangle$  integrated over a square surface of side  $s = 15$  nm under the tip with  $l = 40$  nm and  $h = 20$  nm at various heights  $d$ . The minimum heating time is equal to the time width of the flux response. This is on the order of 10 ps. This is not a limiting factor for writing applications since this time is much smaller than the conduction time scale in the tip. As shown in the inset, the power given to the sample surface at  $d = 30$  nm is half of what is found in a pure ballistic calculation and 65% for a square of edge 25 nm. Although the susceptibilities are not qualitatively different, it is necessary to take into account effects of collisions. Note that the collisions are responsible for the loss of 70% of the power in comparison to the ballistic one when the height  $d$  is equal to the mean free path.

<sup>2</sup>A similar approach for heat conduction in bulks is presented in (Volz, 2004)

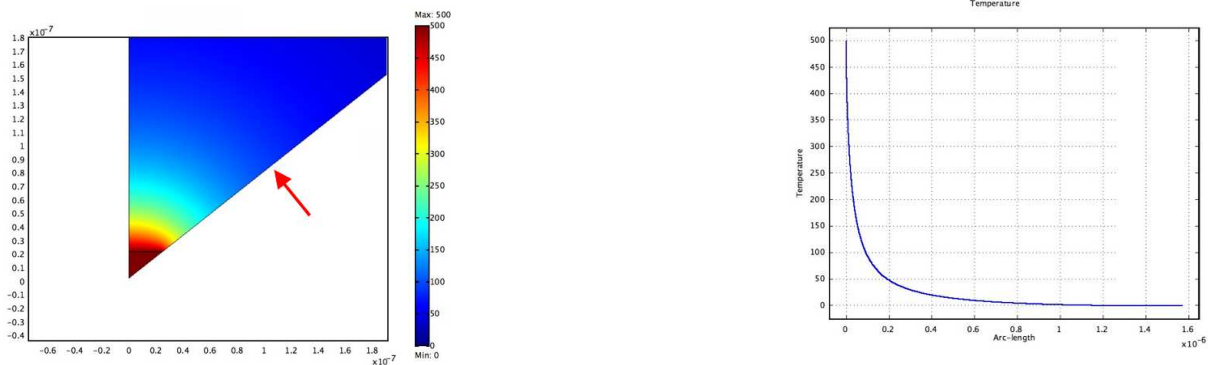


**FIG. IV.3** – Temporal evolution of the susceptibility : power given to a  $s = 15$  nm square of the substrate for a  $l = 40$  nm and  $h = 20$  nm tip. Dashed lines represent pure ballistic calculations. The inset shows the full power on the sample normalized by the pure ballistic flux when the tip is retracted. This illustrates the decay of the flux due to collisions.

In summary, we have studied the heat transfer through air between the hot extremity of a tip and a surface. The hot tip/surface configuration is widely used to heat locally a surface. We find that for silicon, air conduction dominates the heat transfer. The values of the heat flux density reach  $0.5 \text{ MWm}^{-2}\text{K}^{-1}$  at a distance of 35 nm from the axis of the tip. The time scale of the conduction heat transfer is on the order of tens of picoseconds. These figures show that heat transfer through the air at distances on the order of 10 nm is sufficient to allow non-contact scanning thermal microscopy or thermally assisted data storage.

## IV.5 Annexe : Diffusion thermique due au chauffage ultra-local

Dans ce chapitre, nous n'avons considéré que l'élément chauffant. Cependant, cet élément chauffant est forcément lié à un bain thermique. Par exemple, si on considère qu'il est situé à l'extrémité d'une pointe AFM classique, la chaleur sera diffusée dans la pointe, ce qui conduira à l'échauffement de la pointe. Nous montrons ici le profil de température en régime permanent sur la surface d'une pointe conique. La figure IV.5(a) nous donne ce profil sur une section de la pointe conique, tandis que la figure IV.5(b) nous donne le profil de température sur la surface extérieure de la pointe en fonction de la distance avec l'extrémité. En régime stationnaire, le profil de température ne dépend pas de la conductivité thermique.



**FIG. IV.4** – Profil de température sur une pointe conique chauffée à son extrémité. (a) Le profil est donné sur une section de la pointe. (b) Le profil est donné sur la surface extérieure en fonction de l'éloignement du sommet de la pointe (la flèche rouge montre la surface).

On constate que la température décroît très rapidement, et notamment qu'elle est divisée par deux lorsque la hauteur est doublée. Une contribution due à un flux diffusif est donc également attendu sur la surface, mais les écarts de température seront plus faibles. L'étude du régime balistique est donc totalement justifiée, car pour une telle pointe, la contribution balistique ne sera pas négligeable par rapport à la contribution diffusif.



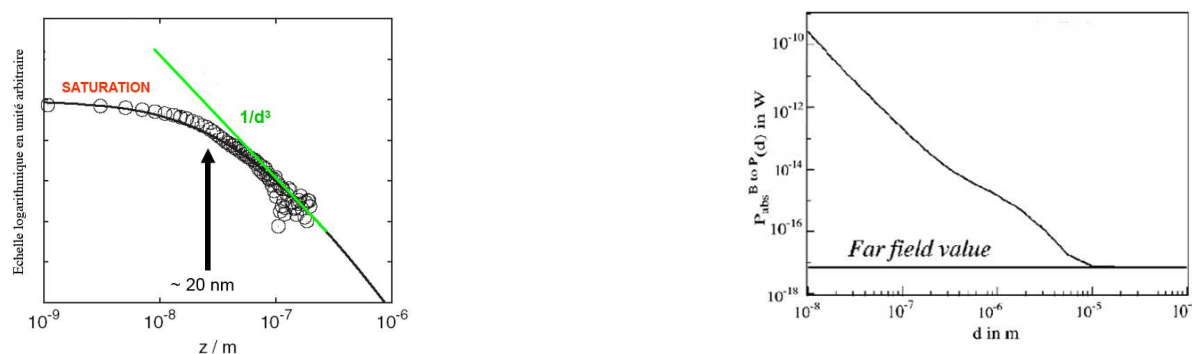
## Deuxième partie

# Etude des transferts radiatifs de champ proche pour les métaux



Nous allons maintenant aborder le problème des échanges de chaleur par rayonnement. Il est aisé de décrire l'échange de flux thermique radiatif entre deux objets séparés par un milieu non absorbant d'une distance supérieure au millimètre, par exemple grâce à l'équation de transfert radiatif. Cependant, le comportement du flux est fortement modifié lorsqu'on diminue la température pour s'approcher de 0 K ou lorsque les objets sont rapprochés. En effet, on va dans les deux cas être confronté à des situations où la grandeur caractéristique du rayonnement, sa longueur d'onde, devient comparable à la distance de séparation. La nécessité de prendre en compte la longueur d'onde impose alors de recourir au formalisme électromagnétique. On parle de régime de champ proche, quand les objets sont séparés par des distances inférieures à la longueur d'onde, contrairement aux situations plus communes, où les objets sont en champ lointain. Pour le rayonnement thermique, la longueur d'onde typique est  $10\ \mu\text{m}$  à température ambiante (300K). L'émergence des micro- et nanotechnologies implique la possibilité aujourd'hui de placer des objets à des distances beaucoup plus faibles. L'étude des régimes de transferts thermiques avait déjà été nécessaire auparavant, car à température plus faible, vers 1 ou 2 K, la longueur d'onde typique peut approcher quelques millimètres.

Nous nous sommes restreints dans ce travail aux échanges entre métaux. Un travail important avait été déjà effectué par notre équipe de recherche pour les matériaux polaires à résonance de surface, en montrant notamment l'utilité des résonances de phonons-polaritons (Mulet, 2001b; Mulet, 2002). Ce travail avait fait suite à un certain nombre de travaux portant sur les métaux au cours des 40 dernières années. Cependant, l'expérience de l'équipe de Achim Kittel à Oldenburg (Allemagne) (Mueller-Hirsch, 1999) a montré récemment que le flux transféré entre une pointe métallisée et une surface métallique pouvait avoir un comportement différent de ce qui était attendu. Nous avons donc décidé de reprendre ces travaux et de les compléter.



**FIG. IV.5** — (a) Mesure de la puissance radiative de champ proche échangée entre une pointe de platine métallisée sur une épaisseur de 20 nm et une surface plane d'or en fonction de la distance pointe-surface. Kittel et le groupe d'Oldenburg montrent que la puissance échangée sature à faible distance. (b) Prédiction de la puissance échangée entre une nanoparticule de silice de rayon 5 nm et une surface plane du même matériau en fonction de la distance. Bien que les matériaux soient différents, le comportement à faible distance ("asymptotique") dans le cas de l'or et de la silice était supposé identique.

Kittel et Müller-Hirsch ont mesuré la puissance thermique radiative échangée entre une pointe de microscope à force atomique métallisée avec de l'or et une surface d'or. Leurs résultats montrent que lorsqu'on approche la pointe dans un régime de distances inférieures à quelques dizaines de nanomètres, le flux transféré sature. Ceci est en contradiction avec la divergence de la densité d'énergie près de la surface (Joulain, 2003), qui devrait assurer une augmentation importante du flux à faible distance. L'idée originale de Kittel *et al* était donc que l'utilisation de l'électrodynamique classique habituelle semblait ne plus être valable à l'échelle de 10 ou 20 nanomètres. La



saturation du flux radiatif à faible distance avait été attribuée à une longueur de non-localité spatiale. Le fait est qu'à température ambiante, le libre parcours moyen des électrons est justement de cet ordre de grandeur dans les métaux. La mesure du flux radiatif de champ proche permettrait donc d'observer ce libre parcours moyen. Kittel *et al* ont appuyé leur hypothèse en confrontant leurs mesures à un modèle phénoménologique (Kittel, 2005).

Nous avons décidé de réexaminer le problème du transfert radiatif entre deux surfaces en incluant les effets non-locaux dans un modèle rigoureux. Nous considérerons dans le premier chapitre de cette partie le transfert radiatif de champ proche entre deux surfaces métalliques parallèles. Nous montrerons l'importance des ondes de polarisation  $s$  dans le transfert entre métaux. Ceci nous amènera à revisiter le transfert de puissance entre une particule et une surface. Nous montrerons dans le second chapitre que le moment dipolaire magnétique ne peut pas être négligé pour les corps métalliques aux longueurs d'ondes infrarouge, ce qui est malheureusement apparemment assez souvent le cas. Dans les deux cas, nous constaterons l'importance des courants de Foucault près des surfaces. Ils sont responsables de l'émission et de l'absorption dans les métaux. Le troisième chapitre abordera la problème du transfert radiatif de champ proche entre deux nanoparticules métalliques. Nous verrons que les courants de Foucault  $y$  sont également prédominants.

## Chapitre V

Implications de la non-localité pour le transfert radiatif de champ proche entre deux surfaces métalliques

Ce chapitre en anglais présente l'étude du transfert radiatif de champ proche entre deux surfaces métalliques. Il a fait l'objet d'une soumission pour publication sous forme d'article sous le titre *Effects of spatial dispersion in near-field radiative heat transfer between two parallel metallic surfaces*. Les co-auteurs sont Sebastian Volz, Carsten Henkel, Karl Joulain et Jean-Jacques Greffet.

## V.1 Abstract

We study the heat transfer between two parallel metallic semi-infinite media with a gap in the nanometer-scale range. We show that the near-field radiative heat flux saturates at distances smaller than the metal skin depth when using a local dielectric constant and investigate the origin of this effect. The effect of non-local corrections is analysed using the Lindhard-Mermin and Boltzmann-Mermin models. We find that local and non-local models yield the same heat fluxes for gaps larger than 2 nm. Finally, we explain the saturation observed in a recent experiment as a manifestation of the skin depth and show that heat is mainly dissipated by eddy currents in metallic bodies.

## V.2 Introduction

Near-field radiative heat transfer has been investigated for 40 years (references (Rytov, 1989; Cravalho, 1967; Olivei, 1968; Caren, 1968; Cravalho, 1968; Hargreaves, 1969; Domoto, 1971; Polder, 1971; Caren, 1974; Kuteladze, 1979; Polevoi, 1981; Xu, 1988; Xu, 1994; Loomis, 1994; Dorofeev, 1997; Pendry, 1999; Mueller-Hirsch, 1999; Pan, 2000; Volokitin, 2001; Mulet, 2001b; Dedkov, 2002; Park, 2002; Mulet, 2002; Zhang, 2002; Fu, 2006; Janowicz, 2003; Kittel, 2005; Bimonte, 2006)<sup>1</sup>). Rytov and co-workers (Rytov, 1989) showed how to calculate thermal radiation by introducing fluctuational electrodynamics. This theory is based on the introduction of random current densities due to the thermal random motion of charges. Their correlation functions are given by the fluctuation-dissipation theorem (FDT). Cravalho, Tien and Caren (Cravalho, 1967) and Olivei (Olivei, 1968) were the first to address heat transfer in the near field, i.e., at distances smaller than the peak wavelength  $\lambda_T$  of the thermal radiation spectrum. However, they did not consider all evanescent waves. Polder and Van Hove (Polder, 1971) were the first to take into account all the evanescent waves by using the formalism introduced by Rytov. They found a huge increase in the heat flux between two parallel surfaces when the gap distance  $d$  becomes smaller than  $\lambda_T$ . Rytov (Polevoi, 1981) and co-workers pointed out that spatial dispersion could play a role for small gaps. Volokitin and Persson (Volokitin, 2001) showed that spatial dispersion could be responsible for an increased heat flux in the nanometer-range by using an approximation for the non-local reflection coefficients. Loomis and Maris (Loomis, 1994) also investigated heat transfer between metallic bodies, showing the influence of the electrical resistivity. Recently, Mulet et al. (Mulet, 2001b; Mulet, 2002) showed that the radiative heat transfer between dielectrics supporting surface phonon polaritons is dominated by the surface wave contribution. As a result, the heat flux is monochromatic in this case.

<sup>1</sup>For (Pan, 2000), see also (Maradudin, 2001) and (Mulet, 2001a)

Several experiments have been reported. Tien's collaborators made the first measurements at cryogenic temperatures, when the near field starts at hundreds of microns. Kuteladze and Bal'tsevitch (Kuteladze, 1979) performed an analogous experiment. Hargreaves (Hargreaves, 1969) was the first one to note (at ambient temperature) an enhanced heat transfer over micrometric distances by using two parallel plates of chromium. In the end of the 1980's, Xu (Xu, 1988; Xu, 1994) et al. could not confirm this effect with an indium needle in front of silver. Recently, Kittel et al. (Mueller-Hirsch, 1999; Kittel, 2005) showed a large increase in the heat exchange between a scanning probe microscope (SPM) metallic tip and a planar surface by working in the nanometer range. Surprisingly, they also found that the increase of the heat flux levels off (saturates) at very small scales (a few 10 nm). This is in striking contrast with the  $1/d^3$  dependence to the distance  $d$  of the density of states close to the surface. It is also in contrast with the power laws discussed by Pan et al. (Pan, 2000). This led Kittel et al. to suggest that the observed saturation at short distances be due to a non-local dielectric constant. Very recently, Narayanaswamy and Chen measured an enhancement of the heat flux at micron distances, using dielectric polar material and a setup similar to the one used for measurements of the Casimir force (Mohideen, 1998). Simultaneously, a number of groups tried to use proximity-enhanced heat transfer to increase locally the number of electric charge carriers. Di Matteo et al. (Di Matteo, 2001) reported an experimental observation in 2001. A number of theoretical papers also present heat flux levels (Raynolds, 1999; Pan, 2000; Di Matteo, 2001; Baldasaro, 2001; Whale, 2001; Narayanaswamy, 2003; Reh, 2005; Laroche, 2006). It has also been predicted that metamaterials (Zhang, 2002), electron doping (Fu, 2006) or adsorbates (Volokitin, 2004) may enhance the near-field heat transfer.

Although the enhancement of the flux becomes very large at distances on the order of a few nanometers, most of the published results use a local model of the dielectric constant. It has been pointed out that non-local effects should affect significantly the lifetime of a molecule close to a surface (Persson, 1982; Ford, 1984; Larkin, 2005; Larkin, 2004). This effect has also been studied in the context of the Casimir force (Sernelius, 2005; Svetovoy, 2004). It appears to be a relatively minor correction. The experimental findings of Kittel et al. has revived the interest for non-local effects as the saturation observed at short distance is a very significant effect. This paper is devoted to the analysis of two questions : i) what is the origin of the saturation of the flux in the near field ? ii) what are the consequences of non-locality in the context of near-field radiative heat transfer ?

In this paper we focus on the heat flux between two parallel semi-infinite metallic substrates. We show that for a metal the s-polarized (transverse electric, TE) contribution is the leading one. We also show that when using a local dielectric constant, the heat flux saturates at distances on the order of the metal infrared skin depth (30 nm for gold) so that non-local corrections do not seem necessary to account for the experiments reported by Kittel et al. (Kittel, 2005). To further investigate this issue, we compute the near-field radiative heat transfer using two non-local models : the Lindhard-Mermin model based on the random phase approximation and its approximation in the Boltzmann-Mermin model. Both longitudinal and transverse non-local dielectric constants are included. The two models account for the Landau damping and contain size informations. We find that the non-local models allow to remove the  $1/d^2$  regime of the flux at short distances  $d$ . Yet, we find that a local calculation agrees well with the non-local ones at gap distances larger than 2 nm. We finally discuss the physical mechanism responsible for the saturation. We show that it is due to the magnetic fields that generate eddy currents.

### V.3 Near-field radiative heat flux using a local dielectric constant

We start the section by summarizing the derivation of the heat flux between two parallel semi-infinite bulks. We do not consider any roughness or tilt between the surfaces. Both semi-infinite media are assumed to be in local thermodynamic equilibrium with temperature  $T_1$  and  $T_2$ . This

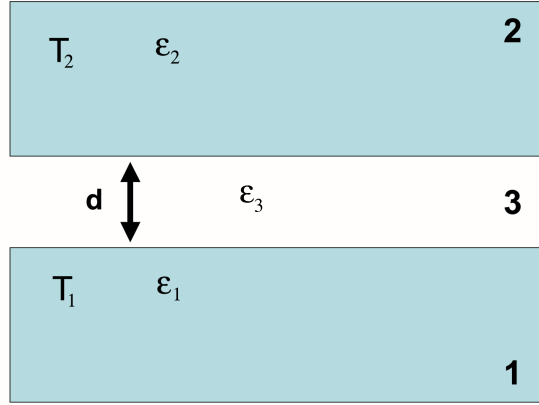


FIG. V.1 – Schematic of the 2 semi-infinite media with a gap

allows to derive the energy radiated by random currents in medium 1 at temperature  $T_1$  and absorbed in medium 2 and vice versa. The model can be extended to inhomogeneous temperature profiles provided that the temperature variation across a distance of the order of the skin depth is negligible. The flux per unit area is given by the normal component of the Poynting vector,

$$\phi = \langle \vec{E}(\vec{r}, t) \times \vec{H}(\vec{r}, t) \rangle \cdot \mathbf{e}_z \quad (\text{V.1})$$

where the position  $\vec{r}$  can be taken at the center of the gap  $z = 0$  and  $\langle \dots \rangle$  denotes a statistical average. Derivations can be found in many articles (Polder, 1971; Polevoi, 1981; Loomis, 1994; Dorofeev, 1997; Pendry, 1999; Volokitin, 2001; Mulet, 2002; Joulain, 2005) and will not be repeated here. The final form of the heat flux is

$$\begin{aligned} \phi &= \int_{\omega=0}^{+\infty} d\omega [I_{\omega}^0(T_1) - I_{\omega}^0(T_2)] \\ &\times \sum_{\alpha=s,p} \left[ \int_0^{\omega/c} \frac{K dK}{\omega^2/c^2} \frac{(1 - |r_{31}^{\alpha}|^2)(1 - |r_{32}^{\alpha}|^2)}{|1 - r_{31}^s r_{32}^{\alpha} e^{2i\gamma_3 d}|^2} \right. \\ &\left. + \int_{\omega/c}^{\infty} \frac{K dK}{\omega^2/c^2} \frac{4 \text{Im}(r_{31}^{\alpha}) \text{Im}(r_{32}^{\alpha}) e^{-2\gamma_3'' d}}{|1 - r_{31}^{\alpha} r_{32}^{\alpha} e^{-2\gamma_3'' d}|^2} \right] \end{aligned} \quad (\text{V.2})$$

where  $d$  is the distance between the two interfaces,  $r_{3m}$  the reflection factor at the interface between medium  $m$  and vacuum (medium 3) for a wave with wave vector  $K$  parallel to the surface and polarization  $\alpha = s, p$ . The wave vector

$$\gamma_m = \sqrt{\epsilon_m \omega^2/c^2 - K^2} = \gamma_m' + i\gamma_m'' \quad (\text{V.3})$$

describes the propagation across medium  $m$ ,  $c$  is the speed of light, and

$$I_{\omega}^0 = \frac{\omega^2}{4\pi^3 c^2} \frac{\hbar\omega}{(e^{\hbar\omega/k_B T} - 1)} \quad (\text{V.4})$$

is the monochromatic specific intensity of blackbody radiation with  $\hbar$ ,  $k_B$  the Planck and Boltzmann constants. We now discuss Eq.(V.3) that contains an integration over the  $(K, \omega)$  plane. This equation naturally displays a splitting of the heat flux into s- and p-polarized waves, and into propagating ( $K < \omega/c$ ) and evanescent waves ( $K > \omega/c$ ). The denominators account for

multiple reflections through a Fabry-Pérot term  $1 - r_{31}^\alpha r_{32}^\alpha e^{-2\gamma_3'' d}$ . The Planck function  $I_\omega^0$  acts as a temperature-dependent frequency filter that cuts off frequencies much larger than  $k_B T/\hbar$ , i.e. beyond the near infrared at room temperature. As  $\gamma_3'' \simeq K$  for large  $K$  parallel wave vectors (deeply evanescent waves), there is also a wave vector filter ( $e^{-2\gamma_3'' d}$ ): wave vectors much larger than  $1/2d$  do not contribute to the heat transfer at small gap sizes. This also implies that at sub-micron distances  $d \ll \lambda_T$ , the evanescent contribution is much larger than the propagating one, leading to an enhanced heat flux.

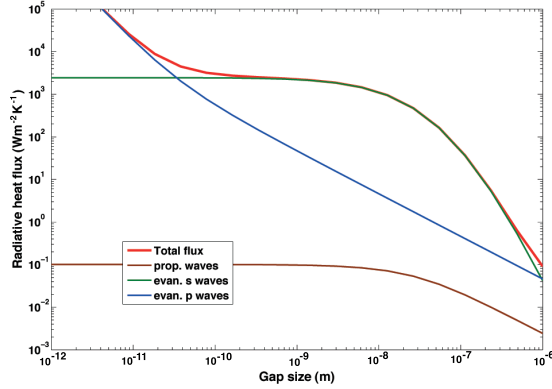


FIG. V.2 – Heat flux per unit area for gold.

We show in Fig.V.2 results obtained using a local dielectric constant. We consider a non-magnetic metallic medium characterized by a Drude model  $\epsilon_{1,2}(\omega) = \epsilon_b - \omega_p^2/(\omega^2 + i\omega\nu)$  where  $\epsilon_b$  accounts for the bound electron contribution,  $\omega_p$  is the plasma frequency and  $\nu$  is the damping coefficient. This model is appropriate for frequencies up to the infrared range where the metallic response is mainly due to the conduction electrons. In this paper, we present results either for gold ( $\epsilon_b = 1$ ,  $\omega_p = 1.71 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$ ,  $\nu = 4.05 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$ ) or for aluminium ( $\epsilon_b = 2$ ,  $\omega_p = 2.24 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$ ,  $\nu = 1.22 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$ , and we use in Sec. (3)  $v_F = c/148$  where  $v_F$  is the Fermi velocity and  $c$  is the light velocity).

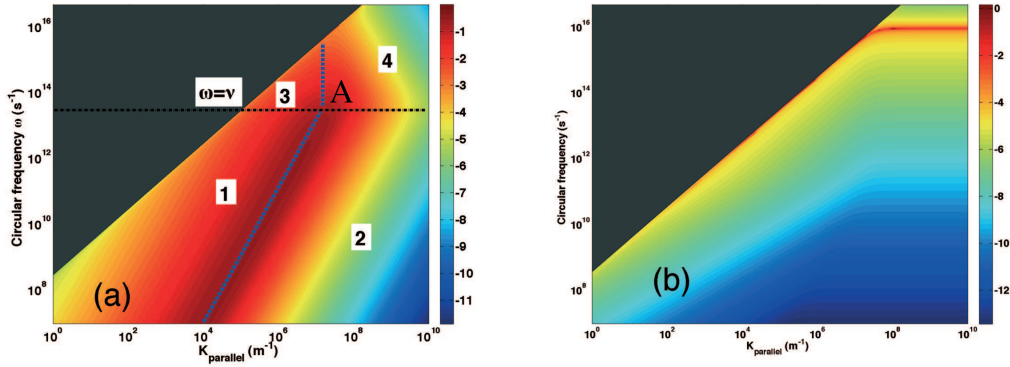
Fig.V.2 demonstrates that the increase of the heat flux levels off below distances of 10-30 nanometers, as was found in previous papers by Polder (Polder, 1971), Loomis (Loomis, 1994) and Volokitin (Volokitin, 2001). The saturation is due to a strong s-polarized contribution. Only for distances below 0.1 nm is the flux dominated by p-polarized waves, but in this regime, the local model is no longer valid (see Fig.V.5 below). We note that in practice, with distances in the nm-range, the s-polarized contribution dominates the heat flux.

We now discuss the behaviour of the reflection coefficients in the  $(K, \omega)$ -plane (see Fig.V.3). This points to the origin of the leading s-wave contribution. We plot the imaginary part of the reflection factors that is proportional to the heat flux [Eq.(V.3)]. In particular, also the local density of electromagnetic states (LDOS) is controlled by the imaginary part of the reflection amplitudes, as discussed in Refs. (Pendry, 1999; Chapuis, 2007)<sup>2</sup>. First of all, we observe that  $\text{Im } r_s(K, \omega)$  covers a larger domain in the  $(K, \omega)$ -plane and takes larger values than its p-polarized counterpart. For the latter reflection coefficient, one has at large  $K$  :

$$\text{Im } r_p^{31} \simeq \frac{\omega\nu\omega_{sp}^2(R+1)}{(\omega_{sp}^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\nu^2} + \mathcal{O}[(\omega\sqrt{\epsilon_1}/cK)^2] \quad (\text{V.5})$$

where  $R = (\epsilon_b - \epsilon_3)/(\epsilon_b + \epsilon_3)$  and  $\omega_{sp}^2 = \omega_p^2/(\epsilon_b + \epsilon_3)$ . If medium 3 is vacuum and the background polarization is negligible,  $R = 0$ , and the surface plasmon-polariton resonance occurs at  $\omega_{sp} = \omega_p/\sqrt{2}$ . This resonance implies a peak in the near-field radiation spectrum (Joulain, 2005) as seen

<sup>2</sup>La dépendance est étudiée au chapitre suivant.



**FIG. V.3** – (a) Imaginary part of the  $s$  (TE) reflection coefficient for gold. The color bar indicates the order of magnitude (logarithmic scale). The diagonal line (light cone) is the limit between the here non-plotted propagative waves  $K < \frac{\omega}{c}$  and the evanescent waves ( $K > \frac{\omega}{c}$ ). The black dotted line gives the frequency  $\omega = \nu$  and the blue dotted lines give the limits between the contributing domain and the one of very large  $K$ . (b) Imaginary part of the  $p$  (TM) reflection coefficient for gold. The color bar scales the order of magnitude (logarithmic scale). The plasmon resonance occurs near  $\omega_{sp} = \omega_p/\sqrt{2} \approx 1.2 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$ .

in Fig.V.3. It lies for typical metals in the UV, way above the frequency range that contributes significantly to the heat flux. Note that the asymptotics (V.5) becomes relevant only for extremely large  $K$ -vectors where  $K \gg \omega\sqrt{\epsilon_1}/c \gg \omega/c$ , this is why the p-polarization becomes dominant only at very short distances (see Fig.V.2). For the s-polarization, we have in the same range of  $K$ ,

$$\text{Im } r_s^{31} \simeq \frac{\omega^2/c^2}{4K^2} \frac{\omega_p^2 \nu}{\omega(\omega^2 + \nu^2)} + \mathcal{O}[(\omega\sqrt{\epsilon_1}/cK)^4] \quad (\text{V.6})$$

which tends to zero like  $1/K^2$ . This is the reason why the s-polarized contribution is often discarded when looking at the asymptotic behaviour (Ford, 1984). But as shown on Fig.V.3(a), there is a region where  $\text{Im}(r_s)$  has large values before decaying, corresponding to the wide interval  $\omega/c \ll K \ll \sqrt{|\epsilon_1|}\omega/c$ . We detail in the Appendix the behaviour of the reflection coefficient and how to find the borders of the regions sketched in Fig.V.3(a). The result is an upper wave vector given by

$$K_{\max} \approx \frac{\omega_p}{c} \quad (\text{V.7})$$

Thus, we predict a saturation of the s-polarized heat transfer at gap distances smaller than

$$d_{\min} = \frac{c}{\omega_p} = \frac{\delta(\omega \gg \nu)}{\sqrt{2}} \quad (\text{V.8})$$

where the metal skin depth  $\delta$  is defined by  $1/\delta(\omega) = (\omega/c)\text{Im}\sqrt{\epsilon}$ . For frequencies between  $\nu$  and  $\omega_p$ ,  $\delta \simeq c/\omega_p$ . For gold, the skin depth in this region is  $\delta = \sqrt{2}c/\omega_p \approx 25 \text{ nm}$ . It follows that the saturation distance is given by the skin depth at frequencies higher than  $\nu$ . We note that for gold,  $d_{\min} \simeq 18 \text{ nm}$ . This is of the same order of magnitude as the cut-off distance in the experiment of Kittel et al. (Kittel, 2005), and, incidentally, also comparable to the electron mean free path. To summarize this section, we have found that the derivation of the heat flux between two metallic surfaces using a local dielectric constant predicts a saturation of the flux at a distance given by the skin depth.

## V.4 Near-field radiative heat flux using a non-local model

We now turn to a non-local description of the heat transfer. There are several reasons to investigate the role of non-local effects in the heat transfer. First of all, non-local effects becomes significant at short distances. It has been shown that non-locality can explain the anomalous skin effect<sup>3</sup> and has a very important effect on the lifetime of an excited atom or particle near a surface (Ford, 1984; Larkin, 2004; Larkin, 2005). It has been seen that it has a significant impact in the problem of near-field friction (Volokitin, 2003). It has also been suggested that saturation of the heat flux could be due to non-local effects (Kittel, 2005). In addition, it is desirable to analyze the interplay between the skin depth found above and the mean free path.

Temporal dispersion (i.e., frequency dependence of optical properties) appears when the electromagnetic (EM) field varies on a timescale comparable to the microscopic timescales of the medium where it propagates. A non-local behaviour (i.e. spatial dispersion or  $k$ -dependence of the optical properties) is expected if the EM field varies appreciably on length scales given by the microscopic structure of the medium.

For metals, there are several microscopic length scales related to the Fermi velocity  $v_F$  of the conduction electrons. A first one is the electron mean free path  $v_F/\nu$ , typically 20 nm for gold at ambient temperature in the bulk. The second one is the charge screening length in a plasma of electrons called the Thomas-Fermi length, on the order of  $v_F/\omega_p$ . A third length is the Fermi wavelength  $1/k_F = \hbar/m_*v_F$  (where  $m_*$  is the effective mass of the electron). It sets a lower limit for the spatial variations of the electron density in the metal and is often comparable to the Thomas-Fermi length. The fourth characteristic length is the distance  $v_F/\omega$  travelled by an electron during one period of an applied EM field. This length governs an enhanced absorption by evanescent waves with  $K > \omega/v_F$ . This process is called Landau damping and consists in the creation of electron-hole pairs by absorption of photons.

In order to account for the bulk effects we use two different dielectric functions : the Lindhard-Mermin (LM) and the Boltzmann-Mermin (BM) formulae (Ford, 1984). The LM dielectric function is also known, e.g., as the random phase approximation (RPA) (Ford, 1984), Kliewer-Fuchs (Lindhard, 1954; Kliewer, 1969; Fuchs, 1969)<sup>4</sup> constants or jellium ones. Other types of non-local dielectric functions are possible : the hydrodynamic model is an approximation at small wave number (Halevi, 1995); Feibelman's model (Feibelman, 1982) focusses on surface effects and has difficulties in taking bulk absorption into account, which is playing a significant role in heat transfer. We follow the notations of Ford and Weber for the longitudinal and transverse dielectric functions (Ford, 1984)<sup>5</sup>

$$\epsilon_t^{LM}(k, \omega) = \epsilon_b + \frac{3\omega_p^2}{\omega + i\nu} \frac{u^2 f_t(z, u)}{\omega + i\nu \frac{f_t(z, u)}{f_t(z, 0)}} \quad (\text{V.9})$$

$$\epsilon_t^{LM}(k, \omega) = \epsilon_b - \frac{\omega_p^2}{\omega^2(\omega + i\nu)} \{ \omega [f_t(z, u) - 3z^2 f_t(z, 0)] + i\nu [f_t(z, 0) - 3z^2 f_t(z, 0)] \} \quad (\text{V.10})$$

where  $\epsilon_b$  is the bulk contribution to the dielectric constant. It describes the interband contributions and it is constant in the following as these transitions do not play any role in the frequency range

<sup>3</sup>First articles are due to (Pippard, 1947; Reuter, 1948).

<sup>4</sup>The formulae are corrected in (Mermin, 1970; de Andr s, 1986).

<sup>5</sup>Note a mistake in formula (2.29) corrected for example in Ref. (Svetovoy, 2004).



that we address. The Lindhard functions  $f_{l,t}(z, u)$  have arguments  $z = k/2k_F$  and  $u = (\omega + i\nu)/kv_F$  with  $k_F$  the Fermi wave vector, and are given by

$$f_l(z, u) = \frac{1}{2} + \frac{1 - (z - u)^2}{8z} \ln \frac{z - u + 1}{z - u - 1} + \frac{1 - (z + u)^2}{8z} \ln \frac{z + u + 1}{z + u - 1} \quad (\text{V.11})$$

$$f_t(z, u) = \frac{3}{8}(z^2 + 3u^2 + 1) - 3 \frac{[1 - (z - u)^2]^2}{32z} \ln \frac{z - u + 1}{z - u - 1} - 3 \frac{[1 - (z + u)^2]^2}{32z} \ln \frac{z + u + 1}{z + u - 1} \quad (\text{V.12})$$

The limit  $u \rightarrow 0$  has to be taken with a positive imaginary part so that

$$f_l(z, 0) = \frac{1}{2} + \frac{1 - z^2}{4z} \ln \left| \frac{z + 1}{z - 1} \right| \quad (\text{V.13})$$

and

$$f_t(z, 0) = \frac{3}{8}(z^2 + 1) - 3 \frac{(1 - z^2)^2}{16z} \ln \left| \frac{z + 1}{z - 1} \right| \quad (\text{V.14})$$

A semiclassical approximation of these formulae is obtained for wave vectors  $k$  much smaller than  $k_F$ , taking  $z = 0$ . This gives the Boltzmann-Mermin formulae

$$\epsilon_l^{BM}(k, \omega) = \epsilon_b + \frac{3\omega_p^2}{\omega + i\nu} \frac{u^2 f_l(0, u)}{\omega + i\nu f_l(0, u)} \quad (\text{V.15})$$

$$\epsilon_t^{BM}(k, \omega) = \epsilon_b - \frac{\omega_p^2}{\omega^2(\omega + i\nu)} f_t(0, u) \quad (\text{V.16})$$

where

$$f_l(0, u) = 1 - \frac{u}{2} \ln \frac{u + 1}{u - 1} \quad (\text{V.17})$$

and

$$f_t(0, u) = \frac{3}{2}u^2 - \frac{3}{4}u(u^2 - 1) \ln \frac{u + 1}{u - 1} \quad (\text{V.18})$$

A few remarks are in order here. First, the Drude formula is recovered at small  $k$  ( $u$  large and  $z$  small). Second, the variable  $u$  compares  $k$  to a combination of the mean free path  $v_F/\nu$  and the distance covered by an electron during a period of the field  $v_F/\omega$ , that can be considered as an "effective mean free path" (Henkel, 2006). Third, at very large wave vectors, the logarithms in Eqs.(V.17,V.18) describe Landau damping. Indeed, even for  $\nu = 0$ , they imply  $\text{Im}(\epsilon) > 0$  for  $k > \omega/v_F$  (Larkin, 2004). Finally, it is seen that at very large wave vectors, there is a sharp cut-off in the imaginary parts of the Lindhard-Mermin dielectric functions :

$$\epsilon_t^{LM}(k \gg k_F) = \epsilon_b + \frac{8\omega_p^2 k_F^2}{5\omega^2 k^2} + i\nu \frac{4\omega_p^2 k_F^2}{\omega v_F^2 k^4} \quad (\text{V.19})$$

$$\epsilon_l^{LM}(k \gg k_F) = \epsilon_b + \frac{4\omega_p^2 k_F^2}{v_F^2 k^4} + i\nu \frac{16\omega\omega_p^2 k_F^4}{v_F^4 k^8}. \quad (\text{V.20})$$

Thus, fields oscillating with spatial periods smaller than half the Fermi wavelength cannot be screened by the electron plasma.

We now account for microscopic surface effects that modify the reflection amplitudes. For the sake of simplicity, we use the infinite barrier model (also known as SCIB) that considers that electrons undergo specular reflection at the boundary (Ford, 1984). A model considering diffuse reflection of electrons is also available (Nazarov, 1997). In our specular case, the reflection coefficients are computed in terms of surface impedances as follows

$$r_p^{31} = \frac{\gamma_3/\omega\epsilon_3 - Z_p}{\gamma_3/\omega\epsilon_3 + Z_p} \quad (\text{V.21})$$

$$r_s^{31} = \frac{Z_s - \omega/c^2\gamma_3}{Z_s + \omega/c^2\gamma_3} \quad (\text{V.22})$$

with

$$\begin{aligned} Z_s(K, \omega) &= \frac{1}{c} \frac{(\vec{z} \times \vec{K}) \cdot \vec{E}_1}{\vec{K} \cdot \vec{B}_1} \\ &= \frac{2i}{\pi\omega} \int_0^\infty dq_z \frac{1}{\epsilon_t(k, \omega) - (ck/\omega)^2} \end{aligned} \quad (\text{V.23})$$

$$\begin{aligned} Z_p(K, \omega) &= \frac{-1}{c} \frac{\vec{K} \cdot \vec{E}_1}{(\vec{z} \times \vec{K}) \cdot \vec{B}_1} \\ &= \frac{2i}{\pi\omega} \int \frac{dq_z}{k^2} \left( \frac{q_z^2}{\epsilon_t(k, \omega) - (ck/\omega)^2} + \frac{K^2}{\epsilon_l(k, \omega)} \right) \end{aligned} \quad (\text{V.24})$$

where under the integral,  $k^2 = K^2 + q_z^2$ .  $\vec{K}$  is the unit vector in the direction of the parallel wave vector  $K$ . As we account for spatial dispersion by using a non-local model, the reflection coefficients depend on  $\omega$  and  $K$  in a more complicated way than the Fresnel formulas.

One should note that in this approach, we do not tackle several effects that occur on the atomic (sub-nm) scale. The electron density, which is modified near the interface, is treated here with a step form and the addition of surface currents (Lindhard, 1954; Ford, 1984). Several authors (Feibelman, 1982; Ford, 1984) showed that a self-consistent calculation leads to a continuous variation of the electron density between the bulk density and vacuum and that this can be described by an effective mean displacement of the surface, of the order of a few angströms. Phenomena like electron tunneling also occur as the two surfaces approach each other on this scale and mutually influence their electron density profiles. We do not take this tunneling into account as it is clearly negligible in the nanometer range.

We show on Fig. V.4(a) the imaginary part of  $r_p$ , at fixed  $\omega$ . It is related to the local LDOS (see section IV). An interesting finding is that the local description leads to a plateau for large  $K$  (non-retarded approximation) that does not agree for any value of  $K$  with the non-local model. The local quasistatic approximation that has been often used, thus yields an incorrect value of  $\text{Im}(r_p)$  for a very broad range of frequencies. The curve labelled ‘longitudinal quasistatic’ is based on neglecting the first term in Eq.(V.25), involving the transverse part of the dielectric function. We see that this term nevertheless contributes at wave vectors  $K < 1/\delta(\omega) \approx 10^8 \text{ m}^{-1}$ . For larger  $K$ , the non-local calculation leads to an increase of  $\text{Im} r_p$  by roughly one order of magnitude, that we attribute to Landau damping. Finally, we observe that for wave vectors larger than  $k_F \approx 10^{10} \text{ m}^{-1}$ , the non-local models predict a strong decay of  $\text{Im}(r_p)$  as compared to the local model.

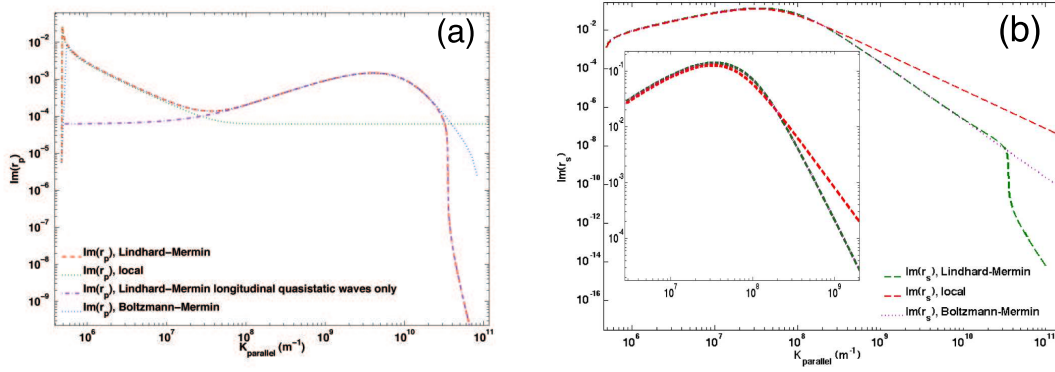


FIG. V.4 – (a) Imaginary part of the  $p$  (TM) reflection factor for aluminium for  $\omega = 1.4 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$ . (b) Imaginary part of the  $s$  (TE) reflection factor for aluminium for  $\omega = 1.4 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$ .

The  $s$ -polarized reflection coefficient  $\text{Im}(r_s)$  is plotted in Figure V.4(b). Differences to the local calculation are barely visible in the domain  $K < 5 \cdot 10^8 \text{ m}^{-1}$  where  $\text{Im}(r_s)$  takes significant values and contributes to the heat transfer. We thus expect only small corrections to heat transfer from the non-local models.

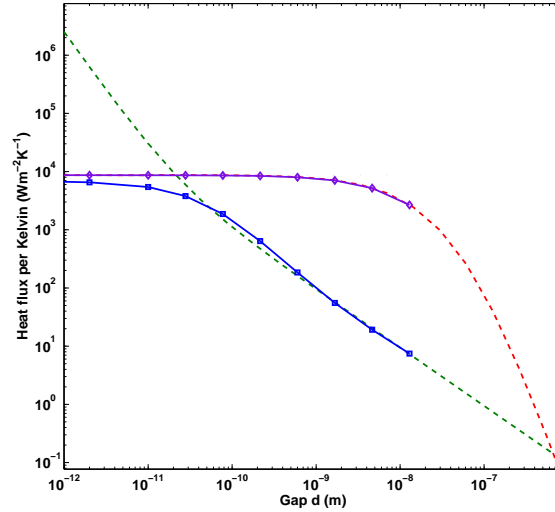
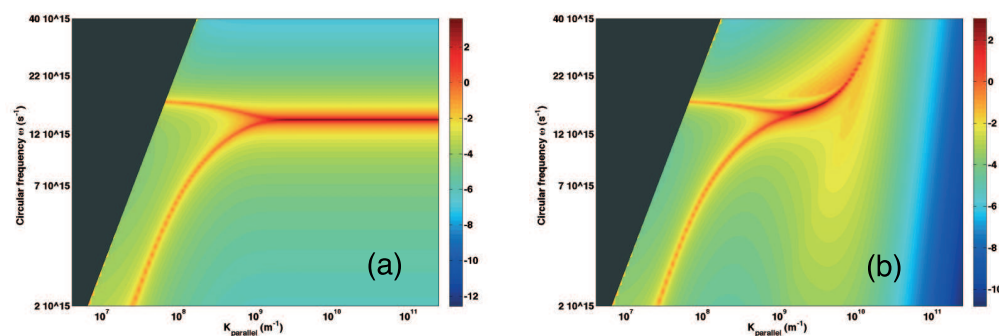


FIG. V.5 – Radiative heat flux between two parallel surfaces of aluminium. The non-local calculations Boltzmann-Mermin and Lindhard-Mermin are superimposed. The dotted lines are the local  $s$  (red) and  $p$  (green) results, the plain lines are the non-local  $s$  (violet) and  $p$  (blue) results.

Figure V.5 presents the heat flux as a function of the gap distance. We display the fluxes due to  $s$  and  $p$  polarizations when using both a local and the two non-local models introduced above. Although the validity of the models is questionable for distances smaller than 1 nm, we display the flux at smaller distances in order to analyze their physical content when  $d \rightarrow 0$ . What is important here is that the local and non-local heat fluxes are identical up to distances on the order of the Thomas-Fermi length  $v_F/\omega_p$ . It appears that the small modifications of  $\text{Im}(r_s)$  give the same final result after integration over  $K$  and  $\omega$ . A small increase of the heat flux (Volokitin, 2001) due to the onset of Landau damping is observed in the  $p$ -polarized contribution, but in a regime where  $s$ -waves dominate and level off. Another observation is that the two non-local models are superimposed, showing that the Thomas-Fermi length is sufficient to describe the large  $K$  decay

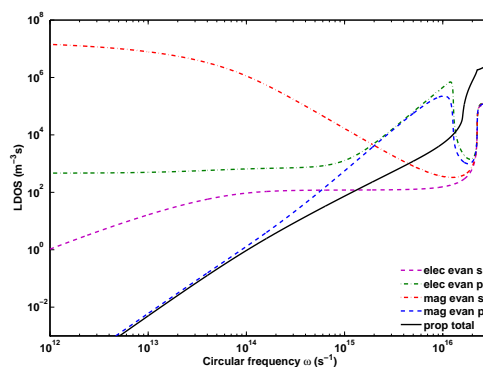
of the dielectric constant. Finally, at very short distances (below the Thomas-Fermi length or the Fermi wavelength), the non-local models remove the  $1/d^2$  regime of the p-polarized flux.

We now illustrate how the non-local models suppress this  $1/d^2$  dependence. We have plotted in Fig.V.6 the p-polarized contribution to the heat flux in the  $(K, \omega)$ -plane, but removing the decay term  $e^{-2\text{Im}(\gamma_3)}$  and the Planck function  $I_\omega^0(T)$  that act as filters. What we plot is thus  $\text{Im}(r_p^{31})^2/|1 - (r_p^{31})^2 e^{-2\gamma_3'' d}|^2$ . Figs.V.6 show a locus that follows the dispersion relation of the surface plasmon-polariton. It is seen that it has two branches (Sernelius, 2005; Economou, 1969). They split at a wave vector of order  $1/d$  that is pushed towards large  $K$  as the gap size is decreased. When non-locality is included, the flat asymptote at frequency  $\omega_{sp} = \omega_p/\sqrt{2}$  for large values of  $K$  becomes dispersive and approaches  $\omega = v_F K$  in Fig.V.6(b). But what is important here is that the far IR branch of the resonance will not be able to be shifted to the large  $K$  region when the gap size decreases because of the cut-off at  $\omega = v_F K$ . This removes the divergence of the heat flux due to the p-polarized evanescent contribution in Eq.V.3 when  $d \rightarrow 0$ . It provides an intrinsic cutoff at large  $K$  which is different from the distance  $d$ .



**FIG. V.6** – Plot of the expression  $\text{Im}(r_p^{31})^2/|1 - r_p^2 e^{-2\gamma_3'' d}|^2$  that appears in the integrand (V.3) of the heat flux for evanescent waves ( $K > \omega/c$ ). The gap size is here 2 nm. The colorbar is in logarithmic scale. (a) Local model. (b) Non-local Boltzmann-Mermin model. A Lindhard-Mermin model would cut more strongly the integrand at large parallel wave vectors.

The main conclusion of this section is that the local calculation is in practice sufficient when computing heat fluxes between two metallic surfaces a few nanometers apart. The second conclusion is that non-locality removes the universal heat flux divergence at short distance as expected.



**FIG. V.7** – Local density of states near an aluminium interface, calculated with local-optics at a distance  $d = 30$  nm from the surface

## V.5 Discussion and concluding remarks

In this last section, we try to gain some insight on the physical mechanisms responsible for the near-field heat transfer in s-polarization between two parallel interfaces. We have plotted in Figure V.7 the LDOS (Joulain, 2003; Joulain, 2005) near a metallic/vacuum interface in vacuum. We recall that the local density of energy is the product of the LDOS by the mean energy of an oscillator given by  $\hbar\omega/(e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1)$ . The LDOS is split in four contributions : magnetic and electric fields, s- and p-polarization. For instance, the contribution of the evanescent s-polarized magnetic field to the LDOS is given by

$$\rho_s^M(z, \omega) = \rho_v \int_{\omega/c}^{+\infty} \frac{dK}{2|\gamma_3|} \frac{cK}{\omega} f(K, \omega) \text{Im}(r_s) e^{-2\gamma_3'' z} \quad (\text{V.25})$$

where  $\rho_v(\omega) = \omega^2/\pi^2 c^3$  is the vacuum density of states and  $f(K, \omega) = 2(\frac{cK}{\omega})^2 - 1$ . Again, the properties of the material control the LDOS via  $\text{Im}(r_s)$ . Fig.V.7 shows that the propagating terms are negligible. Furthermore, the leading contribution in the infrared ( $\omega \approx 10^{13} \dots 10^{15} \text{ s}^{-1}$ , where the room-temperature thermal spectrum peaks) is clearly due to s-polarized magnetic fields. It follows that a metallic half-space generates a very large magnetic energy in a vacuum close to the surface. This quantity is relevant to analyze the heat transfer through an interface. Indeed, as the magnetic field is continuous through an interface with a non-magnetic material, the magnetic field penetrates without reflection.

The large value of the magnetic density of energy due to s-polarized waves near a metallic interface has been discussed recently (Chapuis, 2007)<sup>6</sup>. Whereas the ratio  $c|\vec{B}|/|\vec{E}|$  takes a fixed value of 1 for propagating waves, it becomes frequency-dependent for evanescent waves ( $K/k_0 > 1$ ). For s-polarized evanescent waves, one can show using the Maxwell-Faraday equation that this ratio is given by  $\sqrt{f(K, \omega)} \simeq \sqrt{2} K/k_0$ . Magnetic fields dominate in s-polarization. For p-polarized waves, the opposite trend  $|\vec{E}|/c|\vec{B}| \simeq \sqrt{f(K, \omega)}$  is found, showing that electric fields dominate. If we want to know which of the magnetic s-polarized waves or the electric p-polarized waves give the leading contribution to the LDOS, we have to compare the products  $f(K, \omega)\text{Im}(r_s)$  and  $f(K, \omega)\text{Im}(r_p)$ . As we have seen, the s-polarized reflection coefficient is larger than than  $\text{Im}(r_p)$  for a metal at infrared frequencies and below, so that finally, the LDOS is dominated by its s-polarized magnetic component as seen on Fig.V.7.

The large magnetic fields can be traced back to the current density in the material. In s-polarization, the electric field  $\vec{E}$  is tangential to the metallic interface and therefore continuous. It drives a surface current flowing within the skin depth  $\delta$ , with an amplitude roughly given by  $\sigma E$ . This suggests the following mechanism for the heat transfer between metallic surfaces : fluctuating currents flowing parallel to the interface within the skin depth in medium 1 generate large magnetic fields at IR frequencies. These fields penetrate into medium 2 and generate large eddy currents which are dissipated by the Joule effect. In other words, radiative heat transfer in the near field is similar to nanoscale induction heating at infrared frequencies.

We have seen in section 2 that the skin depth plays a key role (Henkel, 2000). The above argument provides a simple picture for the phenomenon. The skin depth depends on the frequency. We stress that the cutoff distance seen by Kittel (Kittel, 2005) and that we found above is linked to the skin depth evaluated at the frequencies contributing to the largest parallel wave vectors,  $\omega \approx \nu$ . For gold, this skin depth is  $\delta = \sqrt{2}c/\omega_p \approx 25 \text{ nm}$ . Our analysis leads to a number of predictions that should be measurable. Measurements of the heat transfer such as reported by Kittel should be able to detect the skin depth dependence by changing the metals. As seen on Figure V.8, the plasma frequencies of a number of metals are not very different. They all give (local) cut-off distances in

<sup>6</sup>Cette discussion est présentée au chapitre suivant.

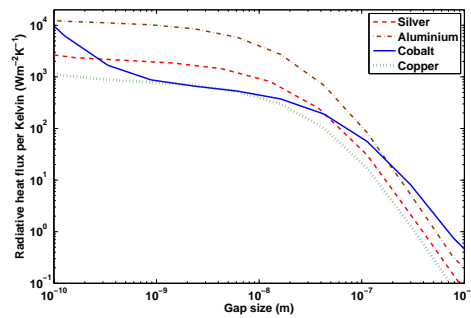


FIG. V.8 – Heat flux per unit area and per Kelvin for different metals

the range of 10 to 200 nm. The differences should be measurable. A material like cobalt is expected to saturate at larger distances than metals like copper, gold or aluminium. Interestingly, cobalt could also be a test-case study for the saturation due to non-locality as the p-polarized contribution becomes larger than the s-polarized contribution near 1 nm. Another interesting issue is the heat flux between two different metals. We expect a saturation distance governed by the smallest skin depth due to the product  $\text{Im}(r_s^{31})\text{Im}(r_s^{32})$  in the heat flux formula.

To summarize, we have shown that the radiative heat flux between two parallel metallic surfaces saturates when the gap size reaches a distance equal to the skin depth at a frequency equal to  $\nu$ . We have shown that the leading contribution to the flux is due to eddy currents generated in the medium. The non-local effects have been studied. They do not significantly affect the s-polarized fields but introduce a cut-off in the  $K$  dependence of the p-polarized fields. This cut-off removes the  $1/d^2$  dependence of the flux at short distances. As the s-polarized fields dominate the heat transfer between metallic surfaces, the non-local corrections are negligible. Finally, we observed that the cut-off distances seem to be in the range of 10 to 200 nm for many metals.

## V.6 Appendix

We explain in this section how we estimate the limits of the domain in the  $(K, \omega)$  plane where  $\text{Im}(r_s)$  contributes to the heat flux. As is shown on Figure V.3, the  $(K, \omega)$  plane can be divided into four areas. Point A is the intersection of the 4 borders. In all the cases, we consider only evanescent waves :  $K \gg k_0$  with  $k_0 = \omega/c$ .

We address first the division of the  $(K, \omega)$  plane between large  $K$  and smaller values. This underlines the different behaviours of regions 1 and 3 on one hand, and regions 2 and 4 on the other hand. The perpendicular wave vector  $\gamma_1$  is given by

$$K^2 + \gamma_1^2 = \epsilon_1 k_0^2 \quad (\text{V.26})$$

where  $k_0 = \omega/c$ . This shows that we have two regimes. To leading order, we have  $\gamma_1^2 \simeq -K^2$  at very large  $K$  (regions 2 and 4) and  $\gamma_1^2 \simeq \epsilon_1 k_0^2$  at smaller  $K$  (region 1 and 3). The transition occurs at a critical wave vector  $K^2 \simeq |\epsilon_1 k_0^2|$ . This gives a critical wave vector given by

$$K_c(\omega) = \sqrt{|\epsilon_1(\omega)|} k_0 \approx \frac{\omega_p}{c} \sqrt{\frac{\omega}{|\omega + i\nu|}} \quad (\text{V.27})$$

where the last equality applies to the Drude model at frequencies  $\omega \ll \omega_p/\sqrt{\epsilon_b}$ . Values of  $r_s$  in both regimes are now given. To leading order, one finds

$$r_s \approx \begin{cases} -1 - 2\frac{iK}{\sqrt{\epsilon_1} k_0} & (\text{region 1,3}) \\ \frac{k_0^2}{4K^2}(\epsilon_1 - 1) & (\text{region 2,4}) \end{cases} \quad (\text{V.28})$$

At large  $K$ ,  $\text{Im}(r_s)$  decreases to small values that do not contribute significantly to the heat flux integral.

We address now the horizontal division of Fig.V.3. The upper region is given by domains 3 and 4 and the lower one by domains 1 and 2. This limit is due to the different behaviours of  $\epsilon(\omega)$  if  $\omega \ll \nu$  (domains 1 and 2) or  $\omega \gg \nu$  (domains 3 and 4). The first two asymptotic orders are

$$\epsilon_1(\omega) \approx \begin{cases} i\omega_p^2/\omega\nu - \frac{\omega_p^2}{\nu^2} & (\text{region 1,2}) \\ -\frac{\omega_p^2}{\omega^2} + i\frac{\omega_p^2\nu}{\omega^3} & (\text{region 3,4}) \end{cases} \quad (\text{V.29})$$

The low-frequency expression is also known as the Hagen-Rubens formula. In Table V.1, we give the corresponding asymptotics for  $\text{Im} r_s$  in the four regions.

As a function of frequency, the critical wave vector behaves like  $K_c \approx (\omega_p/c)(\omega/\nu)^{1/2}$  in the far infrared (small frequencies) and like  $K_c \approx \omega_p/c$  for larger frequencies. These two lines cross at  $\omega \approx \nu$  which is the point A marked in Fig.V.3. At this point, the imaginary part of  $r_s(K, \omega)$  reaches its maximum.

According to Eq.(V.27),  $\text{Im}(r_s)$  takes significant values for  $K$  lower than  $K_c = \omega_p/c$ . This limit yields a saturation length  $1/K_c = c/\omega_p$ . Note that this length is related to the skin depth as  $\delta = \frac{1}{\text{Im}(\sqrt{\epsilon_1} k_0)} \simeq \frac{c}{\sqrt{2}\omega_p}$ . At low frequencies (regions 1 and 2),  $\epsilon$  is purely imaginary, leading to  $\delta \simeq \sqrt{2}/K_c$ , while in the high frequency regions 3 and 4,  $\delta \simeq 1/K_c$ . Hence, at each frequency, the cutoff wave vector is essentially given by the inverse skin depth.

Region	Characteristics	$\text{Im}(r_s)$
1	far IR, small $K$	$\frac{\sqrt{2}\nu c}{\omega_p} \frac{K}{\sqrt{\omega}}$
2	far IR, large $K$	$\frac{\omega_p^2}{4\nu c^2} \frac{\omega}{K^2}$
3	near IR, small $K$	$\frac{\nu c}{\omega_p} \frac{K}{\omega}$
4	near IR, large $K$	$\frac{\omega_p^2 \nu}{c^2} \frac{1}{\omega K^2}$

**TAB. V.1** – *Asymptotic behaviour of  $\text{Im}(r_s)$ . A local Drude model is taken for  $\epsilon(\omega)$  with plasma frequency  $\omega_p$  and relaxation rate  $\nu$ .*





## Chapitre VI

Contribution dipolaire magnétique à la puissance radiative de champ proche échangée entre une nanoparticule et un substrat

Ce chapitre est une version légèrement modifiée d'un article soumis pour publication, dont les coauteurs sont Marine Laroche, Sebastian Volz et Jean-Jacques Greffet.

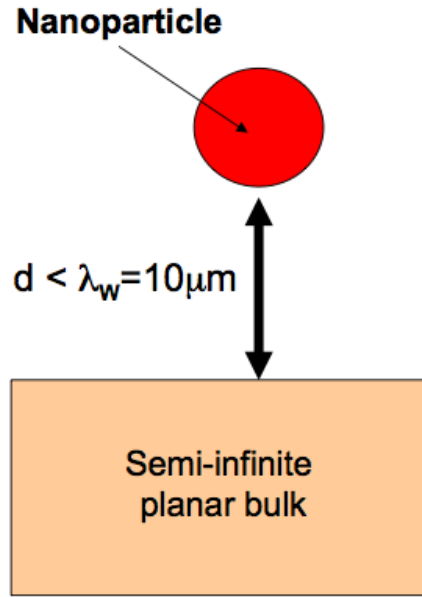
## VI.1 Abstract

We calculate the electromagnetic heat transfer between a metallic spherical particle and a metallic semi-infinite substrate. For infrared and microwave frequencies, we find that the magnetic polarizability of the particle is higher than the electric one. We also find that the local density of states in the near field is dominated by the magnetic contribution. As a consequence, the power absorbed by the particle in the near field is due to dissipation by fluctuating eddy currents. These results show that a number of near-field effects involving metallic particles should be affected by the fluctuating magnetic fields.

## VI.2 Introduction

A lot of attention has been devoted recently to the interaction between atoms, nanoparticles or AFM tips and surfaces, which is mediated by fluctuating thermal fields. Advances have been done in the comprehension of different phenomena such as Casimir-Polder forces (Failache, 1999; Henkel, 2002; Antezza, 2005; Obrecht, 2007), friction forces (Dorofeyev, 1999; Zurita-Sanchez, 2004; Volokitin, 2005; Volokitin, 2006) or power exchange between these small particles and surfaces. All these phenomena have to be described in the framework of fluctuational electrodynamics introduced by (Rytov, 1989). The heat flux between two bodies (Cravalho, 1967; Polder, 1971; Caren, 1974; Polevoi, 1981; Loomis, 1994; Dorofeyev, 1998; Volokitin, 2001; Mulet, 2002; Park, 2002; Volokitin, 2004) was shown to be dramatically enhanced when their separation distance becomes smaller than  $10\mu\text{m}$ . It was found that evanescent waves yield the leading contribution to the heat flux. Experiments have been reported demonstrating these effects (Hargreaves, 1969; Mueller-Hirsch, 1999; Kittel, 2005). It has also been predicted that this heat transfer could have a very narrow energy spectrum (Mulet, 2001b; Mulet, 2002; Park, 2002) due to surface electromagnetic waves. A possible application to design near-field energy converters has been studied by several authors ((Laroche, 2006) and references therein). Other potential applications deal with the transfer between a small particle and a substrate. The possibility of heating locally a surface can be used for magnetic storage (Hamann, 2004), and for lithography (Pendry, 1999; Chimmalgi, 2002).

Electric dipole approximation has been used to investigate heat transfer between a nanoparticle and a surface (Dorofeyev, 1997; Pendry, 1998; Volokitin, 2002; Dedkov, 2002; Pendry, 1999; Dorofeyev, 1998; Volokitin, 2001; Mulet, 2001b). It has also been used to model microwave heating of metallic nanoparticle for remote control of DNA (Hamad-Schifferli, 2002). The electric dipole moment of a sphere with radius  $R$  and dielectric constant  $\epsilon_r$  is generally assumed to give the leading contribution because it varies like  $(R/\lambda)^3$  whereas the next term in the Mie expansion varies as  $(R/\lambda)^5$  ( $\lambda$  is the wavelength in vacuum) (Van de Hulst, 1981). In this paper, we revisit the heat



**FIG. VI.1** – Configuration of this study : a metallic nanoparticles lies in vacuum in front of a planar substrate. The distance between its center and the surface is  $d$ .

transfer between a surface and a metallic nanoparticle. We shall show that the magnetic dipole of a metallic nanoparticle yields the dominant contribution to the heat transfer. We shall finally emphasize that the electric and magnetic contributions do not yield the same distance dependence of the flux.

### VI.3 Absorption by a metallic nanoparticle

Let us first compute the power absorbed by a small metallic particle. In what follows, we will use an isotropic, homogeneous and local form of the complex dielectric constant. To lowest order in  $R/\lambda$  (Van de Hulst, 1981), the particle can be described by its electric dipolar moment  $\vec{p}$ . We define a complex polarizability  $\alpha_E$

$$\vec{p} = \alpha_E \epsilon_0 \vec{E}, \quad (\text{VI.1})$$

where  $\epsilon_0$  is the dielectric permittivity in vacuum and  $\vec{E}$  is the external electric field. Another contribution is given by the magnetic dipolar moment  $\vec{m}$  characterized by its magnetic polarizability  $\alpha_H$

$$\vec{m} = \alpha_H \vec{H}, \quad (\text{VI.2})$$

where  $\vec{H}$  is the external magnetic field. Higher multipoles can be neglected if  $|\epsilon_r| \gg 1$  and  $R/\lambda \ll 1$ . The contributions of the electric and magnetic dipoles to the power dissipated in the particle at a positive frequency  $\omega$  are given by (Landau, 1984; Joulain, 2005)

$$P_{abs}^E(\omega) = \omega 2\text{Im}(\alpha_E) \epsilon_0 \frac{\langle |\vec{E}|^2 \rangle}{2}, \quad (\text{VI.3})$$

$$P_{abs}^M(\omega) = \omega 2\text{Im}(\alpha_H) \mu_0 \frac{\langle |\vec{H}|^2 \rangle}{2} \quad (\text{VI.4})$$

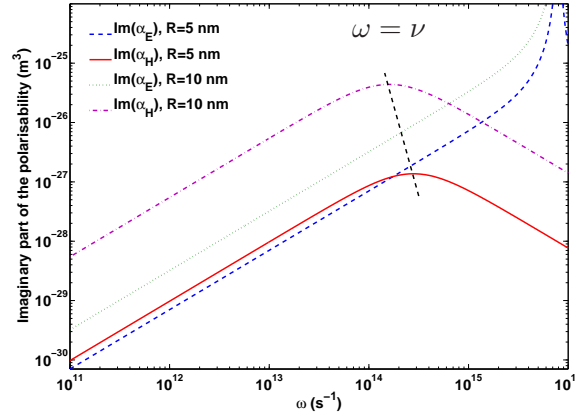
where  $\mu_0$  is the magnetic permittivity in vacuum.  $\alpha_E$  and  $\alpha_H$  can be found in ref. (Mulholland, 1994) :

$$\alpha_E = 4\pi R^3 \frac{\epsilon_r - 1}{\epsilon_r + 2}, \quad (\text{VI.5})$$

$$\alpha_H = \frac{2\pi}{15} R^3 \left( \frac{2\pi R}{\lambda} \right)^2 (\epsilon_r - 1), \quad (\text{VI.6})$$

where  $\epsilon_r$  is the relative dielectric permittivity. Here, we do not take into account the diamagnetism of the material. Instead, the magnetic dipole moment is due to eddy currents in the particle. The polarisabilities are calculated assuming that  $R$  is much smaller than the skin depth  $\delta$ . A different form (Landau, 1984) can be derived when dealing with particles such that  $\delta \ll R \ll \lambda$ . In what follows, we should keep in mind that the dipole model is a fair approximation provided that the distance  $d$  between the center of the particle and a surface is much larger than  $R$ .

As seen from Eqs (3,4), the absorption is the product of two terms, the imaginary part of the polarizability and the local density of energy. We shall show that for metallic nanoparticles at low frequencies, both terms are larger for the magnetic contribution. Let us first analyse the role of the polarizability. It appears from Eqs (3-6) that for values of the dielectric constant on the order of unity, the electric dipole contribution to losses is much larger than the magnetic one because  $R/\lambda \ll 1$ . Yet, for values of  $\epsilon_r$  such that  $|\epsilon_r| \gg 1$ , as it is the case for metals at low frequencies, the magnetic dipole may provide the leading contribution. The physical reason is that the magnetic fields are continuous at an interface so that they can penetrate in the material. By contrast, the electric field in a spherical particle  $\vec{E}_{int}$  is related to the external electric field by  $\vec{E}_{int} = [3/(\epsilon_r + 2)]\vec{E}_{ext}$ . Surface charges induced at the interface prevent the electric field to penetrate efficiently in the metallic particle. This screening effect takes place on a length scale given by the Thomas-Fermi length. It does not depend on the skin depth.



**FIG. VI.2** – Imaginary parts of the electric and magnetic polarisabilities of a gold sphere ( $\omega_P = 1.71 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$ ,  $\nu_0 = 4.05 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$ ,  $v_F = 1.2 \cdot 10^6 \text{ ms}^{-1}$  and  $A = 1$ ). For  $\omega \ll \nu$ ,  $Im(\alpha_H) \approx \frac{4\pi R^5 \omega_P^2}{15c^2} \frac{\omega}{\nu}$  and for  $\omega \ll \omega_P$ ,  $Im(\alpha_E) \approx \frac{12\pi R^3 \nu}{\omega_P^2} \omega$

We consider a non-magnetic metallic particle characterized by a Drude model  $\epsilon_r = 1 - \omega_P^2/(\omega^2 + i \omega \nu)$  where  $\omega_P$  is the plasma frequency and  $\nu$  is the damping coefficient. To account for the confinement effects, the bulk dielectric constant  $\epsilon_r$  (Hoevel, 1993) is corrected by modifying the damping constant  $\nu = \nu_0 + A v_F/R$ , where  $\nu_0$  is the bulk damping coefficient,  $v_F$  the Fermi velocity and  $A$  a sample-dependent coefficient. Figure VI.2 shows  $Im(\alpha_E)$  and  $Im(\alpha_H)$  as a function of

circular frequency for two gold spheres with radii  $R = 5$  nm and  $R = 10$  nm. It is seen that the electric polarizability is larger than the magnetic polarizability at optical frequencies. As explained before, this is no longer the case at low frequencies (typically smaller than  $\nu$ ), where  $Im(\alpha_H)$  is larger than  $Im(\alpha_E)$ .

## VI.4 Local density of energy near a metallic surface

To derive the energy absorbed by a particle in the vicinity of an interface, we need to consider the local densities of energy ( $\epsilon_0 \frac{\langle |\vec{E}|^2 \rangle}{2}$  and  $\mu_0 \frac{\langle |\vec{H}|^2 \rangle}{2}$ ). In a vacuum, both contributions are equal. The energy per unit volume  $U(z, \omega)$  at a distance  $z$  from the interface increases dramatically in the near field due to the presence of evanescent waves as discussed in ref. (Joulain, 2003; Joulain, 2005).  $U(z, \omega)$  is the product of the local density of states (LDOS)  $\rho(z, \omega)$  by the mean energy of a mode  $\Theta(\omega, T) = \hbar\omega / [\exp(\hbar\omega/k_B T) - 1]$ , where  $2\pi\hbar$  is Planck constant,  $k_B$  is Boltzmann constant and  $T$  the temperature of the substrate.  $\Theta(\omega, T)$  acts as a temperature-dependent frequency filter. At a given temperature, we define a cut-off frequency  $\omega_M$  by  $\int_0^{\omega_M} \Theta(\omega, T) d\omega / \int_0^{\infty} \Theta(\omega, T) d\omega = 99/100$ . Frequencies much higher than  $\omega_M$  are not relevant for heat transfer. The final expression for the evanescent part of the LDOS (Joulain, 2003; Joulain, 2005) is the sum of the four following contributions :

$$\rho_s^E(z, \omega) = \rho_v \int_{\omega/c}^{+\infty} \frac{dK}{2|\gamma_0|} \frac{cK}{\omega} \text{Im}(r_s) e^{-2\gamma_0'' z} \quad (\text{VI.7})$$

$$\rho_s^M(z, \omega) = \rho_v \int_{\omega/c}^{+\infty} \frac{dK}{2|\gamma_0|} \frac{cK}{\omega} f(K, \omega) \text{Im}(r_s) e^{-2\gamma_0'' z} \quad (\text{VI.8})$$

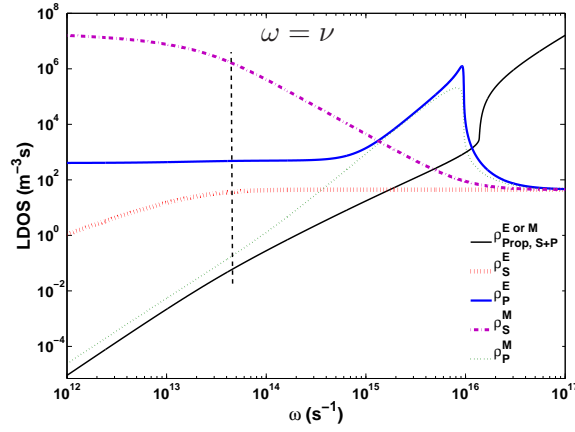
$$\rho_p^E(z, \omega) = \rho_v \int_{\omega/c}^{+\infty} \frac{dK}{2|\gamma_0|} \frac{cK}{\omega} f(K, \omega) \text{Im}(r_p) e^{-2\gamma_0'' z} \quad (\text{VI.9})$$

$$\rho_p^M(z, \omega) = \rho_v \int_{\omega/c}^{+\infty} \frac{dK}{2|\gamma_0|} \frac{cK}{\omega} \text{Im}(r_p) e^{-2\gamma_0'' z} \quad (\text{VI.10})$$

where the subscripts  $E$  and  $M$  denote the electric and magnetic evanescent components,  $c$  is the light velocity in vacuum,  $\rho_v(\omega) = \omega^2/\pi^2 c^3$  is the vacuum density of states,  $f(K, \omega) = 2(\frac{cK}{\omega})^2 - 1$ ,  $r_s$  and  $r_p$  the Fresnel TE and TM reflection factors, and the complex number  $\gamma_0 = \gamma_0' + i \gamma_0''$  is defined as the perpendicular part of the wave vector in vacuum at a frequency  $\omega$  :  $K^2 + \gamma_0^2 = \frac{\omega^2}{c^2}$ . We have neglected non-local effects as we consider distances larger than the Thomas-Fermi screening length.

We plot the LDOS versus the circular frequency  $\omega$  on Figure VI.3. The first conclusion is that the contribution due to the evanescent waves dominates at a distance of 30 nm above a metallic surface. The second conclusion is that the s-polarized magnetic contribution is dominant for frequencies below  $\omega_M = 2.4 \cdot 10^{14} \text{s}^{-1}$  which are relevant for heat transfer at 300 K . Let us point out that in near field, a non retarded approximation (i.e. an electrostatic approximation) yields a good accuracy for the evaluation of the electric field. Yet, this does not mean that the magnetic energy density is negligible. The p-polarized contribution associated with the surface plasmon polariton dominates at optical frequencies but does not contribute significantly in the infrared.

This latter conclusion can be understood by considering the analytical expressions of  $\rho_s^M$  (Eq. 8) and  $\rho_p^E$  (Eq. 9). Both expressions are exactly symmetric, involving the same factor  $f(K, \omega)$ , and the imaginary part of the reflection factor, respectively  $Im(r_s)$  and  $Im(r_p)$ . The physical origin of the factor  $f(K, \omega)$  lies in a fundamental difference of structure between propagating and evanescent waves. It is interesting to see why the magnetic energy dominates the electric energy. Indeed, in a



**FIG. VI.3** – Contributions of the evanescent waves to the local density of states (LDOS) at  $d = 30$  nm of a gold-vacuum plane interface when using a bulk Drude dielectric constant. The magnetic and electric propagating contributions are also plotted (they are equal).

vacuum, the electric and the magnetic energy are equal. This is no longer true for an s-polarized evanescent wave close to an interface.

Let us denote the wave vector as follows

$$\vec{k}_0 = K \vec{e}_x - \gamma \vec{e}_z \quad (\text{VI.11})$$

where  $K$  and  $\gamma$  are the interface parallel and perpendicular wave vectors and  $\vec{e}_x$  and  $\vec{e}_z$  unit vectors. The Helmholtz equation in a vacuum yields  $K^2 + \gamma^2 = \omega^2/c^2$ . For an s-polarized field, the electric field is given by

$$\vec{E} = (0, E, 0), \quad (\text{VI.12})$$

and the magnetic field follows from the Maxwell-Faraday equation in vacuum ( $c \vec{\text{curl}} \vec{E} = -\frac{\partial}{\partial t} \vec{B}$ )

$$\vec{B} = \frac{E}{\omega} (-\gamma, 0, K). \quad (\text{VI.13})$$

It follows that  $|\vec{B}|^2 = \vec{B} \vec{B}^* = \frac{|E|^2}{\omega^2} (|\gamma|^2 + K^2)$ . For a propagating wave, this yields the well-known result

$$|\vec{B}| = \frac{1}{c} |\vec{E}|, \quad (\text{VI.14})$$

whereas for an evanescent wave,  $\gamma$  is purely imaginary so that  $|\gamma|^2 = -\gamma^2$ . We get :

$$\frac{|c \vec{B}|}{|\vec{E}|} = \sqrt{2 \frac{K^2}{k_0^2} - 1} = \sqrt{f(K, \omega)}. \quad (\text{VI.15})$$

For evanescent waves,  $K \gg k_0$  so we find that the magnetic energy stored in an s-polarized evanescent wave is much larger than the electric energy. We have plotted in Figure VI.4 the function  $\frac{cB}{E} = \sqrt{f(K, \omega)}$  for different frequencies. It is seen that the density of energy, which is proportional to the density of states, is driven by the magnetic contribution.

Now, a similar reasoning can be done for p-polarized waves. In this case, the inverse ratio  $|\vec{E}|/c|\vec{B}|$  is also equal to  $\sqrt{f(K, \omega)} \simeq \sqrt{2} K/k_0$  which shows that the electric field dominates in this case. Near field is thus always dominated by an s-polarized evanescent magnetic field and a p-polarized evanescent electric field. The relative weight of both contributions is then given by the values of the imaginary part of the reflection factors. Since  $Im(r_s)$  is larger than  $Im(r_p)$  for a metal at low frequencies, the s-polarized contribution to the LDOS dominates as seen in Fig.(VI.3). As a consequence, the energy density is dominated by its s-polarized magnetic contribution.

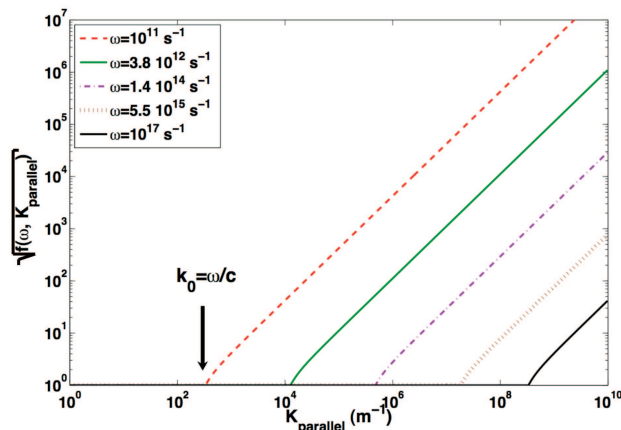


FIG. VI.4 – Ratio  $\frac{c|\vec{B}_{\parallel}|}{|\vec{E}_{\parallel}|}$  in the  $s$ -polarization for propagative ( $= 1$ ) and evanescent waves.

## VI.5 Heat transfer between an interface and a nanoparticle

We now combine the results obtained for the dependence of the polarisabilities and for the energy density to derive the power absorbed by a small particle as given by Eqs (3,4). Although heat transfer between a small particle and a substrate in the near field has only been calculated using the electric dipolar contribution (Dorofeev, 1997; Pendry, 1998; Volokitin, 2002; Dedkov, 2002; Pendry, 1999; Dorofeyev, 1998; Volokitin, 2001; Mulet, 2001b), the results shown in Fig.VI.2 (large magnetic dipole moment) and in Fig.VI.3 (large magnetic density of states) clearly indicates that the magnetic contribution must be taken into account as suggested in ref. (Kittel, 2005). Figure VI.5 shows the radiative power

$$P_{rad} = \int_{\omega=0}^{+\infty} (P_{abs}^E(\omega) + P_{abs}^H(\omega)) d\omega \quad (\text{VI.16})$$

dissipated by the substrate in the small particle ( $R = 5$  nm). The key result observed in Fig.VI.5 is that the heat transfer is dominated by the  $s$ -polarized magnetic contribution. The magnetic contribution can be larger than the electric dipolar contribution by 3 orders of magnitude. The reason is that heat is dissipated essentially by eddy currents. An important result is the dependence of the heat flux with distance. The magnetic LDOS varies asymptotically as  $1/z$  and the electric LDOS as  $1/z^3$  (Joulain, 2005; Joulain, 2003). For gold, these behaviors are valid respectively below 10 nm and 20 nm. Hence, there is no simple distance dependence for the absorbed power as seen in Fig.VI.5.

## VI.6 Conclusion

In summary, we have shown that the heat transfer between a metallic nanoparticle and a metallic surface is dominated by the magnetic contribution. Heat is mainly dissipated by fluctuating eddy currents. The widely used electric dipole approximation is valid for dielectrics but breaks down for metals. As a consequence, the  $1/z^3$  dependence of the flux between dielectrics is not valid for metals. A number of other effects due to thermal radiation (e.g. forces, friction) between metallic bodies are expected to be driven by their magnetic contribution, even if the media are non-magnetic. We note that the heat exchanged by two metallic nanoparticles separated by a submicronic distance (Domingues, 2005) should be driven as well by the interaction between their magnetic dipoles.



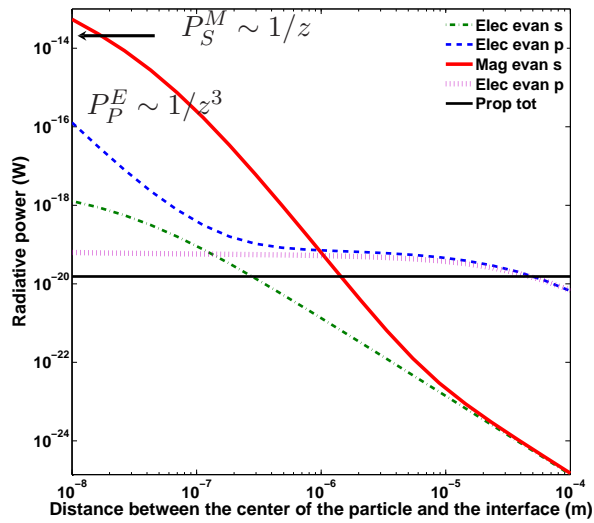


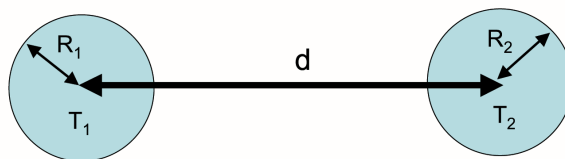
FIG. VI.5 – Radiative power dissipated in the gold particle (radius  $R = 5$  nm) by the semi-infinite planar gold substrate at 300 K, and the asymptotic behaviours

## Chapitre VII

# Transfert thermique radiatif de champ proche entre deux nanoparticules

## VII.1 Introduction

Nous allons maintenant calculer le transfert thermique radiatif de champ proche entre deux nanoparticules. Contrairement aux autres études de ce manuscrit, ce chapitre ne concerne pas directement le transfert d'énergie entre une pointe et une surface. Elle permet éventuellement d'étudier le rayonnement entre deux aspérités de surfaces, si on les modélise par des nanoparticules. Mais l'intérêt principal de ce chapitre est d'étendre les travaux précédents, de Domingues et Volokitin notamment, à des particules non uniquement polaires. Le transfert thermique peut être calculé complètement à l'aide de la théorie de Mie (Narayanaswamy, 2007), mais ceci ne permet pas de comprendre l'origine du phénomène. Ce chapitre a pour but de montrer l'importance du champ magnétique pour les particules. En effet, comme pour le cas du transfert thermique par rayonnement de champ proche entre une surface et une particule, la contribution magnétique au rayonnement n'avait pas été prise en compte précédemment dans les calculs où l'on considère la particule comme un dipôle. Nous nous proposons donc d'étudier ici plus spécifiquement le cas de particules métalliques, où cette contribution est essentielle. Nous allons premièrement montrer comment on peut déduire de la formule de la puissance dissipée dans un milieu la puissance dissipée par une particule en approximation dipolaire. Nous préciserons ensuite le domaine de validité de notre expression, car la taille de la particule doit rester petite devant l'épaisseur de peau. Nous donnerons alors le tenseur de Green qui relie courant et champ magnétique, puis nous formulerons le théorème de fluctuation-dissipation pour le moment dipolaire magnétique. Nous présenterons enfin les différents régimes de transfert thermique entre nanoparticules, notamment en fonction de la distance.



**FIG. VII.1** – Géométrie étudiée : deux nanoparticules de même rayon  $R \ll \lambda$ , à deux températures uniformes différentes  $T_1$  et  $T_2$ . Les particules sont séparées par une distance  $d$

## VII.2 Puissance absorbée par une nanoparticule

### VII.2.1 Puissance électrique et puissance magnétique absorbées par une nanoparticule

On détaille dans cette partie le calcul de la puissance absorbée par une nanoparticule. Cette puissance absorbée s'écrit :

$$P = \int d^3\vec{r} \langle \vec{j}(\vec{r}, t) \vec{E}_{int}(\vec{r}, t) \rangle \quad (\text{VII.1})$$

Les hypothèses  $R \ll \lambda$  et  $R \ll \delta$  sont imposées, où  $\delta$  est l'épaisseur de peau de la nanoparticule. On peut donc supposer que le champ  $\vec{E}_{int}$  varie peu à l'intérieur de la particule. Au premier ordre, il est possible d'écrire que :

$$\vec{E}_{int}(\vec{r}) = \vec{E}_{int}(\vec{r}_0) + \left[ (\vec{r} \cdot \nabla_{\vec{x}}) \vec{E}_{int}(\vec{x}) \right]_{\vec{x}=\vec{r}_0} \quad (\text{VII.2})$$

Le terme dérivé est transformé de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \vec{j} \cdot (\vec{r} \cdot \nabla_{\vec{x}}) \vec{E}_{int}(\vec{x}) &= \frac{1}{2} \left[ \vec{j} \cdot (\vec{r} \cdot \nabla_{\vec{x}}) \vec{E}_{int}(\vec{x}) + \vec{r} \cdot (\vec{j} \cdot \nabla_{\vec{x}}) \vec{E}_{int}(\vec{x}) \right] \\ &+ \frac{1}{2} \left[ \vec{j} \cdot (\vec{r} \cdot \nabla_{\vec{x}}) \vec{E}_{int}(\vec{x}) - \vec{r} \cdot (\vec{j} \cdot \nabla_{\vec{x}}) \vec{E}_{int}(\vec{x}) \right] \end{aligned} \quad (\text{VII.3})$$

de sorte qu'un terme symétrique et un terme antisymétrique apparaissent. Le terme antisymétrique peut être transformé grâce à

$$\begin{aligned} \vec{j} \cdot (\vec{r} \cdot \nabla_{\vec{x}}) \vec{E}_{int}(\vec{x}) - \vec{r} \cdot (\vec{j} \cdot \nabla_{\vec{x}}) \vec{E}_{int}(\vec{x}) &= \left[ (\vec{r} \wedge \vec{j}) \cdot (\nabla_{\vec{x}} \wedge \vec{E}(\vec{x})) \right] \\ &= -2\vec{M} \cdot \frac{\partial \vec{B}_0}{\partial t}(\vec{x}) \end{aligned} \quad (\text{VII.4})$$

où on a utilisé l'expression de l'aimantation  $\vec{M} = \frac{1}{2} \vec{r} \wedge \vec{j}$  et le champ  $\vec{B}$  à l'aide de l'équation de Maxwell-Faraday. Le terme symétrique fait apparaître le moment quadrupolaire électrique. On a donc :

$$\vec{j}(\vec{r}, t) \cdot \vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{j}(\vec{r}, t) \cdot \vec{E}_0 - \vec{M} \cdot \frac{\partial \vec{B}_0}{\partial t} + t.s. \quad (\text{VII.5})$$

où *t.s.* désigne la contribution quadrupolaire électrique. Elle est du même ordre dans le développement en  $\vec{x}$  que celle liée au dipôle magnétique (Jackson, 2001). Cela se voit notamment lorsque l'on regarde la dépendance au rayon de la particule des coefficients du développement de Mie (Bohren, 1983). Le terme dipolaire magnétique est en  $R^5(\epsilon - 1)$  et le terme quadrupolaire électrique en  $R^5 \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 1}$ . L'examen des coefficients de la théorie de Mie nous montre que le terme quadrupolaire est négligeable devant le terme dipolaire magnétique si  $\sqrt{|\epsilon|} \gg 1$ .

Ce paragraphe a montré qu'on peut réécrire la puissance échangée sous la forme suivante si on se borne à calculer les contributions dipolaires électrique et magnétique :

$$P = \int d^3\vec{r} \left\langle \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \cdot \vec{E}_{int}(\vec{r}_0) - \vec{M} \cdot \frac{\partial \vec{B}_{int}}{\partial t}(\vec{r}_0) \right\rangle \quad (\text{VII.6})$$

où on a noté  $\vec{P}$  la polarisation. On peut donc écrire aussi si  $\vec{p}$  et  $\vec{m}$  sont les dipôles (intégrés en volume) de la particule la formule de la puissance absorbée

$$P = \left\langle \frac{\partial \vec{p}}{\partial t} \cdot \vec{E}_{int}(\vec{r}_0) - \vec{m} \cdot \frac{\partial \vec{B}_{int}}{\partial t}(\vec{r}_0) \right\rangle \quad (\text{VII.7})$$

La puissance magnétique absorbée est due aux courants de Foucault générés par le champ magnétique : l'équation de Maxwell-Faraday a servi dans la démonstration de l'écriture de la puissance absorbée où est présente le moment magnétique.

### VII.2.2 Contribution dipolaire électrique

On se borne ici à calculer la puissance électrique à partir de (Joulain, 2005). La convention d'Einstein est utilisée pour les sommations. Le point de départ est de nouveau  $\vec{j}\vec{E}$ . Le calcul pour le champ magnétique à partir du moment dipolaire est effectué au paragraphe suivant.

$$P_v(\vec{r}, t) = \langle \vec{j}(\vec{r}, t) \cdot \vec{E}^{int}(\vec{r}, t) \rangle \quad (\text{VII.8})$$

Comme dans la particule  $\vec{j}(\vec{r}, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \sigma(t-t') \vec{E}_a^{int}(\vec{r}, t')$ , on a dans le domaine fréquentiel

$$\vec{j}(\vec{r}, \omega) = \sigma(\omega) \vec{E}_a^{int}(\vec{r}, \omega) \quad (\text{VII.9})$$

d'où en développant avec les transformées de Fourier

$$P_v = \langle \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega_1}{2\pi} \sigma(\omega_1) \vec{E}_a^{int}(\omega_1) e^{-i\omega_1 t} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega_2}{2\pi} \vec{E}_a^{int}(\omega_2) e^{-i\omega_2 t} \rangle \quad (\text{VII.10})$$

Seul  $\vec{E}$  est fluctuant, donc

$$P_v = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega_1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega_2}{2\pi} e^{-i(\omega_1+\omega_2)t} \sigma(\omega_1) \langle \vec{E}_a^{int}(\omega_1) \vec{E}_a^{int}(\omega_2) \rangle \quad (\text{VII.11})$$

Cette expression peut être transformée en posant  $\omega_1 = \omega'$  et  $\omega_2 = -\omega''$  :

$$P_v = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega'}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega''}{2\pi} e^{-i(\omega' - \omega'')t} \sigma(\omega') \langle \vec{E}_a^{int}(\omega') \vec{E}_a^{int}(-\omega'') \rangle \quad (\text{VII.12})$$

Sachant que  $A(-\omega) = A^*(\omega)$  si  $A$  est réel, il apparaît que :

$$P_v = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega'}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega''}{2\pi} e^{-i(\omega' - \omega'')t} \sigma(\omega') \langle \vec{E}_a^{int}(\omega') \vec{E}_a^{int*}(\omega'') \rangle \quad (\text{VII.13})$$

L'autocorrélation du champ électrique dans la particule va donc devoir être calculée.

Grâce aux conditions aux limites de la particule sphérique, il est remarquable qu'en approximation dipolaire :

$$\vec{E}_a^{int}(\omega) = \frac{3}{\epsilon(\omega) + 2} \vec{E}_a^{inc}(\omega) \quad (\text{VII.14})$$

où  $\vec{E}_a^{inc}$  est le champ incident. Il est alors possible d'écrire en intégrant sur le volume de la particule :

$$P_v = \frac{4\pi R^3}{3} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega'}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega''}{2\pi} e^{-i(\omega' - \omega'')t} \sigma(\omega') \frac{9}{|\epsilon(\omega') + 2|^2} \langle \vec{E}_a^{inc}(\omega') \vec{E}_a^{inc*}(\omega'') \rangle \quad (\text{VII.15})$$

où c'est l'autocorrélation du champ incident qu'il est maintenant nécessaire d'exprimer. Ce champ incident a deux origines : dans un premier cas, il est généré par l'autre particule. Dans un second, il est généré par la première particule et diffusé par la seconde. Il va être nécessaire de considérer ces deux champs dans la suite. On remarque dans (VII.15) l'expression de la polarisabilité électrique dite de Clausius-Mossotti (voir plus loin).

### VII.2.3 Contribution dipolaire magnétique

Si le champ est inhomogène dans la particule, c'est que les termes d'ordres supérieurs dans le développement de  $\vec{E}$  doivent être pris en compte, dont notamment celui dû au champ magnétique. En effet, un développement au premier ordre prend en compte le moment magnétique et le moment quadrupolaire électrique. Le principe du calcul est similaire au calcul électrique, avec le terme  $\vec{m} \frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$ . L'intégration sur le volume a été faite dès le départ.

$$P_v(t) = \langle \vec{m}(t) \cdot \frac{\partial \vec{B}_{int}}{\partial t}(\vec{r}, t) \rangle \quad (\text{VII.16})$$

D'après la définition de la polarisabilité magnétique,  $\vec{m}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \alpha_B(t-t') \vec{B}_{int}(\vec{r}, t')$ , on a dans le domaine fréquentiel

$$\vec{m}(\omega) = \alpha_B(\omega) \vec{B}_{inc}(\vec{r}, \omega) \quad (\text{VII.17})$$

La particularité du calcul du champ magnétique est qu'il n'y a ici pas d'écrantage, et donc  $\vec{B}_{int} = \vec{B}_{inc}$  si on considère des tailles de particule petites par rapport à l'épaisseur de peau. D'où, en développant avec les transformées de Fourier,

$$P_v = \langle \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega_1}{2\pi} \alpha_B(\omega_1) \vec{B}_a^{int}(\omega_1) e^{-i\omega_1 t} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega_2}{2\pi} (-i\omega_2) \vec{B}_a^{int}(-\omega_2) e^{i\omega_2 t} \rangle \quad (\text{VII.18})$$

Seul  $\vec{B}$  est fluctuant, donc

$$P_v = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega_1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega_2}{2\pi} e^{-i(\omega_1+\omega_2)t} (-i\omega_2) \alpha_B(\omega_1) \langle \vec{B}_a^{int}(\omega_1) \vec{B}_a^{int}(\omega_2) \rangle \quad (\text{VII.19})$$

Cette expression peut être transformée en posant  $\omega_1 = \omega'$  et  $\omega_2 = -\omega''$  :

$$P_v = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega'}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega''}{2\pi} e^{-i(\omega' - \omega'')t} i\omega'' \alpha_B(\omega') \langle \vec{B}_a^{int}(\omega') \vec{B}_a^{int}(-\omega'') \rangle \quad (\text{VII.20})$$

Sachant que  $A(-\omega) = A^*(\omega)$  si  $A$  est réel, on obtient

$$P_v = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega'}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega''}{2\pi} e^{-i(\omega' - \omega'')t} i\omega'' \alpha_B(\omega') \langle \vec{B}_a^{int}(\omega') \vec{B}_a^{int*}(\omega'') \rangle \quad (\text{VII.21})$$

Il est alors possible d'écrire :

$$P_v = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega'}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega''}{2\pi} e^{-i(\omega' - \omega'')t} i\omega'' \alpha_B(\omega') \langle \vec{B}_a^{inc}(\omega') \vec{B}_a^{inc*}(\omega'') \rangle \quad (\text{VII.22})$$

Cette expression dépend désormais de l'autocorrélation du champ incident.

La conclusion de ces deux paragraphes est que le calcul de l'autocorrélation du champ électromagnétique va devoir être effectué afin d'obtenir la puissance dissipée dans la particule.

## VII.2.4 Contributions quadrupolaires et multipolaires

Les termes quadrupolaires et multipolaires ne peuvent pas jouer un rôle important à partir du moment où  $d/R$  et  $\lambda/R$  sont assez grand. L'examen de la série de Mie (Van de Hulst, 1981; Bohren, 1983) nous montre que ces termes sont en  $(\lambda/R)^n$  avec  $n$  plus grand que pour les termes dipolaires. Seul le terme quadrupolaire électrique pourrait jouer un rôle, mais on a vu que dès que  $\sqrt{|\epsilon|} \gg 1$  il est négligeable. Ces termes vont donc être négligés pour les résultats qui suivent.

## VII.3 Modèles de polarisabilités

### VII.3.1 Polarisation électrique

La polarisabilité d'une petite particule est donnée par la formule de Clausius-Mossotti :

$$\alpha_E(\omega) = \frac{4\pi R^3}{3} \frac{3[\epsilon(\omega) - 1]}{\epsilon(\omega) + 2} \quad (\text{VII.23})$$

lorsque la polarisabilité est définie par

$$\vec{p} = \alpha_E(\omega) \epsilon_0 \vec{E}^{inc} \quad (\text{VII.24})$$

où  $\vec{E}^{inc}$  est le champ électrique incident. Dans toute la suite, la constante diélectrique d'une nanoparticule métallique est

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_P^2}{\omega(\omega + i\nu)} \quad (\text{VII.25})$$

avec le terme de perte  $\nu$  corrigé pour prendre en compte les effets de taille

$$\nu = \nu_0 + \frac{A v_F}{R} \quad (\text{VII.26})$$

où  $\nu_0$  est le terme de perte dans un matériau massif et  $v_F$  la vitesse de Fermi.  $A$  est prise égale à 1. Les particules considérées ont plus de 3 nm de diamètre, seuil en dessous duquel des corrections quantiques sont à apporter (Voisin, 2000).

### VII.3.2 Polarisation magnétique

La polarisabilité magnétique d'une particule petite devant l'épaisseur de peau est calculée en annexe. On obtient

$$\alpha_H(\omega) = \frac{2\pi}{15} [\epsilon(\omega) - 1] R^3 \left(\frac{R\omega}{c}\right)^2 \quad (\text{VII.27})$$

pour une définition

$$\vec{m} = \alpha_H(\omega) \vec{H}^{inc} \quad (\text{VII.28})$$

La polarisabilité magnétique d'une sphère métallique peut toujours être calculée, même lorsque le rayon est plus grand que l'épaisseur de peau et que le champ est alors écranté dans la particule. Par exemple, si  $R \gg \delta$ , la polarisabilité s'écrit (Landau, 1984)

$$\alpha_H = 2\pi R^3 \left[-1 + \frac{3}{(kR)^2} - \frac{3}{kR} \cotan(kR)\right] \quad (\text{VII.29})$$

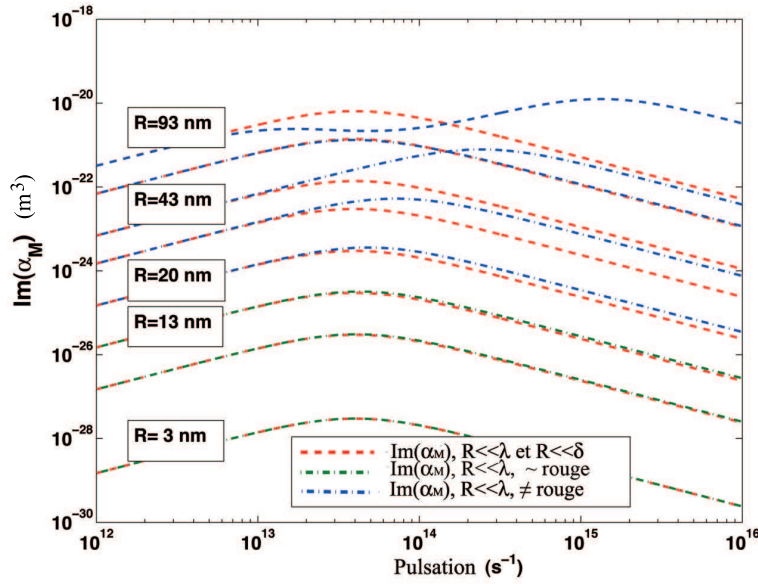


FIG. VII.2 – Partie imaginaire de la polarisabilité magnétique d'une particule d'or ( $\omega_P = 2 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$  et  $\nu = 4 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$ ).

La figure VII.2 montre la zone de validité de la formule. L'approximation est toujours correcte dans l'infrarouge lointain, mais ne l'est plus aux fréquences proches de  $\nu$  qui contribuent fortement au transfert thermique dès 20 nm. Ceci est lié à la valeur de l'épaisseur de peau, tracée dans la figure VII.3 pour différents métaux. Ceci donne la gamme de validité de l'approximation de petite particule, où le champ n'est pas écranté.

## VII.4 Tenseur de Green du vide pour les champs électromagnétiques

Le tenseur de Green dans le vide pour le champ électrique est donné dans de nombreuses références, dont notamment dans (Volz, 2007a)[Chapitre 6, K. Joulain]. Néanmoins le calcul du flux thermique échangé entre deux particules n'est que rarement mené à son terme en entier : les comportements présentés sont au final soit en champ lointain soit en champ proche. Un résultat est cependant proposé dans (Voloitin, 2001) pour la contribution du dipôle électrique. Nous nous proposons ici de montrer la symétrie des équations pour le champ électrique et pour le champ magnétique, puis de faire le calcul complet pour le champ magnétique, ce qui n'avait jamais été fait à notre connaissance.

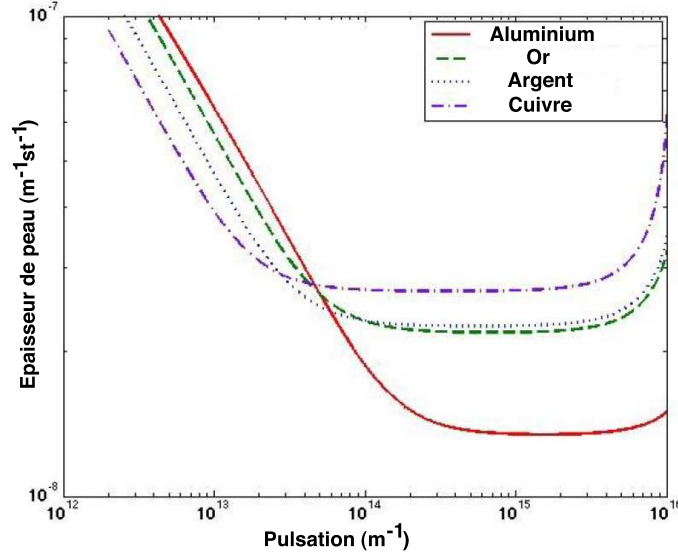
### VII.4.1 Equation d'onde pour le champ magnétique

Les équations à considérer sont les suivantes :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{B} = \mu_0(\vec{j}_{libre} + \vec{\nabla} \wedge \vec{M}) + \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (\text{VII.30})$$

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (\text{VII.31})$$





**FIG. VII.3** – *Epaisseur de peau de différents métaux. La constante diélectrique de ces métaux est un modèle de Drude.*

où  $\vec{M}$  est la distribution d'aimantation dans le milieu. En prenant le rotationnel de l'équation de Maxwell-Ampère, on trouve en l'absence de charges libres que

$$\vec{\nabla} \wedge (\vec{\nabla} \wedge \vec{B}) = \vec{\nabla} \wedge (\vec{\nabla} \wedge \mu_0 \vec{M}) + \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \vec{B} \quad (\text{VII.32})$$

$$(\text{VII.33})$$

pour un champ monochromatique de pulsation  $\omega$ . Finalement, après avoir regroupé les termes grâce à la définition  $\vec{H} = \frac{\vec{B}}{\mu_0} - \vec{M}$ , il apparaît que

$$\vec{\nabla} \wedge (\vec{\nabla} \wedge \vec{H}) - \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \vec{H} = \frac{\omega^2}{c^2} \vec{M} \quad (\text{VII.34})$$

#### VII.4.2 Equation d'onde pour le champ électrique

Les équations à considérer sont les suivantes :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{B} = \mu_0 \left( \vec{j}_{libre} + \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \right) + \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (\text{VII.35})$$

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (\text{VII.36})$$

où  $\vec{P}$  est la distribution de polarisation dans le milieu. En prenant le rotationnel de l'équation de Maxwell-Faraday, on trouve en l'absence de charges libres

$$\vec{\nabla} \wedge (\vec{\nabla} \wedge \vec{E}) = \omega^2 \mu_0 \vec{P} + \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \vec{E} \quad (\text{VII.37})$$

pour un champ monochromatique de pulsation  $\omega$ . De manière analogue au cas magnétique, on aboutit à :

$$\vec{\nabla} \wedge (\vec{\nabla} \wedge \vec{E}) - \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \vec{E} = \mu_0 \omega^2 \vec{P} \quad (\text{VII.38})$$

### VII.4.3 Définition des tenseurs de Green

Le tenseur de Green du vide pour le champ électrique est défini comme reliant  $\vec{E}$  et  $\vec{P}$  par  $\vec{E} = \int \overline{G}^{EE} \vec{P}$ . Il est commode d'écrire

$$\vec{E}(\vec{r}) = \int d^3\vec{r}' \overline{G}_0(\vec{r} - \vec{r}') \omega^2 \mu_0 \vec{P}(\vec{r}') \quad (\text{VII.39})$$

et on peut alors également écrire grâce à la symétrie des équations

$$\vec{H}(\vec{r}) = \int d^3\vec{r}' \overline{G}_0(\vec{r} - \vec{r}') \frac{\omega^2}{c^2} \vec{M}(\vec{r}') \quad (\text{VII.40})$$

On utilisera dans la suite  $\vec{H} = \int \overline{G}^{HH} \vec{M}$ . La conclusion est que le tenseur de l'espace libre  $\overline{G}_0$  est identique pour  $\vec{E}$  et  $\vec{H}$  et qu'il existe une relation très simple pour passer de  $\overline{G}^{HH}$  à  $\overline{G}^{EE}$ .

### VII.4.4 Théorème de fluctuation-dissipation pour les dipôles

La symétrie des équations pour  $\vec{E}$  et  $\vec{H}$  permet d'écrire facilement le théorème de fluctuation-dissipation pour le dipôle magnétique connaissant celui pour le dipôle électrique. Cette manière d'écrire le théorème est intuitive, mais nous allons redémontrer dans la suite le calcul de la puissance échangée. Elle est néanmoins pratique : c'est pourquoi elle est donnée ici. Pour un dipôle électrique (Joulain, 2005), on a :

$$\langle p_a(\vec{r}, \omega) p_b^*(\vec{r}, \omega') \rangle = \frac{4\pi}{\omega} \epsilon_0 \text{Im}[\alpha_E] \theta(\omega', T) \delta(\omega - \omega') \delta_{ab} \quad (\text{VII.41})$$

et il y a les correspondances  $\vec{p} \leftrightarrow \vec{m}$ ,  $\epsilon_0 \leftrightarrow 1/\mu_0$  et  $\vec{E} \leftrightarrow \vec{H}$ , d'où

$$\langle m_a(\vec{r}, \omega) m_b^*(\vec{r}, \omega') \rangle = \frac{4\pi}{\omega \mu_0} \text{Im}[\alpha_H] (\omega', T) \delta(\omega - \omega') \delta_{ab} \quad (\text{VII.42})$$

Ceci est confirmé par analyse dimensionnelle.

### VII.4.5 Tenseurs de Green du champ créé par un dipôle

Rappelons tout d'abord le champ électrique créé par un dipôle, déjà utilisé précédemment. Pour un dipôle ponctuel (Domingues, 2005), on a en notant  $\ell = |\vec{r} - \vec{r}'|$  (Volz, 2007a)[Chapitre 6, K. Joulain] :

$$\begin{aligned} \overline{G}_0(\vec{r}, \vec{r}') = & \frac{k e^{ik\ell}}{4\pi} \left[ \left( \frac{1}{k\ell} + \frac{i}{k^2\ell^2} - \frac{1}{k^3\ell^3} \right) \vec{I} \right. \\ & \left. + \left( -\frac{1}{k\ell} - \frac{3i}{k^2\ell^2} + \frac{3}{k^3\ell^3} \right) (\vec{e}_\ell \otimes \vec{e}_\ell) \right] \end{aligned} \quad (\text{VII.43})$$

Le champ créé dans la particule 1 est dû au champ créé par la particule 2 et au champ de la particule 1 qui a été diffusé dans la particule 2 et "qui est revenu". Ces 2 champs peuvent ensuite faire chacun un ou plusieurs allers-retours par la particule 2. Le champ total éclairant la particule 1 est donc

$$\vec{E}_1 = \overline{G}^{EE}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \vec{p}_2 + \overline{G}^{EE}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \alpha_2^E \overline{G}^{EE}(\vec{r}_2, \vec{r}_1) \vec{p}_1 \quad (\text{VII.44})$$

Maintenant, il faut noter qu'ici  $\vec{p}_2$  est bien le dipôle fluctuant dans la particule 2, mais que  $\vec{p}_1$  est la somme du dipôle fluctuant  $\vec{p}_1^{fl}$  et du dipôle induit dû au champ incident :

$$\vec{p}_1 = \vec{p}_1^{fl} + \alpha_1^E \vec{E}_1 \quad (\text{VII.45})$$

ce qui nous donne finalement :

$$\begin{aligned}
& [1 - \alpha_1^E \alpha_2^E \overline{G}^{EE}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \overline{G}^{EE}(\vec{r}_2, \vec{r}_1) \vec{E}_1 \\
& \quad (VII.47) \\
& = \overline{G}^{EE}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \vec{p}_2^{fl} + \overline{G}^{EE}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \alpha_2^E \overline{G}^{EE}(\vec{r}_2, \vec{r}_1) \vec{p}_1^{fl}
\end{aligned}$$

Le calcul complet est identique pour le champ magnétique et donne :

$$\begin{aligned}
& [1 - \alpha_1^H \alpha_2^H \overline{G}^{HH}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \overline{G}^{HH}(\vec{r}_2, \vec{r}_1) \vec{H}_1 \\
& \quad (VII.49) \\
& = \overline{G}^{HH}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \vec{m}_2^{fl} + \overline{G}^{HH}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \alpha_2^H \overline{G}^{HH}(\vec{r}_2, \vec{r}_1) \vec{m}_1^{fl}
\end{aligned}$$

Les équations (VII.48) et (VII.50) peuvent être simplifiées. En effet, le terme de gauche comporte une contribution directe (1), et une contribution due à la diffusion multiple. Le terme de droite comporte un terme issu de l'autre particule et un second dû à la diffusion par la seconde nanoparticule du rayonnement émis par la première. Le calcul des éléments de matrice montre que la seule contribution significative au champ électromagnétique d'une particule provient directement de l'autre : l'effet des autres termes impliquent une correction en valeur relative inférieure à  $10^{-3}$ <sup>1</sup>. La conséquence est qu'il est finalement possible d'écrire directement :

$$\vec{E}_1 = \overline{G}^{EE}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \vec{p}_2^{fl} \quad (VII.50)$$

et

$$\vec{H}_1 = \overline{G}^{HH}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \vec{m}_2^{fl} \quad (VII.51)$$

ce qui simplifie grandement le calcul.

## VII.5 Résultats

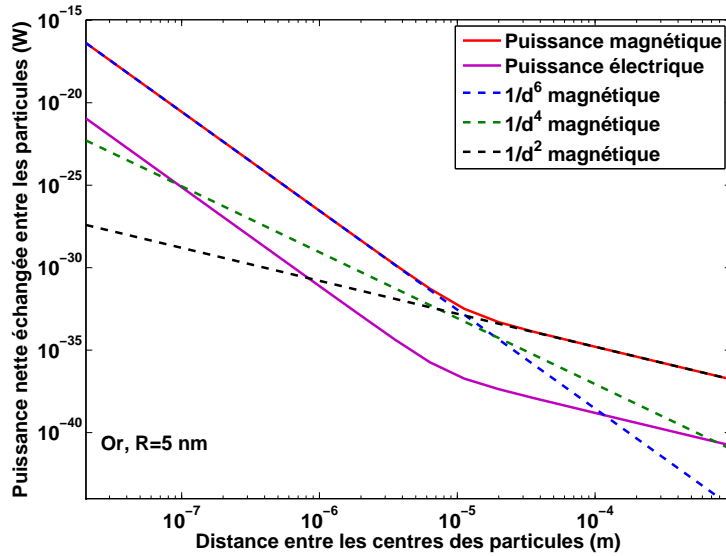
### VII.5.1 Formules du transfert d'énergie

On trouve après calculs que

$$\begin{aligned}
& \langle \vec{E}(\vec{r}_1, \omega_1) \vec{E}^*(\vec{r}_1, \omega_2) \rangle \\
& = \langle \overline{G}^{EE}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \omega_1) \vec{p}_2^{fl} \overline{G}^{EE*}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \omega_2) \vec{p}_2^{fl*} \rangle \\
& = \frac{\mu_0 \omega^5}{4\pi c^4} \text{Im}(\alpha_2^E) \Theta_1(\omega_1, T) \delta(\omega_1 - \omega_2) \left[ \frac{1}{(kd)^2} + \frac{1}{(kd)^4} + \frac{3}{(kd)^6} \right] \quad (VII.52)
\end{aligned}$$

où  $d$  est la distance entre particules. Il est important de noter que le passage de transformées de Fourier réelles à des signaux à fréquences uniquement positives implique une multiplication par

<sup>1</sup>Notons que ceci n'est valable que pour les rayons inférieurs à l'épaisseur de peau. Les éléments de la matrice  $-\alpha_1^H \alpha_2^H V_1 V_2 \overline{G}^{HH}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \overline{G}^{HH}(\vec{r}_2, \vec{r}_1)$  ont été calculés pour évaluer l'effet des diffusions multiples. Les termes électriques impliquent des corrections beaucoup plus faibles que  $10^{-3}$  pour la détermination du champ électrique. L'effet d'absorption du champ généré par une particule sur elle-même après diffusion par l'autre particule (deuxième terme de droite dans les équations (VII.48) et (VII.50)) est également négligeable.



**FIG. VII.4** – Puissance échangée entre deux particules d'or de rayons  $R = 5 \text{ nm}$ , avec  $\omega_P = 2 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$  et  $\nu = 4 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$ . L'une des deux particules est à  $T_1 = 400 \text{ K}$  et l'autre à  $T_2 = 300 \text{ K}$ .

4 du résultat obtenu, et que le fait qu'on prenne en compte des dipôles par gamme de fréquence implique une multiplication par  $1/4\pi^2$  de ce résultat (Volz, 2007a)[Chapitre 6, K. Joulain].

On déduit finalement que la puissance totale échangée par les particules est donnée par

$$P = \sum_{a=H \text{ ou } E} \int_0^{+\infty} [\Theta(\omega, T_1) - \Theta(\omega, T_2)] \frac{1}{4\pi^3} \text{Im}(\alpha_a^1(\omega)) \text{Im}(\alpha_a^2(\omega)) k^6 \left[ \frac{3}{(kd)^6} + \frac{1}{(kd)^4} + \frac{1}{(kd)^2} \right] d\omega \quad (\text{VII.53})$$

La partie électrique du résultat est en accord avec l'approximation de champ proche de (Volz, 2007a; Domingues, 2004; Domingues, 2005), mais n'a pas le même préfacteur que l'expression proposée dans (Voloikitin, 2001). Néanmoins les "poids" relatifs sur chacune des composantes en  $1/d^n$  sont les mêmes.

## VII.5.2 Discussion pour les métaux

La figure VII.5 présente les résultats du calcul de transfert thermique de champ proche entre deux nanoparticules d'or. Le calcul a montré précédemment que les comportements des termes liés aux champs magnétique et électrique sont identiques en fonction de la distance. La puissance échangée dépend donc pour toutes les distances soit du champ électrique, soit du champ magnétique. En effet, le calcul dépend essentiellement du produit des polarisabilités. Une particule métallique à forte polarisabilité magnétique échangera donc de la chaleur préférentiellement de manière magnétique. C'est le cas de l'or, de même que celui de nombreux autres métaux comme le cuivre, l'argent, l'aluminium.

La courbe présente les deux caractéristiques du transfert thermique, le champ lointain en  $1/d^2$  et le champ proche en  $1/d^6$ . Il faut noter que le terme en  $1/d^4$  ne contribue que dans une toute petite gamme de distances. En première approximation, il pourra aisément être négligé. La distance caractéristique de passage du champ proche au champ lointain est de quelques micromètres.

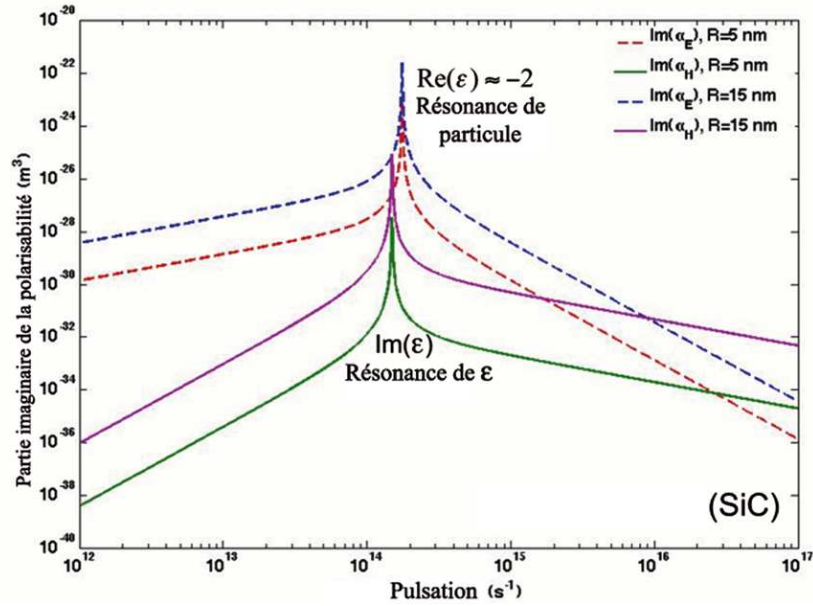


FIG. VII.5 – Polarisabilités électrique et magnétique d’une particule de 5 nm de rayon en carbure de silicium. Le spectre est composé de pics dans l’infrarouge, et la polarisabilité électrique est bien supérieure à la polarisabilité magnétique

### VII.5.3 Discussion pour les matériaux diélectriques

Nous avons également calculé le transfert radiatif de champ proche pour un matériau diélectrique, le carbure de silicium. Modélisé à l’aide d’un modèle d’oscillateur, sa constante diélectrique est très différente de celle des métaux. La figure VII.5 montre que la polarisabilité électrique est constituée de pics dans l’infrarouge. Ce sont ces pics qui contribuent de manière prépondérante au transfert radiatif. La figure VII.6 montre que la puissance dissipée ici est due au dipôle électrique. L’approximation qui consiste à négliger la contribution dipolaire magnétique est valable dans le cas de ce type de matériaux.

## VII.6 Conclusion

En conclusion, nous avons détaillé le calcul de la puissance radiative échangée entre deux particules en fonction de leur distance dans l’approximation dipolaire. Nous avons montré que les termes de diffusion multiple peuvent être négligés. L’importance de prendre en compte la partie magnétique dans l’échange de chaleur pour les métaux a été constatée. Nous avons vérifié que pour les matériaux diélectriques on pouvait effectivement négliger la partie magnétique. Il a également été montré que le terme en  $1/d^4$  ne contribue que dans une très petite gamme de distance. Ces calculs confirment la dépendance en  $1/d^6$  en champ proche et en  $1/d^2$  en champ lointain. Une mesure directe de ces dépendances semble maintenant nécessaire. Elle permettrait de vérifier si la théorie de Mie est toujours correctement applicable ou si des effets de surface sont à prendre en compte comme le suggèrent des calculs de dynamique moléculaire (Domingues, 2005; Domingues, 2004).

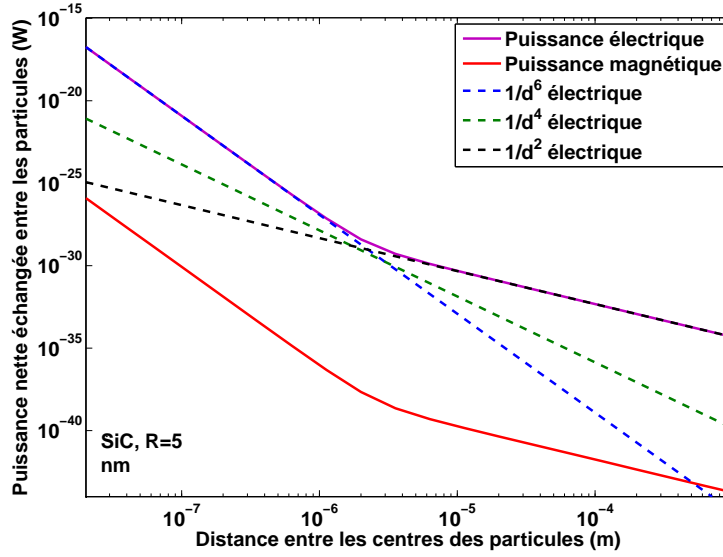


FIG. VII.6 – Puissance échangée entre deux particules de carbure de silicium de rayon 5 nm. L'aspect des courbes est identique au cas métallique, mais c'est la puissance électrique qui est prépondérante.

## VII.7 Annexe : Polarisabilité magnétique d'une nanoparticule petite devant l'épaisseur de peau

Considérons dans un premier temps que la taille de la nanoparticule  $R$  est inférieure à l'épaisseur de peau du matériau  $\delta$ . On a donc

$$R \ll \lambda \quad (\text{VII.54})$$

$$R \ll \delta \quad (\text{VII.55})$$

Rappelons que  $\delta = \sqrt{\frac{2}{\mu_0 \sigma \omega}}$  dans un modèle de Drude aux basses fréquences, où l'on a noté  $\sigma$  la conductivité électrique. Nous allons calculer la polarisabilité magnétique à l'aide de la relation

$$\vec{m} = \alpha_H \vec{H} \quad (\text{VII.56})$$

qui montre l'orientation du moment magnétique  $\vec{m}$  dans un champ  $\vec{H}$ . La définition du moment magnétique est

$$\vec{m} = \int_{\delta V} \frac{1}{2} \vec{r} \wedge \vec{j}(\vec{r}) d^3 \vec{r} \quad (\text{VII.57})$$

La particule est considérée comme conductrice, d'où

$$\vec{j}(\vec{r}, \omega) = -i\omega \chi_E(\omega) \epsilon_0 \vec{E}(\vec{r}, \omega) \quad (\text{VII.58})$$

qui relie les transformées de Fourier temporelles de la densité de courant et du champ électrique. En tenant compte de la petite taille de la particule, on développe le champ électrique intérieur

$$\vec{E}(\vec{r}) = \vec{E}(\vec{r}_0) + \left[ (\vec{r} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{x}}) \vec{E}(\vec{x}) \right]_{\vec{x}=\vec{r}_0} \quad (\text{VII.59})$$

en négligeant les termes du deuxième ordre. L'expression du moment magnétique est alors remplacée en tenant compte du fait que  $\vec{m} = \int_{\delta V} \frac{1}{2} \vec{r} \wedge \vec{E}_0 d^3 \vec{r} = \vec{0}$  et en notant  $\vec{E}(\vec{r}_0) = \vec{E}_0$  :

$$\vec{m} = \frac{-i\omega \chi_E(\omega) \epsilon_0}{2} \int_{\delta V} \vec{r} \wedge \left[ (\vec{r} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{x}}) \vec{E}(\vec{x}) \right]_{\vec{x}=\vec{r}_0} d^3 \vec{r} \quad (\text{VII.60})$$

Une formule d'analyse vectorielle permet de transformer cette expression :

$$\vec{\nabla} (\vec{a} \cdot \vec{b}) = (\vec{a} \cdot \vec{\nabla}) \vec{b} + \vec{a} \wedge (\vec{\nabla} \wedge \vec{b}) + \vec{a} \leftrightarrow \vec{b} \quad (\text{VII.61})$$

Le cas présent implique que :

$$\left[ \vec{\nabla}_{\vec{x}} (\vec{r} \cdot \vec{E}(\vec{x})) \right]_{\vec{x}=\vec{r}_0} = \left[ (\vec{r} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{x}}) \vec{E}(\vec{x}) \right]_{\vec{x}=\vec{r}_0} + \vec{r} \wedge i\omega \vec{B}(r_0) \quad (\text{VII.62})$$

en tenant compte de l'équation de Maxwell-Faraday  $\vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$ . Le terme à intégrer devient alors

$$\begin{aligned} \vec{r} \wedge \left[ (\vec{r} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{x}}) \vec{E}(\vec{x}) \right]_{\vec{x}=\vec{r}_0} &= \vec{r} \wedge \left[ \vec{\nabla}_{\vec{x}} (\vec{r} \cdot \vec{E}(\vec{x})) \right]_{\vec{x}=\vec{r}_0} \\ &- \vec{r} \wedge \vec{r} \wedge i\omega \vec{B}_0 \end{aligned} \quad (\text{VII.63})$$

Le premier terme de droite, noté  $I_1$ , est traité en premier lieu. Un calcul direct donne

$$I_1 = \sum_{i,j,k=[1,3]} \epsilon_{jkl} r_j r_i \frac{\partial E_i(\vec{x})}{\partial x_k} \vec{e}_l \quad (\text{VII.64})$$

où ici  $\epsilon_{jkl}$  est le tenseur de Levi-Civita. L'intégration volumique de ce terme vaut 0 pour  $i \neq j$ . En effet, pour  $r_z = r \cos \theta$  par exemple, on a

$$\int_{r \in [0,R], \theta \in [0,\pi], \phi \in [0,2\pi]} (r \cos \theta)^2 (r dr r \sin \theta d\theta d\phi) = -\frac{4\pi R^5}{15} \quad (\text{VII.65})$$

et pour  $r_x r_z$ , on a

$$\int_{r \in [0,R], \theta \in [0,\pi], \phi \in [0,2\pi]} (r \cos \theta r \sin \theta \cos \phi) (r dr r \sin \theta d\theta d\phi) = 0 \quad (\text{VII.66})$$

Ces intégrations sur des directions arbitraires nous montrent qu'après intégration volumique on obtient pour  $I_1$

$$I_1 = -\frac{4\pi R^5}{15} \left[ \vec{\nabla}_{\vec{x}} \wedge \vec{E}(\vec{x}) \right]_{\vec{x}=\vec{r}_0} = -\frac{4\pi R^5}{15} \vec{B}_0 \quad (\text{VII.67})$$

en utilisant l'équation de Maxwell-Faraday.

Le second terme de droite  $I_2$  dans l'expression est maintenant traité. L'identité  $\vec{r} \wedge \vec{r} \wedge \vec{B}_0 = -\vec{B}_0 r^2 + \vec{r}(\vec{r} \cdot \vec{B}_0)$  permet de faire l'intégration sur le volume. On note que dans la base  $(r, \theta, \phi)$

$$\int \vec{B}_0 r^2 d^3 \vec{r} = \vec{B}_0 \int_{\theta \in [0,\pi], \phi \in [0,2\pi]} r^4 dr \sin \theta d\theta d\phi = \frac{4\pi R^5}{5} \vec{B}_0 \quad (\text{VII.68})$$

et que, si l'on définit de manière arbitraire  $\vec{B}_0 = B_z \vec{e}_z$ , on a  $\vec{r}(\vec{r} \cdot \vec{B}_0) = \vec{r}(z B_z \cos \theta)$ . Ceci donne en intégrant

$$\begin{aligned} \int d^3 \vec{r} \vec{r} (\vec{r} \cdot \vec{B}_0) &= B_z \int r^4 dr \sin \theta \cos \theta d\theta d\phi \vec{e}_z \\ &= \frac{4\pi R^5}{15} B_z \vec{e}_z = \frac{4\pi R^5}{15} \vec{B}_0 \end{aligned} \quad (\text{VII.69})$$

Il apparaît alors que

$$\vec{m} = \frac{2\pi}{15} R^5 \omega^2 \chi_E(\omega) \epsilon_0 \vec{B}_0 \quad (\text{VII.70})$$

Les égalités  $\vec{H} = \vec{B}/\mu_0$  et  $\chi_E(\omega) = \epsilon(\omega) - 1$  donnent finalement

$$\vec{m} = \frac{2\pi}{15} R^5 \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 (\epsilon - 1) \vec{H} \quad (\text{VII.71})$$

La polarisabilité magnétique  $\alpha_H$  dans le cas d'une particule d'épaisseur de peau grande devant sa taille est donc

$$\alpha_H(\omega) = \frac{2\pi}{15} [\epsilon(\omega) - 1] R^3 \left(\frac{R\omega}{c}\right)^2 \quad (\text{VII.72})$$

La dépendance à la taille de la particule est différente de celle de la polarisabilité électrique, qui elle est proportionnelle au volume. C'est la raison pour laquelle la polarisabilité magnétique est négligeable si l'énergie des champs électrique et magnétique est comparable. Notons ici que l'on a négligé le champ créé par le dipôle induit en considérant que le champ pénétrant dans la particule est le champ incident, et non le champ total. Ceci est dû au fait que le dipôle induit a une très petite amplitude puisqu'aucun courant de surface ne vient le générer. Ce cas est donc différent du cas électrique. Il faut remarquer que les longueurs d'écrantage ne sont pas les mêmes. Le champ électrique est écranté une première fois à l'interface, sur une distance de l'ordre de quelques angstroms, la longueur de Thomas-Fermi, tandis que le champ magnétique est uniquement écranté sur une distance de l'ordre de l'épaisseur de peau, qui fait au moins 15 nm. Ceci peut se voir au travers du fait que le champ électrique est discontinu à l'interface alors que le champ magnétique est continu.





## Troisième partie

Dimensionnement d'une expérience de  
microscopie thermique pour la mesure  
du flux thermique en champ proche



## Chapitre VIII

Rayonnement thermique de champ  
proche entre une sphère et une surface  
plane : calcul approché et évaluation  
d'une expérience avec le microscope  
S<sub>Th</sub>M

## VIII.1 Introduction

Nous allons maintenant mettre à profit les calculs précédents pour essayer d'évaluer la pertinence d'une expérience de mesure de rayonnement thermique de champ proche avec le microscope thermique à sonde locale que nous avons décrit et caractérisé. En effet, les mesures du rayonnement en champ proche étant peu nombreuses, elles n'ont pas permis de vérifier toutes les prédictions jusqu'à présent. Par exemple, on a vu précédemment que les métaux et les diélectriques n'avaient pas la même dépendance à la distance et que le transfert en champ proche pour les diélectriques pouvait se faire à des longueurs d'onde données. Nous allons voir ici si la pointe Wollaston du microscope thermique de champ proche est satisfaisante et permet une mesure avec précision du rayonnement.

Nous allons d'abord calculer les niveaux de puissance thermique de champ proche échangeables entre une sphère et une surface plane par une méthode approchée, proche de la méthode PFA (Proximity Force Approximation) utilisée pour les forces de Casimir. Nous comparerons les résultats aux quelques mesures effectuées par différents groupes. Ensuite, nous décrirons le principe d'une expérience qui mime celle qui est utilisée pour mesurer les forces de Casimir. Elle consiste à fixer une bille micrométrique sphérique à l'extrémité de la sonde du microscope à force atomique, et ainsi à éviter les problèmes de parallélisme de la géométrie plan-plan. Enfin, nous évaluerons les résistances thermiques de la sonde SThM, afin d'explorer la gamme de flux thermiques et de distances qu'il serait possible de sonder dans une telle expérience.

## VIII.2 Puissance radiative échangée entre une sphère et une surface

### VIII.2.1 Approximation par le flux surfacique "plan-plan"

Le dimensionnement de l'expérience impose de connaître la puissance radiative échangée entre la sphère et la surface. Un calcul exact nécessiterait notamment de connaître la fonction de Green du développement en ondes planes de la propagation d'une onde par 2 interfaces non-parallèles, ou de développer le champ généré en un point dans une base différente. La difficulté de ce genre de calcul nous a mené à travailler différemment, et à effectuer un calcul approché. Ce calcul approché consiste dans un premier temps à considérer que la sphère est localement plane et parallèle à la surface froide en tout point de sa partie inférieure. Ceci est toujours correct. Mais on va ensuite considérer que le flux thermique transféré est celui de deux éléments de surface plans, comme dans le cas "plan-plan". Cette approximation est également utilisée pour les calculs de force de Casimir, où elle est appelée *Proximity Force Approximation* (PFA).

La condition de validité d'une telle approximation est que l'angle réel entre la direction de la surface froide et la tangente à la sphère locale reste faible. Comme ce n'est pas le cas sur les bords de la sphère, notre condition sera que le flux lié à ce bord de la sphère reste faible devant celui

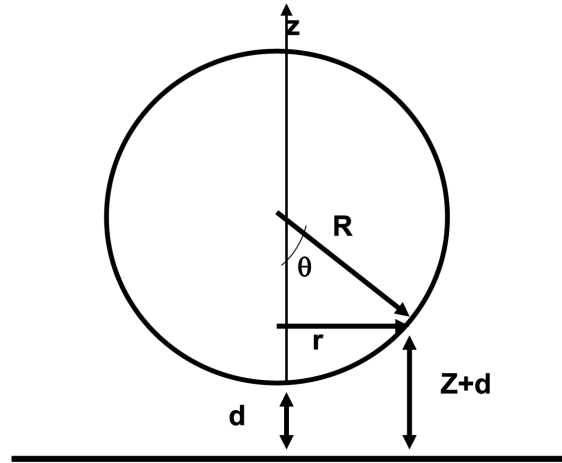


FIG. VIII.1 – Approximation pour le calcul de la puissance radiative. On calcule le flux surfacique échangé entre éléments de surface en la considérant comme étant celui du cas plan infini-plan infini.

lié à la zone où l'approximation est correcte. Nous allons essayer de quantifier dans la suite cette approximation.

### VIII.2.2 Calcul de puissance sphère-plan

Dans les calculs suivants, nous allons considérer que le flux thermique est la somme d'un flux propagatif et d'un flux évanescent. Nous allons à chaque fois donner les valeurs du flux propagatif et du flux évanescent, pour pouvoir dire à partir de quelle distance le flux évanescent va être supérieur au flux propagatif. Nous allons de plus considérer différents rayons de sphère, pour trouver un optimum. Nous nous basons sur les calculs de flux "plan-plan" avec description locale présentés précédemment. La puissance radiative est calculée sous la forme :

$$P = \int_0^R h(d + z(r)) 2\pi r dr \quad (\text{VIII.1})$$

où  $h(x)$  est le flux surfacique transféré entre deux plans parallèles séparés par une distance  $x$ .  $d$  est la distance entre la sphère et le plan, et  $Z + d$  la distance entre la couronne située à une distance  $r$  de l'axe de la sphère et le plan (voir figure VIII.1).

#### Cas des diélectriques

Nous avons fait des calculs pour le verre (silice amorphe) essentiellement. Nous donnons premièrement pour un grand nombre de rayons la puissance obtenue dans cette approximation. On constate sur la figure VIII.2 que le comportement obtenu est différent pour les très petits rayons et les grands rayons de sphère. En effet, on aperçoit une inflexion sur le comportement extrapolé pour la sphère de petit rayon, alors qu'on en n'aperçoit pas pour les sphères de grand rayon. De plus, on voit que si la sphère a un rayon grand par rapport à la longueur d'onde caractéristique, la puissance propagative reste relativement importante, même lorsque la distance sphère-plan est très petite. La surface qui ne génère pas de puissance évanescente efficace est en effet extrêmement importante. L'échelle logarithmique montre bien qu'il faut atteindre des distances inférieures à 50 nm pour que la courbe des puissances totales soit bien détachée de celle qui ne prend en compte que

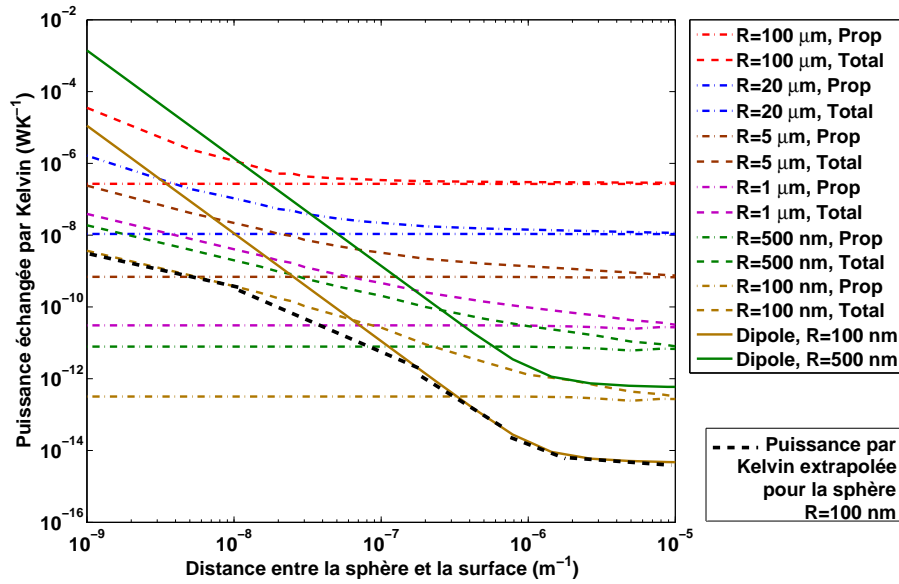


FIG. VIII.2 – Calcul numérique en approximation PFA (Proximity Flux Approximation dans notre cas) de l'échange de puissance entre une sphère de verre et un substrat en fonction de différents rayons et différentes distances entre la sphère et la surface. En bas de la figure, on a extrapolé le comportement réel d'une sphère de 100 nm de rayon en reliant les approximations PFA (noté "Total") et dipolaire.

la puissance propagative. L'intérêt de l'expérience de Kittel (Kittel, 2005) est d'avoir une sphère équivalente beaucoup moins grosse. Dans ce cas, l'arrivée dans le champ proche de la surface a lieu en même temps pour tous les éléments de la sphère, et les courbes de puissance propagative et total se disjoignent beaucoup plus fortement (voir Figure). Finalement, nous remarquons qu'à courte distance la même dépendance à la distance est obtenue pour tous les rayons, en  $1/d$ . Cette dépendance est différente du cas plan-plan en  $1/d^2$ , et du cas dipôle-plan, en  $1/d^3$ .

Les premières mesures de Narayanaswamy montrent que l'ordre de grandeur de la puissance échangé dans le cas de sphères de silice de 50 microns de diamètre est estimé à  $1 \text{ nWK}^{-1}$  à des distances de séparation de quelques microns, alors que notre approximation nous donne plutôt  $10 \text{ nWK}^{-1}$ . Notre approximation est a priori relativement correcte aux plus faibles distances mesurées ( $R/d \simeq 25$ ). La différence vient peut être des constantes diélectriques des matériaux qui peuvent être différentes et de notre définition de la conductance thermique valable pour de plus petits écarts de températures ( $\lim_{\Delta T} \frac{\Delta P}{\Delta T}$ ).

### Cas des métaux

On a vu que les métaux ont une dépendance très différente, avec saturation dans le cas plan-plan et un changement de pente à une distance donnée, équivalente à plusieurs rayons de particule, dans le cas particule-plan. Une intégration comme précédemment nous donne ici aussi une saturation à courte distance. La courbe présentée nous donne des niveaux de puissance par Kelvin à 300K pour tout un domaine de rayons de sphère. Les rayons les plus faibles sont à rapprocher de l'expérience de Kittel. La différence essentielle entre Kittel et ce type de calcul est que Kittel utilise de l'or déposé sur sa pointe, le dépôt ayant une taille de 20 nm. Le groupe de Holthaus (Biehs, 2007a; Biehs, 2007b), collègue de Kittel à Oldenburg, a montré qu'un dépôt peut amplifier le flux rayonné, car il y a pour certaines bonnes tailles de dépôt un "effet Fabry-Pérot" à résonances. La puissance

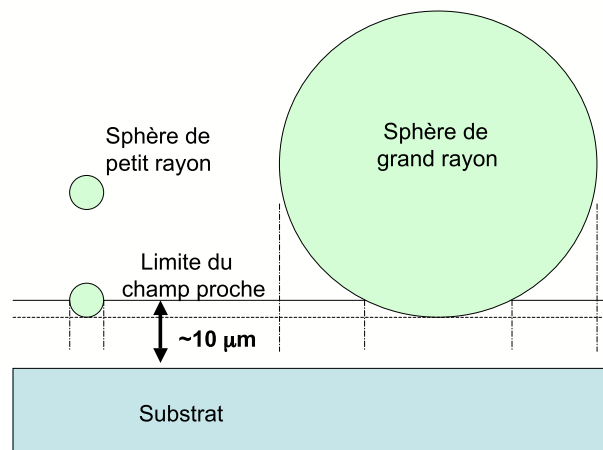


FIG. VIII.3 – Une petite sphère aura un meilleur signal  $\frac{\text{Contribution propagative}}{\text{Puissance change totale}}$  qu'une sphère de rayon largement supérieur à  $10 \mu\text{m}$ .

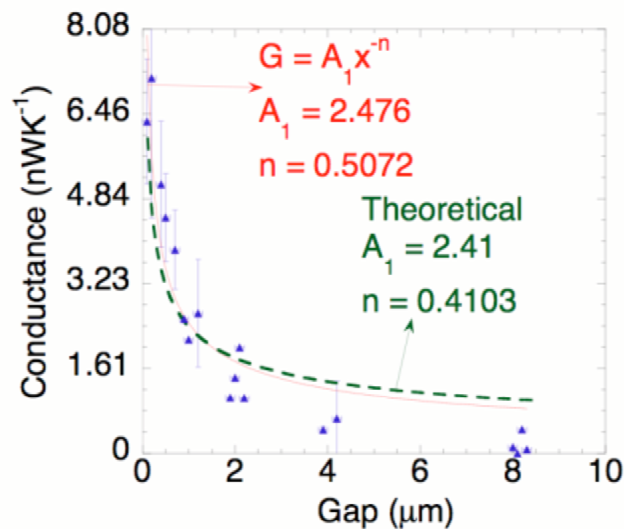


FIG. VIII.4 – Mesures de conductance thermique de champ proche pour une sphère de silice de rayon  $25 \mu\text{m}$  chauffée de  $40 \text{ K}$ . L'ordre de grandeur estimé est le  $\text{nWK}^{-1}$ . D'après (Narayanaswamy, 2007).

échangée pourrait dans ce cas être quelques ordres de grandeur supérieure à celle du cas où on a un matériau homogène. Trois à quatre ordres de grandeurs semblent possibles dans le cas du bismuth. Néanmoins, sachant que Kittel évalue le rayon de courbure de sa pointe aux alentours de 30-50 nm (Mueller-Hirsch, 1999; Mueller-Hirsch, 2000; Kittel, 2005), on remarquera que la puissance annoncée est extrêmement élevée (jusqu'à  $10^{-5} \text{ W}$ ). Elle correspond en effet, pour des différences de températures de l'ordre de 200 K, à des conductances thermiques de l'ordre de  $10^{-7} \text{ WK}^{-1}$ , alors que notre modèle sans résonance Fabry-Pérot nous donnerait un ordre de grandeur de  $10^{-11} \text{ WK}^{-1}$ .



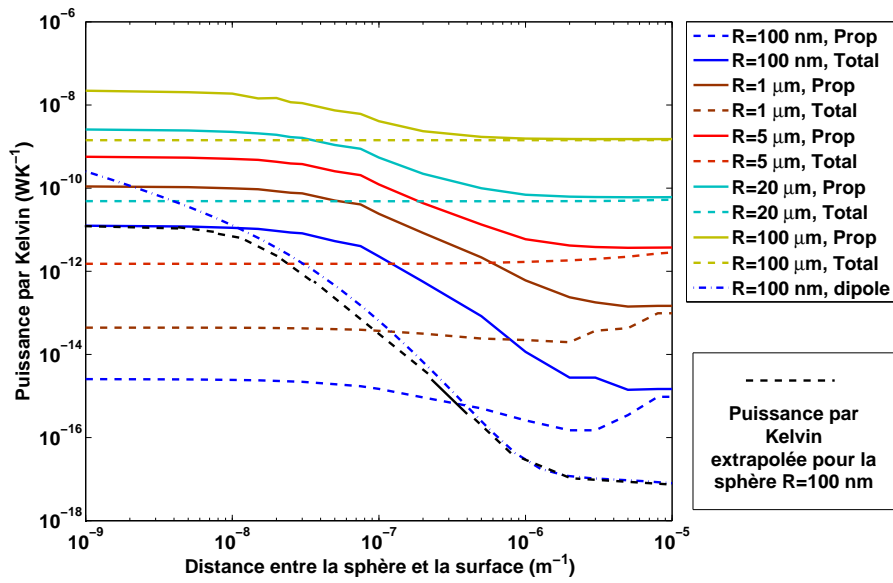


FIG. VIII.5 – Puissance échangée par Kelvin à 300 K pour des sphères et des substrats d’or de différents rayons. L’approximation PFA est valable pour  $R \gg d$  et l’approximation dipolaire valable pour  $R \ll d$ . La courbe rouge saccadée en bas de la figure montre comment on peut ainsi relier les courbes dans leur domaine de validité pour présenter la puissance échangée par Kelvin pour le cas de la sphère de rayon  $R=100$  nm.

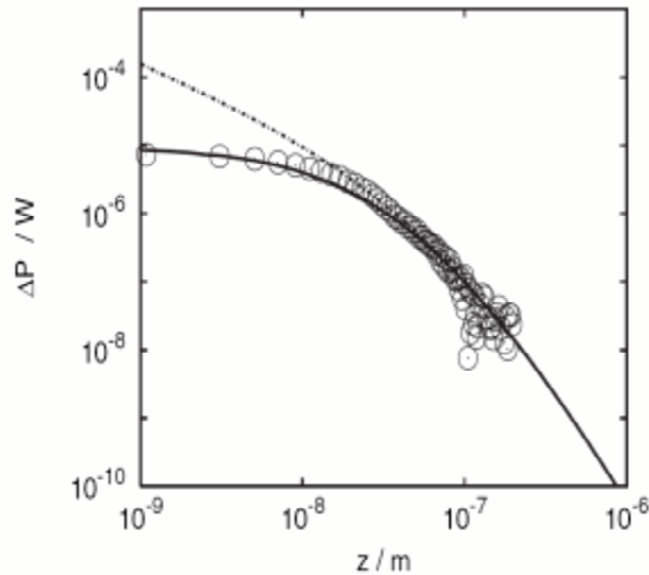


FIG. VIII.6 – Puissance échangée (cercles) entre la pointe AFM métallisée avec de l’or et une surface d’or dans le cadre de l’expérience de Müller-Hirsch et Kittel à Oldenburg (Mueller-Hirsch, 1999; Mueller-Hirsch, 2000; Kittel, 2005).

### VIII.2.3 Comportements asymptotiques et régimes de distance

#### Matériaux diélectriques

A petite distance  $d$ , on peut utiliser des expressions asymptotiques pour déterminer la dépendance en distance de la contribution évanescente. On commence par les matériaux diélectriques. Pour

deux matériaux identiques à surfaces planes parallèles, on peut écrire près des résonances des phonons-polaritons (Mulet, 2002) :

$$h_\omega = \frac{1}{\pi^2 d^2} \frac{Im(\epsilon)^2}{|1 + \epsilon|^4} k_B \left( \frac{h\omega}{2\pi k_B T} \right)^2 \frac{e^{\frac{h\omega}{2\pi k_B T}}}{(e^{\frac{h\omega}{2\pi k_B T}} - 1)^2} \quad (\text{VIII.2})$$

$$= \frac{C_\omega}{d^2} \quad (\text{VIII.3})$$

Le flux thermique monochromatique s'écrit donc

$$\phi_\omega = \int_0^R \frac{C_\omega}{(z+d)^2} 2\pi r dr \quad (\text{VIII.4})$$

où  $C_\omega$  est défini dans l'expression précédente. Si  $r = R \sin\theta$ , on trouve alors que

$$\phi_\omega = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{2\pi C_\omega R^2 \sin\theta \cos\theta d\theta}{[d + R(1 - \cos\theta)]^2} \quad (\text{VIII.5})$$

d'où finalement

$$\phi_\omega = 2\pi C_\omega \left[ \frac{R}{d} - \ln\left(1 + \frac{R}{d}\right) \right] \quad (\text{VIII.6})$$

Pour des distances  $d \ll R$ , on trouve une dépendance asymptotique à la distance

$$\phi_\omega \simeq \frac{2\pi R}{d} \cdot C_\omega \quad (\text{VIII.7})$$

différente du cas plan-plan, correspondant bien à l'intégration numérique de la figure 2.

### Métaux

Dans le cas des métaux, une telle intégration nous donne bien évidemment également la saturation.

## VIII.3 Procédé expérimental envisagé

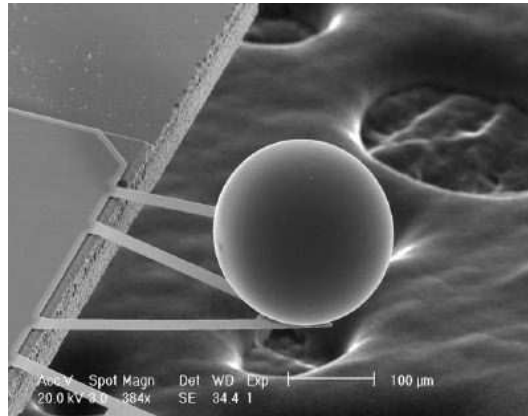


FIG. VIII.7 – Expérience de Mohideen pour mesurer la force de Casimir : une sphère micrométrique est collée sous une pointe AFM

L'expérience que nous envisageons dans ce chapitre ressemble fortement aux expériences de Mohideen (Mohideen, 1998) et du groupe de Chevrier (Torricelli, 2005) (voir figure VIII.7). Celles-ci ont également été mimées récemment par Arvind Nyaraswamy et Gang Chen pour leur mesure de rayonnement en champ proche dans la gamme de distance micrométrique et submicrométrique, jusqu'à 100 nm. Elle diffère fortement de celles de Hargreaves et de la méthode utilisée par Muller-Hirsch et Kittel. Cette expérience consiste à coller au bout de la sonde AFM une bille micrométrique. En effet, le test de la situation académique de type plans parallèles est difficile. Cette difficulté est essentiellement due au parallélisme parfait nécessaire dans une expérience plan-plan. On estime que ce genre de problème pourrait en partie être responsable de l'échec de l'expérience de Xu et Dransfeld à la fin des années 80.

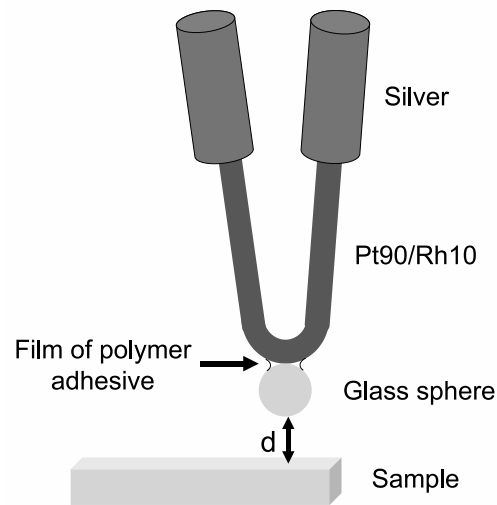


FIG. VIII.8 – Une sphère micrométrique est collée sous la pointe Wollaston du SThM, sur la partie dénudée en platine rhodié.

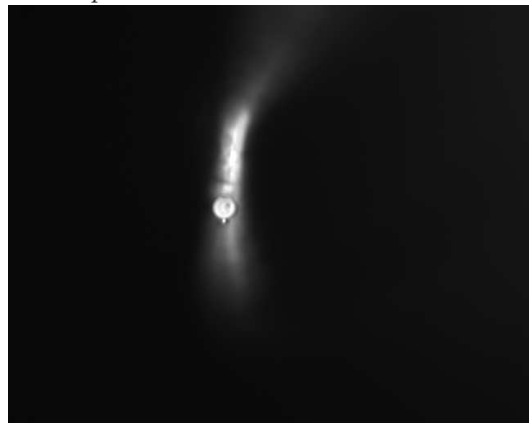


FIG. VIII.9 – Démonstration expérimentale de la possibilité de coller une sphère sur une pointe Wollaston sans que celle-ci ne soit abîmée. Cas d'une sphère de diamètre de l'ordre de 5  $\mu\text{m}$  (image de microscopie optique, ).

C'est pour cette raison que Mohideen (Mohideen, 1998) a eu recours à une sphère. En effet, quel que soit l'angle d'arrivée de la pointe AFM, la sphère fait face à la surface. Le problème expérimental du parallélisme est donc en quelque sorte échangé contre un problème de calcul de puissance thermique dans une situation moins académique. De plus, il a été envisagé que pour

certains matériaux fondus les forces de tension superficielle sur le contour de la sphère pouvaient diminuer la rugosité au cours de la fusion. Ce ne semble néanmoins pas être le cas pour un certain nombre de matériaux. Dans l'expérience de Mohideen, la pointe avec la bille est approchée de la surface petit à petit, et la photodiode laser retranscrit la torsion du levier (*cantilever*) de la pointe AFM sous l'action de la force d'attraction de la surface. Notre cas diffère cependant, dans la mesure où nous devons en plus mesurer un flux thermique.

Nous allons donc utiliser la sonde Wollaston, qui permet de générer un profil de température dans une zone donnée. L'élévation de température va également être ressentie dans la sphère qui lui est fixée, et, si la surface a une température différente, un flux radiatif sera généré entre la bille sphérique et la surface. Il nous reste à déterminer comment fixer la sphère à l'extrémité de la pointe Wollaston. Différentes options semblent possibles : on peut par exemple faire fondre un matériau sur l'extrémité de la sonde. On dépose sur l'extrémité de la pointe une masse de matériau. A l'aide d'un faisceau laser de durée donnée, on va la faire fondre, de sorte qu'une goutte soit formée sous l'action de la gravité. La goutte de matériau va ensuite se refroidir, avec une forme arrondie. Cette option assure une bonne transmission de la chaleur entre la pointe et la bille.



**FIG. VIII.10** – *Platine de micromanipulation sous microscope optique développée pour le collage de bille. On aperçoit deux platines de microcontrôle. Sur l'une d'entre elle sont montés deux actionneurs piézoélectriques (XY et Z). Le système est disposé sous un microscope dont l'optique permet une manipulation facile des échantillons.*

Une autre option, sur laquelle s'est portée notre choix, est d'utiliser un liant entre la pointe AFM et une sphère déjà existante. Nous avons montré la faisabilité en procédant d'une manière analogue à Lionel Aigouy (ESPCI). Dans son expérience, celui-ci colle des nanoparticules fluorescentes à des pointes AFM en tungstène. Le recours à une platine de micromanipulation (voir figure 10) est nécessaire pour coller des objets aussi petits. Même si notre objet à coller est plus grand (d'un facteur 10 à 100), la méthode est parfaitement transposable. Néanmoins, nous avons une contrainte supplémentaire : la colle doit résister à l'élévation de température, et transmettre correctement la chaleur pour que celle-ci puisse chauffer la bille, condition de l'existence d'un flux thermique. La figure 8 présente le principe de l'expérience. Des billes de différents matériaux sont utilisables, notamment de verre et de saphir (alumine cristallisée). On peut métalliser les billes si on veut étudier le transfert radiatif de champ proche avec des métaux tels que l'or ou le cuivre. La figure 9 montre le résultat de la fixation d'une sphère de silice de rayon proche de 5 microns.

## VIII.4 Circuit thermique et sensibilité de la sonde

Nous allons maintenant utiliser les calculs précédents pour estimer la sensibilité de notre sonde. Les paramètres clés sont donnés par la géométrie du circuit emprunté par le flux de chaleur et les conductivités thermiques des matériaux. On se basera sur un calcul où la sonde est utilisée en régime permanent. On peut donc décrire le circuit thermique par différents éléments de conductances thermiques, que nous allons maintenant calculer. On note  $G_{sp}$  la conductance de la sphère,  $G_{sw}$  la conductance de la zone entre la sphère et la sonde Wollaston et  $G_p$  la conductance de la sonde. Dans ce chapitre, on considère que l'élévation de température est confinée dans la partie dénudée du fil de Wollaston.

Deux configurations sont possibles : soit c'est la bille qui est chauffée, soit c'est la surface qui est chauffée. Dans le cas où le substrat est chauffé, celui-ci rayonne sur la bille, sur la partie apparente du SThM, et tout autour dans la chambre à vide où est situé le SThM. Comme la zone de chauffage sur le substrat est relativement grande, on n'a pas un chauffage localisé. Dans le cas où c'est la pointe qui chauffe la bille, la zone de chauffage est étendue (bille+pointe=100 microns+diamètre de la bille), mais les éléments étant fins (le diamètre du fil est 5 microns), la surface émettrice est plus faible. De plus, la pointe SThM est plus chaude à son extrémité, comme nous le montre le profil de température dans la pointe Wollaston en l'absence de bille. On estime donc que la meilleure des situations est celle où la bille est chauffée et non le substrat. C'est d'ailleurs le type de configuration qu'ont étudiés Nayaranaswamy et Chen (Narayananaswamy, 2007).

### VIII.4.1 Conductance de la sphère

On considère dans ce chapitre une sphère de verre. Notons premièrement que le verre n'est pas un matériau optimum pour le transfert de puissance thermique, car il ne conduit pas très bien. Sa conductivité thermique vaut en effet  $\lambda \simeq 1.4 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ . L'ordre de grandeur de  $G_{sp}$  peut être déterminé simplement en remarquant qu'elle est de l'ordre de  $\lambda \frac{S}{l}$  avec  $S = \pi R^2$  et  $l$  de l'ordre du rayon  $R$ . Pour une sphère de rayon  $R = 5 \cdot 10^{-6} \text{ m}$  on trouve que

$$G_{sp} \simeq \lambda R \simeq 7 \cdot 10^{-6} \text{WK}^{-1} \quad (\text{VIII.8})$$

Une simulation numérique par éléments finis (logiciel FEMLAB), qui prend en compte un contact avec le polymère adhésif sur une surface de  $1 \mu\text{m}^2$  et l'arrivée d'un flux thermique issu de la surface, nous donne une estimation de  $G_{sp} = 9,7 \cdot 10^{-6} \text{WK}^{-1}$ .

### VIII.4.2 Conductance à l'interface sphère-sonde Wollaston

Le contact à l'interface entre la sphère et le fil de Wollaston dénudé peut être décrit à l'aide de deux conductances thermiques. En effet, le flux emprunte deux voies pour se propager : soit directement par le contact solide entre la sphère et le fil, soit à travers le polymère qui les maintient collés.

#### Conductance solide-solide

Nous devons maintenant évaluer la conductance solide-solide entre le fil de platine rhodié et la sphère. D'après la théorie de Hertz du contact entre deux corps, l'aire du contact peut être décrite à l'aide d'un rayon de contact moyen :

$$a = \left( \frac{RF}{K} \right)^{1/3} \quad (\text{VIII.9})$$

où  $R = \frac{R_1 R_2}{R_1 + R_2}$  est la moyenne des rayons de courbure des corps et  $K$  la moyenne des modules élastiques. Nous considérons que les corps en présence n'adhèrent pas facilement l'un à l'autre. Nous avons besoin d'après l'équation précédente d'une estimation de la force exercée par l'un des corps sur l'autre. Cette force est due au polymère adhésif qui colle les corps entre eux. On peut estimer cette force comme étant au mieux de l'ordre de la contrainte d'élasticité. On obtient alors un rayon  $a$  d'environ 100 nm et une conductance de contact maximale de  $G_c \simeq 4 \cdot 10^{-7} \text{ Wm}^{-2}\text{K}^{-1}$ . Remarquons qu'une situation sans contact est possible si le polymère adhésif ne permet qu'un contact lâche.

### Conductance liée au polymère

Nous allons maintenant évaluer la conductance du polymère adhésif  $G_{po}$ . La conductivité des polymères est en général dans la gamme  $[10^{-2}; 5 \cdot 10^{-1}] \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ . Le polymère que nous avons choisi pour le moment doit pouvoir être résistant à une élévation de température. Une option envisageable est l'utilisation de colles avec inclusion de particules micrométriques métalliques. Notre option est différente, afin qu'un contact micrométrique soit possible, ce qui n'est a priori pas le cas lorsqu'il y a des inclusions de même taille.

Certains polymères de *Norland*, thermodurcissables sous éclairage U.V., peuvent résister jusqu'à 125°C. Nous avons choisi l'un d'entre eux, dont la conductivité thermique est  $\lambda_{po} = 0.17 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ . On considère que les lignes de flux dans le polymère sont verticales. La conductance dépendra de la distance entre le fil et la sphère  $d_{sw}$ . Si l'on estime le diamètre du cylindre de contact d'une taille supérieure à 1  $\mu\text{m}$ , ce qui est une minoration probablement, on trouve que la conductance thermique vaut  $2.5 \cdot 10^{-5} \text{ WK}^{-1}$  lorsque  $d_{sw} = 100 \text{ nm}$ . En conséquence, la conductance au contact solide-solide sera négligeable devant la conductance due au polymère.

Finalement, ces évaluations nous montre qu'il est possible de transmettre correctement une élévation de température, puisque les résistances thermiques du circuit sont faibles devant celle qui est due au transfert par rayonnement de champ proche. A très courte distance et pour des sphères de très gros rayon, elle sont comparables dans le cas le plus défavorable.

### VIII.4.3 Sensibilité avec la sonde Wollaston

Comme nous connaissons les conductances, nous pouvons maintenant évaluer la température moyenne du fil de platine rhodié. La résistance thermique entre l'échantillon plan et l'extrémité du fil de platine est

$$R_{tot} = \frac{1}{G_{NF}} + \frac{1}{G_{sp}} + \frac{1}{G_c} = \frac{1}{G_{tot}} \quad (\text{VIII.10})$$

où  $G_{NF}$  est la conductance thermique entre la sphère et la surface plane de l'échantillon. Pour un grand nombre de distances et de rayons de sphère on aura  $G_{tot} \simeq G_{NF}$ .

Nous détectons dans l'échantillon la chute de température due au flux circulant vers l'échantillon froid.

Le profil de température dans la sonde Wollaston est parabolique (voir Partie 1), et la température moyenne de la sonde est donnée par

$$T_M = T_0 + \frac{\rho_e I_0^2 L^2}{3\lambda S} + (T_{Surf} - T_0) \frac{G_{tot} L}{2(2\lambda S + G_{tot} L)} - \frac{\rho_e I_0^2 L^3 G_{tot}}{4\lambda S(2\lambda S + G_{tot} L)} \quad (\text{VIII.11})$$

avec  $G_{tot} = \frac{1}{R_{tot}}$  et les autres notations sont identiques à la Partie 1. C'est l'élévation (ou la diminution) de température moyenne

$$\Delta T = \frac{G_{tot}L}{2(2\lambda S + G_{tot}L)} \left[ (T_{Surf} - T_0) - \frac{\rho_e I_0^2 L^2}{2\lambda S} \right] \quad (\text{VIII.12})$$

que nous mesurons dans la sonde (voir Partie 1). On peut séparer deux termes dans cette différence de température. D'une part, la puissance dissipée par effet Joule peut désormais s'échapper par rayonnement de champ proche vers la surface et n'est plus confiné dans la pointe, ce qui diminue la température. D'autre part, un flux supplémentaire peut être généré si on chauffe ou refroidit la surface, car il n'y aura alors pas équilibre du rayonnement. Ces deux termes sont donc dus à des causes différentes.

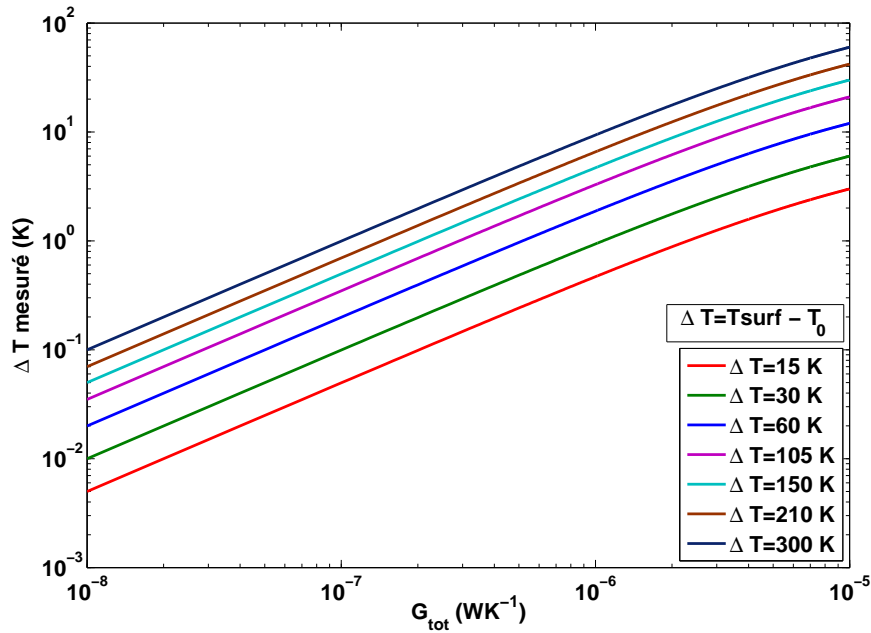


FIG. VIII.11 – *Ecart de température à mesurer dans la sonde en fonction de la conductance  $G_{tot}$*

On voit immédiatement que la sensibilité à  $G_{NF}$  est maximale lorsque  $G_{tot} \ll \frac{2\lambda S}{L}$ , où  $\frac{\lambda S}{L} = 1.5 \cdot 10^{-5} \text{ WK}^{-1}$ . Ceci est toujours vrai pour les métaux d'après nos calculs. C'est également vrai pour toute une gamme de distances et de tailles pour les matériaux diélectriques. Dans le cas où  $G_{tot} \simeq G_{NF}$  et où on refroidit fortement la surface, on a  $\Delta T = \frac{G_{NF}L}{4\lambda S}(T_{Surf} - T_0) \simeq \frac{G_{NF}(T_{Surf} - T_0)}{3 \cdot 10^{-5}} \text{ K}$ . Un comportement linéaire est ainsi observable sur la figure 11. Pour une surface refroidie de 100 K on trouve qu'on peut détecter une conductance de  $1.5 \cdot 10^{-7} \text{ WK}^{-1}$  si on estime la limite de sensibilité en température du microscope SThM à 0.5 K. Cela nous montre que la détection du flux rayonné par des métaux sera quasiment impossible avec ce dispositif. Par contre, la mesure de matériaux diélectriques semble possible pour des distances inférieures à 50 nm si on se réfère à la figure 6. Nous avons ici fait tous les calculs dans un régime permanent, mais remarquons que pour un régime harmonique à très basse fréquence les profils seraient quasi identiques. Il faudrait que la fréquence soit dans ce cas très inférieure à  $a/(R + L + D)^2$  où  $a$  est l'ordre de grandeur de la diffusivité thermique ( $10^{-6}$  à  $10^{-5} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ ), ce qui nous donnerait une fréquence de l'ordre de quelques Hz.

Il semble donc possible de mesurer une puissance échangée due au rayonnement thermique de champ proche si l'on refroidit la surface. Mais ce type de mesure ne permettra que d'observer des

échantillons diélectriques. La saturation des métaux à courte distance ne sera pas observable. Une autre technique doit alors être envisagée, comme par exemple celle de Kittel (Kittel, 2005).

## VIII.5 Conclusions

Nous avons étudié dans ce chapitre une configuration expérimentale permettant la mesure du rayonnement thermique de champ proche. Cette configuration expérimentale consiste à utiliser le microscope AFM à sonde thermique locale, placé en chambre à vide, et sur lequel une bille sphérique est collée à l'extrémité de la sonde thermique. L'utilisation de ce microscope dédié à l'étude de phénomènes thermiques semblait prometteuse, et les simulations numériques montrent qu'il doit être en effet possible de mesurer un flux rayonné en champ proche avec la sonde Wollaston pour des distances inférieures à quelques dizaines de nanomètres pour certains matériaux (diélectriques). Néanmoins, ces mesures n'ont pas été effectuées pour le moment à cause de la rugosité des sphères micrométriques que nous avons obtenues. Celles-ci sont souvent très détériorées par rapport à ce que nous espérions. Nous pouvons remarquer que les mesures de forces de Casimir sont souvent faites à des distances supérieures à 50 nm, seuil assez élevé au regard des simulations que nous avons faites. L'observation de la saturation pour les métaux ne semble pas possible compte tenu de ces caractéristiques techniques. Une autre technique, qui repose sur l'effet bilame et qui a été développée par Chen et Nayaranaswamy suite aux travaux de Majumdar (Nakabeppu, 1995), est envisagée actuellement pour commencer. La sensibilité en température est bien meilleure qu'avec la sonde Wollaston, de deux ordres de grandeur au moins. La mesure du rayonnement de champ proche de métaux doit donc être possible avec cette méthode.





# Conclusion

CES travaux de thèse apportent un éclairage nouveau sur les transferts d'énergie à des échelles comparables ou plus faibles que les tailles caractéristiques que sont la longueur d'onde du photon ou le libre parcours moyen du porteur de chaleur. Ils montrent notamment l'importance des régimes de champ proche et balistique, lorsque les effets d'ondes évanescentes et de vol direct sans collision sont responsables de la modification du transfert de chaleur. Nous nous sommes focalisés sur l'étude de configurations de type pointe-surface, mais les tailles de pointe pouvant varier beaucoup, les configurations étudiées dans ce mémoire sont relativement diverses et peuvent être appliquées dans bien d'autres cas.

Nous avons abordé dans un premier temps la problématique de la conduction thermique. La nécessité de bien maîtriser l'outil d'étude que nous avons utilisé, le microscope à force atomique instrumenté d'une sonde thermique dite Wollaston, a conduit à présenter les autres types de microscopes thermiques, puis à approfondir les travaux précédents. Une limitation intrinsèque à la mesure de la conductivité thermique a été proposée. Nous avons pu montrer que la sensibilité de l'instrument augmente lorsque la sonde est échauffée à des niveaux élevés, mais que ce chauffage implique des corrections dans les équations qui décrivent la sonde. Nous avons notamment montré qu'en régime harmonique dit  $3\omega$ , des couplages entre températures continue et harmoniques sont présents, qu'il convient de les prendre en compte le mieux possible si l'on souhaite une très grande résolution. Nous avons également quantifié l'influence d'un mauvais positionnement de la pointe thermique sur l'échantillon.

Les transferts thermiques conductifs dans l'air ont ensuite été analysés expérimentalement. Ils sont diffusifs à pression ambiante pour les configurations habituelles, mais deviennent au moins en partie balistiques dès qu'une dimension se rapproche du libre parcours moyen des molécules. Nous avons dans un premier temps placé le microscope à force atomique sous vide afin d'étudier l'influence de la diminution de la pression sur la température de sonde. De la sorte, nous avons quantifié les pertes thermiques entre le fil micrométrique utilisé comme sonde et le gaz ambiant. Ce travail préliminaire ayant été effectué, nous avons mesuré le flux thermique transféré à l'échantillon par la sonde dans la phase d'approche de la pointe. Nous avons notamment pu observer des domaines de distances pour lesquelles la loi de Fourier n'est pas applicable. La compréhension du phénomène a été possible à l'aide d'un modèle simple pour les trajectoires des lignes de flux.

Cette mise en évidence nous a conduit à étudier numériquement le flux balistique issu d'une pointe nanométrique. Dans ce cas, un modèle de conductance verticale devient clairement caduque car les lignes de flux s'étalent lorsque la distance entre la pointe et la surface augmente. Nous avons aussi observé que la géométrie de la pointe peut influencer la forme de la tache thermique sur l'échantillon aux très faibles distances.

La seconde partie de ce mémoire a traité des phénomènes de transfert par rayonnement thermique pour les petites distances. Dans ce cas, l'utilisation habituelle de l'équation de transfert radiatif n'est plus possible et l'électromagnétisme de Maxwell doit être utilisé pour le calcul du flux thermique. Nous nous sommes tout d'abord intéressés au transfert entre deux demi-espaces infinis parallèles. Une expérience avait montré que la puissance radiative échangée entre une pointe

métallique et un substrat également métallique semblait saturer pour des distances inférieures à quelques dizaines de nanomètres. Un modèle heuristique avait été proposé pour interpréter cette saturation, qui pouvait avoir pour origine un effet de raréfaction de porteurs de charges électriques. La longueur de coupure associée à la saturation était donc le libre parcours moyen des électrons.

Nous avons montré que, pour la géométrie plan-plan, la saturation était toujours présente pour les métaux, même en utilisant un modèle d'optique locale qui ne prend pas en compte explicitement le libre parcours moyen des électrons. Ceci avait cependant déjà été observé antérieurement. Nous avons pu interpréter la distance de coupure en montrant qu'elle était liée à l'épaisseur de peau du métal. Cette grandeur est en effet fondamentale près des surfaces métalliques : elle peut notamment séparer deux régimes de distances à proximité d'une surface. Nous avons montré que la contribution de la polarisation  $s$  au flux radiatif domine. Ce travail semblait convaincant mais les distances mises en jeu étant très réduites, il nous a semblé important de vérifier si les effets non-locaux pouvaient avoir une influence significative. Nous avons pu montrer que ce n'était pas le cas, et que les corrections de non-localité ne sont pas nécessaires pour le rayonnement de champ proche entre deux surfaces planes séparées d'une distance de quelques nanomètres. Elles sont cependant primordiales dans le régime des très courtes distances, puisqu'elles permettent d'assurer que le flux radiatif ne diverge pas lorsque la distance devient sub-nanométrique. Bien que ce modèle ne soit pas complet, il permet donc de comprendre l'évolution du flux en fonction de la distance interplanare.

Nous avons ensuite considéré le cas de l'interaction entre une nanoparticule de faible rayon par rapport à l'épaisseur de peau et un demi-espace infini, tous deux étant métalliques. La nanoparticule peut notamment représenter l'extrémité d'une pointe de microscope à force atomique. Nous avons montré que les travaux précédents étaient incomplets, et que l'assimilation de la nanoparticule au seul dipôle électrique est fautive. Il est en effet capital de considérer le moment dipolaire magnétique. La dissipation dans la nanoparticule métallique s'avère due aux courants de Foucault stochastiques. La contribution magnétique de la polarisation  $s$  est prédominante. Ceci est dû à la très forte densité d'énergie près de la surface qui lui est associée. Nous avons montré que cette grande concentration d'énergie peut être analysée à l'aide des facteurs de réflexion optique.

Ces constatations nous ont amené à calculer le transfert radiatif entre deux nanoparticules métalliques. En effet, les travaux présentés aux chapitres précédents suggéraient la nécessité de prendre en compte également les contributions dipolaires magnétiques pour les particules de très faibles diamètres. Nous avons pu vérifier que cette prise en compte était bien nécessaire. De plus, nous avons présenté la première courbe de dépendance à la distance valable dans tous les domaines d'éloignement, du transfert radiatif entre nanoparticules. Ceci a montré qu'un des trois termes dépendant de la distance n'est jamais prépondérant, et que l'expression de la puissance échangée peut être assimilée à la somme de deux expressions asymptotiques simples.

Le dernier chapitre de ce mémoire a permis de faire le lien entre l'approche expérimentale de microscopie à sonde thermique locale et les calculs de rayonnement de champ proche. Nous y avons dimensionné une expérience qui consiste à utiliser la pointe thermique Wollaston en lui adjoignant une sphère de rayon micrométrique pour mesurer le flux radiatif de champ proche. Nous avons montré la faisabilité *a priori* pour les matériaux polaires, mais la difficulté pour les métaux.

Ces travaux trouvent naturellement leur application dans l'expérience de mesure de rayonnement de champ proche qui est en cours de préparation au laboratoire par Emmanuel Rousseau. L'utilisation d'un dispositif un peu différent de celui proposé dans le dernier chapitre de ce manuscrit devrait permettre d'augmenter la sensibilité de l'expérience. Plus généralement, il s'avère nécessaire aujourd'hui de comparer les prédictions théoriques de rayonnement de champ proche avec des mesures, pour l'instant très peu nombreuses. Les expériences avec les métaux pourraient par

exemple permettre des mesures indirectes de fréquence plasmon ainsi qu'il l'a été montré. L'analyse de la transition entre contact et rayonnement thermique reste un joli défi pour les années à venir. Des applications pour les dispositifs thermophotovoltaïques ont déjà été envisagées. Le développement de l'utilisation des nanoparticules devrait également permettre de concevoir des expériences pour tester les prédictions.

La microscopie thermique semble devoir rester un outil incontournable pour les années à venir, même s'il faut bien reconnaître qu'elle est plus difficile à maîtriser que la microscopie à force atomique usuelle. Les problèmes de résistance thermique de contact sont en effet cruciaux dans l'analyse globale des transferts thermiques. L'une des difficultés en particulier est la maîtrise de la géométrie de contact. Nous avons vu cependant que cette microscopie demeure un outil crucial pour sonder les régimes de conduction thermique non diffusifs. La miniaturisation des pointes thermiques permettra prochainement d'observer des comportements clairement balistiques.

Plus généralement, il semble que les besoins croissants en maîtrise de l'énergie, dûs aux enjeux environnementaux, ainsi que la course mondiale à l'efficacité industrielle vont nécessiter des efforts encore considérables pour comprendre et contrôler les transferts d'énergie. Le domaine des nanosciences semble apte à livrer un certain nombre d'avancées.



# Références

- M. Antezza, L.P. Pitaevskii, et S. Stringari, *Physical Review Letters* 95, 113202 (2005)
- N. Ashcroft et N.D. Mermin, *Solid State Physics*. International Edition, Saunders, Philadelphia (1976)
- P.F. Baldasaro, J.E. Raynolds, G.W. Charache, D.M. DePoy, C.T. Ballinger et T. Donovan, J.M. Borrego, *Journal of Applied Physics* 89, 3319 (2001)
- L.J. Balk, M. Maywald, R.J. Pylkki, *Institute of Physics Conference Series* 146, 655 (1995)
- S.A. Biehs, D. Reddig, M. Holthaus, *the European Physical Journal B* 55, 237-251 (2007)
- S.A. Biehs, *the European Physical Journal B* 58, 423-431 (2007)
- G. Bimonte, *Physical Review Letters* 96, 160401 (2006)
- C.F. Bohren, D.R. Huffmann, *Absorption and scattering of light by small particles*, Wiley-Interscience, New York, 1983
- H.J. Bomelburg, *Physics of Fluids* 2, 717 (1959)
- T. Barilero, P.O. Chapuis, D. Pujade, S. Guilet, V. Croquette, L. Jullien, S. Volz, C. Gosse, *Thermal Characterization of a Microfluidic Cell using the  $3\omega$  Method*, TRANSDUCERS 2007 : Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems Conference, 1849-1852 (2007)
- V. Bahadur, J. Xu, Y. Liu et T.S. Fisher, *J. Heat Transfer*, 127, 664–668 (2005)
- G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber et E. Weibel, *Applied Physics Letters* 40,178 (1982)
- G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber et E. Weibel, *Physical Review Letters* 49, 57 (1982)
- G. Binnig, C.F. Quate et Ch. Gerber, *Physical Review Letters* 56, 930 (1986)
- G.A. Bird, *Molecular Gas Dynamics and the Direct Simulation of Gas Flows*, Clarendon Press ed., Oxford, 1994
- A.L. Buzin, P. Kamasa, M. Pyda et B. Wunderlich, *Thermochimica Acta* 381, 9 (2002)
- D.G. Cahill, *Review of Scientific Instruments* 61, 802 (1990)
- D.G. Cahill, W.K. Ford, K.E. Goodson, G.D. Mahan, A. Majumdar, H.J. Maris, R. Merlin et S.R. Phillpot, *Journal of Applied Physics*, 93, (2003), 793-818
- R.P. Caren et C.K. Liu, in *Progress in Aeronautics and Astronautics* 21, edited by T.J. Bevans (Academic, New-York, 1969), p509 (1968)
- R.P. Caren, *International Journal of Heat Mass Transfer* 17, 755–765 (1974)
- H.S. Carslaw et J.C. Jaeger, *Conduction of Heat in Solids*, Oxford Science Publications (1959)
- P.O. Chapuis, J.J. Greffet, K. Joulain et S. Volz, *Nanotechnology* 17(12), 2978-2981 (2006).
- P.O. Chapuis, S. Kumar Saha et S. Volz, *Proceedings of THERMINIC'2006* (2006)
- P.O. Chapuis, M. Laroche, S. Volz et J.J. Greffet, *Physical Review B* 77, 125402 (2008)
- A. Chimmalgi, T.Y. Choi, C.P. Grigoropoulos et K. Komvopoulos, *Applied Physics Letters* 82, 1146-1148 (2003)
- A. Chimmalgi, D.J. Hwang, C.P. Grigoropoulos, *Nano Letters* 5 (10), 1924-1930 (2005)
- M. Chirtoc, J.F. Henry et J.S. Antoniw, *Comportement thermique d'une sonde locale de microscope thermique à balayage SThM soumise à des conditions extrêmes d'opération*, SFT 2006 : Congrès Français de Thermique (2006)

- E.G. Cravalho, C.L. Tien et R.P. Caren, *Journal of Heat Transfer* 89, 351 (1967)
- E.G. Cravalho, G.A. Domoto et C.L. Tien, in *Progress in Aeronautics and Astronautics* 21, edited by T.J. Bevens (Academic, New-York, 1969), p531 (1968)
- C. Dames et G. Chen, *Review of Scientific Instruments* 76, 124902 (2005)
- P. de Andrés, R. Monreal et F. Flores, *Physical Review B* 34, 7365 (1986)
- G.V. Dedkov et A.A. Kyasov, *Technical Physics Letters* 28, 23, 50-57 (2002)
- G.V. Dedkov, A.A. Kyasov, *Technical Physics Letters* 28, 346 (2002)
- Y. De Wilde, F. Formanek, R. Carminati, B. Gralak, P.A. Lemoine, K. Joulain, J.P. Mulet, Y. Chen et J.J. Greffet, *Nature* 444, 740-743 (2006)
- R.S. DiMatteo, P. Greiff, S.L. Finberg, K. Young-Waithe, H.K.H. Choy, M.M. Masaki et C.G. Fonstad, *Applied Physics Letters* 79, 1894 (2001)
- R.B. Dinwiddie, R.J. Pylkki et P.E. West, *Thermal conductivity contrast imaging with a scanning thermal microscope*, in *Thermal conductivity*, edited by Timothy W. Tong, Vol. 22 (Technomic Publishing Co., Lancaster, PA, 1994), pp 668-677
- P.S. Dobson et G. Mills, J.M.R. Weaver, *Review of Scientific Instruments* 76, 054901 (2005)
- G. Domingues, *Simulation atomique des transferts thermiques conductifs et de champ proche entre deux nanoparticules polaires*, Thèse de doctorat, Université de Poitiers (2004)
- G. Domingues, S. Volz, K. Joulain et J.J. Greffet, *Physical Review Letters* 94, 085901 (2005)
- G.A. Domoto et C.L. Tien, *Journal of Heat Transfer* 92, 412 (1970)
- I.A. Dorofeev, *Technical Physics Letters* 23, 109 (1997)
- I.A. Dorofeyev, *Journal of Physics D : Applied Physics* 31, 600-601 (1998)
- I. Dorofeyev, H. Fuchs, G. Wenning et B. Gotsmann, *Physical Review Letters* 83, 2402(1999)
- U. Drechsler, N. Bürer, M. Despont, U. Dürig, B. Gotsmann, F. Robin et P. Vettiger, *Microelectronic Engineering* 67-68, 397 (2003)
- K. Dransfeld et J. Xu, *Journal of Microscopy* 152, 35 (1988)
- U. Dürig, *Journal of Applied Physics* 98 (4), 44906 (2005)
- E.N. Economou, *Physical Review* 182, 539 (1969)
- Y. Ezzahri, L.D. Lopez, O. Chapuis, S. Dilhaire, W. Claeys et S. Volz, *Superlattices and Microstructures* 38(1), 69-75 (2005)
- H. Failache, S. Saliel, M. Fichet, D. Bloch et M. Ducloy, *Physical Review Letters* 83, 5467 (1999)
- P.J. Feibelman, *Progress in Surface Science* 12, 287 (1982)
- G.W. Ford et W.H. Weber, *Physics Reports* 113, 195 (1984)
- C.J. Fu, Z.M. Zhang et D.B. Tanner, *Journal of Heat Transfer*, 127, 1046 (2005)
- C.J. Fu, Z.M. Zhang, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 49, 1703 (2006)
- R. Fuchs et K.L. Kliewer, *Physical Review* 185, 905 (1969)
- J. Lee et Y.B. Gianchandani, *Journal of Microelectromechanical Systems* 14(1), 44 (2005)
- E. Gmelin, R. Fischer et R. Stitzinger, *Thermochimica Acta* 310, 1, (1998)
- Goodfellow, Base de données sur les matériaux, <http://www.goodfellow.com>
- S. Gomes, N. Trannoy, P. Grossel, *Measurement Science and Technology* 10, 805 (1999)
- S. Gomès, P.O. Chapuis, F. Nepveu, N. Trannoy, S. Volz, B. Charlot, G. Tessier, S. Dilhaire, B. Cretin et S Vairac, *IEEE Transactions on Components and Packaging Technologies* 30(3), 424 (2007).
- J.J. Greffet, R. Carminati, K. Joulain, J.P. Mulet, S. Mainguy et Y. Chen, *Nature* 416, 61 (2002)
- P. Grossel, O. Raphael, F. Depasse, T. Duvaut et N. Trannoy, *International Journal of Thermal Sciences* 46 (10) : 980-988 (2007)

- H. Fischer, *Thermochimica Acta* 425, 69 (2005)
- P. Halevi, *Physical Review B* 51, 7497 (1995)
- K. Hamad-Schifferli, J.J. Schwartz, A.T. Santos, S. Zhang et J.M. Jacobson, *Nature* 415, 152-155 (2002)
- H.F. Hamann, Y.C. Martin et H.K. Wickramasinghe, *Applied Physics Letters* 84, 812 (2004)
- A. Hammiche, H.M. Pollock, M. Song et S. Yoshimura, *Measurement Science and Technology* 7, 142 (1997)
- C.M. Hargreaves, *Physics Letters* 30A, 491 (1969)
- C. Henkel, K. Joulain, R. Carminati et J.J. Greffet, *Optics Communication* 183, 57 (2000)
- C. Henkel, K. Joulain, J.Ph. Mulet et J.J. Greffet, *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics* 4, S109 (2002)
- C. Henkel et K. Joulain, *Applied Physics B* 84, 61 (2006)
- H. Hövel, S. Fritz, A. Hilger, U. Kreibig et M. Vollmer, *Physical Review B* 48, 18178 (1993)
- J.D. Jackson, *Electrodynamique classique*, Dunod (2001)
- M. Janowicz, D. Reddig et M. Holthaus, *Physical Review A* 68, 043823 (2003)
- W. Jitschin et S. Ludwig, *Vacuum* 75, 169 (2004)
- K. Joulain, R. Carminati, J.P. Mulet et J.J. Greffet, *Physical Review B* 68, 245405 (2003)
- K. Joulain, J.P. Mulet, F. Marquier, R. Carminati et J.J. Greffet, *Surface Science Reports* 57, 59-112 (2005)
- W.P. King et K.E. Goodson, *Journal of Heat Transfer*, 124, 597, (2002)
- A. Kittel, W. Müller-Hirsch, J. Parisi, S.A. Biehs, D. Reddig et M. Holthaus, *Physical Review Letters* 95, 224301 (2005)
- K.L. Kliewer et R. Fuchs, *Physical Review* 181, 552 (1969)
- S.S. Kuteladze et Y.A. Bal'tsevitch, *Sov. Phys. Doklady* 8, 577 (1979)
- I.A. Larkin et M.I. Stockman, *Nano Letters* 5, 339 (2005)
- I.A. Larkin, M.I. Stockman, M. Achermann et V.I. Klimov, *Physical Review B* 69, 121403(R) (2004)
- M. Laroche, R. Carminati et J.J. Greffet, *Journal of Applied Physics* 100, 063704 (2006)
- J. Lee, T.L. Wright, M.R. Abel, E.O. Sunden, A. Marchenkov, S. Graham et W.P. King, *Journal of Applied Physics* 101, 14906 (2007)
- L. Lees et C.Y. Liu, *Physics of Fluids* 5(10), 1137 (1962)
- S. Lefèvre, S. Volz, C. Fuentes, J.B. Saulnier et N. Trannoy, *Review of Scientific Instruments*, 74, 2418 (2003)
- S. Lefèvre, J.B. Saulnier, C. Fuentes et S. Volz, *Superlattices and Microstructures* 35, 283-288 (2004)
- S. Lefèvre, *Modélisation et élaboration des métrologies de microscopie thermique à sonde locale résistive*, Thèse de doctorat, Université de Poitiers (2004)
- S. Lefèvre et S. Volz, *Review of Scientific Instruments*, 76, (2005), 033701.
- S. Lefèvre, S. Volz et P.O. Chapuis, *International Journal of Heat and Mass Transfer* (2005)
- S. Lefèvre, *Communication au workshop Quantitative Micro and Nano Thermal Imaging and Analysis*, Lyon (2007)
- E.M. Lifshitz, L.D. Landau, L. P. Pitaevskii, *Electrodynamics of continuous media* (Butterworth-Heinemann, 2nd edition, 1984). Voir Chapitre 7.
- J. Lindhard, *Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat.-Fys. Medd.* 28, 8 (1954)
- J.J. Loomis et H.J. Maris, *Physical Review B* 50, 18517 (1994)
- K. Luo, Z. Shi, J. Lai et A. Majumdar, *Applied Physics Letters* 68, 325 (1996)



- J.J. Mahony, Proceedings of the Royal Society of London, Series A : Mathematical and Physical Sciences 238, 412 (1957)
- A. Majumdar, B. Bhushman, Journal of Tribology 112, 205 (1990)
- A. Majumdar et C.L. Tien, Journal of Heat Transfer 113, 516-525 (1991).
- A. Majumdar, J. Lai, M. Chandrachood, O. Nakabeppu, Y. Wu et Z. Shi, Review of Scientific Instruments 66, 3584 (1995)
- A. Majumdar, Annual Review of Materials Science 29, (1999), 505-585.
- A.A. Maradudin, Optics Letters 26, 479 (2001)
- N. Masters, W. Ye et W.P. King, Physics of Fluids, 17, 100615 (2005)
- N.D. Mermin, Physical Review B 1, 2362 (1970)
- M. Modest, Radiative Heat Transfer, Chapter 15, p. 483, 2nd edition, Academic Press ed, (2003)
- U. Mohideen et A. Roy, Physical Review Letters 81, 4549 (1998)
- V.T. Morgan, *Advances in Heat Transfer*, vol. 11 (1975)
- J.P. Mulet, K. Joulain, R. Carminati et J.J. Greffet, Optics Letters 26, 480 (2001)
- J.P. Mulet, K. Joulain, R. Carminati et J.J. Greffet, Applied Physics Letters 78, 2931 (2001)
- J.P. Mulet, K. Joulain, R. Carminati et J.J. Greffet, Microscale Thermophysical Engineering 6, 209 (2002)
- J.P. Mulet, *Modélisation du rayonnement thermique par une approche électromagnétique. Rôle des ondes de surfaces dans le transfert d'énergie aux courtes échelles et dans les forces de Casimir*, Thèse de doctorat, Université Paris-Sud (2003)
- W. Müller-Hirsch, A. Kraft, M.T. Hirsch, J. Parisi et A. Kittel, Journal of Vacuum Science and Technology A 17, 1205 - 1210 (1999)
- W. Müller-Hirsch, Thèse de doctorat, Université d'Oldenburg (2000)
- G.W. Mulholland, C.F. Bohren et K.A. Fuller, Langmuir 10, 2533(1994)
- O. Nakabeppu, M. Chandrachood, Y. Wu, J. Lai et A. Majumdar, Applied Physics Letters 66 (6), 6 (1995)
- O. Nakabeppu, M. Igbeta et K. Ijikata, Microscale Thermophysical Engineering 1 (1997), 201-213
- A. Narayanaswamy et G. Chen, Applied Physics Letters 82, 3544 (2003)
- A. Narayanaswamy, *Investigations of Nanoscale Thermal Radiation : Theory and Experiments*, Thèse de doctorat, MIT (2007)
- V.U. Nazarov, Physical Review B 56, 2198 (1997)
- J.M. Obrecht, R.J. Wild, M. Antezza, L.P. Pitaevskii, S. Stringari et E.A. Cornell, Physical Review Letters 98, 063201 (2007)
- A. Olivei, Revue de Physique Appliquée 3, 225 (1968)
- J.L. Pan, H.K.H. Choy et C.A. Fonstad, Jr., IEEE Transactions on Electronic Devices 47, 241 (2000)
- J.L. Pan, Optics Letters 25, 369-371 (2000).
- C.H. Park, H.A. Haus et M.S. Weinberg, Journal of Physics D 35, 2857 (2002)
- R.E. Peierls, *Quantum Theory of Solids*, Oxford University Press, London (1956).
- J.B. Pendry, Journal of Modern Optics 45, 2389 (1998)
- J.B. Pendry, Journal of Physics : Condensed Matter 11, 6621 (1999)
- B.N.J. Persson et N. D. Lang, Physical Review B 26, 5409 (1982)
- A.B. Pippard, Proceedings of the Royal Society, A, 191, 385 (1947)
- Platinum Review, The PGM Database, Base de données sur les métaux et articles de la revue *Platinum Metals Review*, [http ://www.platinummetalsreview.com/jmpgm](http://www.platinummetalsreview.com/jmpgm)

- D. Polder et M. Van Hove, *Physical Review B* 4, 3303 (1971)
- M.L. Levin, V.G. Polevoi et S.M. Rytov, *Sov Phys. J.E.T.P.* 52, 1054 (1981)
- R. Prasher, *Nano Letters*, 5 (11), 2155 -2159 (2006)
- J.E. Reynolds, *AIP Conferences Proceedings* 460, 49 (1999)
- A.K. Rebrov, A.A. Morozov, M. Yu. Plotnikov, N.I. Timoshenko et V.A. Maltsev, *Review of Scientific Instruments* 74, 1106 (2003)
- R.L. Chen, *AIAA2005-960* (2005)
- G.E.H. Reuter et E.H. Sondheimer, *Proceedings of the Royal Society A* 195, 336 (1948)
- E. Riedo, F. Lévy et H. Brune, *Physical Review Letters* 88(18), 185505 (2002)
- W.M. Rohsenow et H. Choi, *Heat, Mass, and Momentum Transfer*, Prentice-Hall, 1961
- S.M. Rytov, Yu A. Kravtsov et V.I. Tatarskii, *Principles of Statistical Radiophysics* (Springer, Berlin, 1989), vol. 3
- Y.V. Sharvin, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 48, 984, (1965)
- B.E. Sernelius, *Physical Review B* 71, 235114 (2005)
- L. Shi, S. Plyasunov, A. Bachtold, P.L. McEuen et A. Majumdar, *Applied Physics Letters* 77, 4295 (2000)
- L. Shi, O. Kwon, A.C. Miner et A. Majumdar, *Journal of Microelectromechanical Systems* 10(3), 370 (2001)
- L. Shi et A. Majumdar, *Journal of Heat Transfer* 124, (2002), 329.
- R. Siegel et J. Howell, *Thermal Radiation Heat Transfer*, Chapter 12, p. 517, 4th edition, Taylor and Francis ed, (2002)
- J.E. Sipe, *Journal of the Optical Society of America B* 4, 481 (1987)
- R. Esquivel et V.B. Svetovoy, *Physical Review A* 69, 062102 (2004)
- E.T. Swartz et R.O. Pohl, *Reviews of Modern Physics* 61(3), 605 (1989)
- J. Taine et J.P. Petit, *Transferts thermiques*, Dunod 3è édition (2003)
- G. Torricelli, *Caractérisations des Interactions entre une Microsphère et une Surface Métalliques aux Echelles Nanométriques*, Thèse de doctorat, Université Joseph-Fourier de Grenoble (2005)
- C. Voisin, D. Christofilos, N. Del Fatti, F. Vallée, B. Prével, E. Cottancin, J. Lermé, M. Pellarin et M. Broyer, *Physical Review Letters* 85, 2200(2000)
- H.C. Van de Hulst, *Light scattering by small particles* (Dover, New York, 1981)
- J. Varesi et A. Majumdar, *Applied Physics Letters* 72, 37 (1998)
- P. Vettiger, G. Cross, M. Despont, U. Drechsler, U. Dürig, B. Gotsmann, W. Häberle, M.A. Lantz, H.E. Rothuizen, R. Stutz et G.K. Binnig, *IEEE Transactions on Nanotechnology* 1, 39 (2002)
- A.I. Volokitin et B.N.J. Persson, *Physical Review B* 63, 205404 (2001)
- A.I. Volokitin et B.N.J. Persson, *Physical Review B* 65, 115419 (2002)
- A.I. Volokitin et B.N.J. Persson, *Physical Review B* 68, 155420 (2003)
- A.I. Volokitin et B.N.J. Persson, *Physical Review B* 69, 045417 (2004)
- A.I. Volokitin et B.N.J. Persson, *Physical Review Letters* 94, 086104 (2005)
- A.I. Volokitin, B.N.J. Persson et H. Ueba, *Physical Review B* 73, 165423 (2006)
- S. Volz, R. Carminati et K. Joulain, *Microscale Thermophysical Engineering* 8, 155(2004)
- S. Volz, S. Dilhaire, S. Lefèvre et L.D. Patiño Lopez, *Scanning Thermal Microscopy Applied to Thin Films and Electronic Devices*, chapitre du livre "Handbook of Semiconductor Nanostructures and Nanodevices" édité par A.A. Balandin (2005)
- S. Volz ed., *Micro et Nanothermique*, CNRS Editions (2007) ou la version anglaise : S. Volz ed., *Micro and Nanoscale Heat Transfer*, Springer (2007)

- S. Volz et P.O. Chapuis, *Journal of Applied Physics* 103(3), 034306 (2008)
- C. Wang, *Thermochemica Acta* 423, 89 (2004)
- B.L. Weeks, A. Noy, A.E. Miller and J.J. De Yoreo, *Physical Review Letters* 88(25), 255505 (2002)
- G. Wexler, *Proceedings of the Physical Society of London*, 89, 927–941, (1966)
- M.D. Whale, *IEEE Transactions on Energy Conversion*, 17, 130 (2001)
- C.C. Williams et H.K. Wickramasinghe, *Applied Physics Letters*, 49, (1986), 1587.
- M.M. Williamson et A. Majumdar, *ASME Journal of Heat Transfer* , 114, 802-810 (1992)
- J.B. Xu, K. Lauger, R. Moller et K. Dransfeld, I.H. Wilson, *Journal of Applied Physics* 76, 7209 (1994)
- J.L. Yang, M. Despont, U. Drechsler, B.W. Hoogenboom, P.L.T.M. Frederix, S. Martin, A. Engel, P. Vettiger et H.J. Hug, *Applied Physics Letters* 86, 134101 (2005)
- Z.M. Zhang et C.J. Fu, *Applied Physics Letters* 80, 1097 (2002)
- J.R. Zurita-Sanchez, J.J. Greffet et L. Novotny, *Physical Review A* 69, 022902 (2004)

---

**Articles publiés associés à cette thèse (mai 2008)**

*Radiative heat transfer between metallic nanoparticles*, P.-O. Chapuis, M. Laroche, S. Volz and J.-J. Greffet, *Applied Physics Letters* 92(20), 201906 (2008)

*Effects of spatial dispersion in near-field radiative heat transfer between two metallic surfaces*, P.-O. Chapuis, S. Volz, C. Henkel, K. Joulain and J.-J. Greffet, *Physical Review B* 77(3), 035431 (2008)

*Near-field induction heating of metallic nanoparticles due to infrared magnetic dipole contribution*, P.-O. Chapuis, M. Laroche, S. Volz, and J.-J. Greffet, *Physical Review B* 77(12), 125402 (2008)

*Increase of thermal resistance between a nanostructure and a surface due to phonon multireflections*, S. Volz and P.-O. Chapuis, *Journal of Applied Physics* 103(3), 034306 (2008)

*Temperature measurement of sub-micrometric ICs by scanning thermal microscopy*, S. Gomès, P.-O. Chapuis, F. Nepveu, N. Trannoy, S. Volz, B. Charlot, S. Dilhaire, G. Tessier, N. Trannoy, P. Vairac and S. Volz, *IEEE Transactions on Components and Packaging Technologies*, 30 (3), 424-431 (2007)

*Heat transfer between a nano-tip and a surface*, P.-O. Chapuis, J.-J. Greffet, K. Joulain and S. Volz, *Nanotechnology* 17, 2978-2981 (2006)

*Nanoscale heat transfer at contact between a hot tip and a substrate*, S. Lefèvre, S. Volz and P.-O. Chapuis, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 49 (1-2), 251-258 (2006)

*Dynamical behavior of the scanning thermal microscope (S<sub>Th</sub>M) thermal resistive probe studied using Si/SiGe microcoolers*, Y. Ezzahri, L.D. Patino Lopez, O. Chapuis, S. Dilhaire, S. Grauby, W. Claeys and S. Volz, *Superlattices and Microstructures* 38 (1), 69-75 (2005)



Et si c'était vrai ?

*"Le gain de notre étude, c'est en être devenu  
meilleur et plus sage."*

(Montaigne)



The grid contains the following elements:

- Top-left:** Schematic of a thermoelectric generator showing energy flow from a hot reservoir ( $T=800\text{ K}$ ) to a cold reservoir ( $T=300\text{ K}$ ). It includes the Seebeck coefficient  $S_{\text{BiOC}}$  and the energy flux equation  $\Delta E_{\text{molecule}} = 5/9 (1/2 m v^2 - 2k_B T)$  at  $300\text{ K}$ .
- Top-middle:** A 3D surface plot of the Seebeck coefficient  $S$  in  $\mu\text{V}/\text{K}$  as a function of position  $x$  and  $y$ .
- Top-right:** A scanning electron microscope (SEM) image of a thermoelectric device structure.
- Second row, left:** A graph showing the Seebeck coefficient  $S$  in  $\mu\text{V}/\text{K}$  versus position  $x$  in  $\mu\text{m}$ , with labels for 'WELL EFFECTS' and 'MAXIMUM S CORRELATION'.
- Second row, middle:** A photograph of a physical device with a 'Peltier' label and a graph showing the Seebeck coefficient  $S$  in  $\mu\text{V}/\text{K}$  versus position  $x$  in  $\mu\text{m}$ .
- Second row, right:** A photograph of a device with labels for 'Axe de courant photoélectrique', 'Miroir qui dirige le signal', 'Matrice de réglage de la hauteur de la pointe', 'Pointe restructurée', 'Bouton', 'Microscope', and 'Modèle pour'.
- Third row, left:** A schematic of a thermoelectric junction between Ag and Pt/Rh, with thermal conductivities  $\lambda_{\text{Ag}} = 428\text{ WK}^{-1}\text{m}^{-1}$  and  $\lambda_{\text{Pt/Rh}} = 38\text{ WK}^{-1}\text{m}^{-1}$ .
- Third row, middle:** A graph titled 'Module de  $V_{\text{See}}$  en fonction de la' showing the Seebeck voltage  $V_{\text{See}}$  in  $\mu\text{V}$  versus position  $x$  in  $\mu\text{m}$ . It includes a legend for 'Sans contact' and 'En contact'.
- Third row, right:** A schematic of a thermoelectric junction between a Dielectric (polar) and a Metal at  $T = 300\text{ K}$ , with arrows indicating charge carrier movement.
- Bottom row, left:** A scanning electron microscope (SEM) image of a device structure.
- Bottom row, middle:** A schematic of a layered structure with layers 2 and 3, showing the Seebeck coefficient  $S_2$ ,  $S_3$ , and the thickness  $d$  of layer 3.
- Bottom row, right:** A photograph of a laboratory setup with a computer monitor and a microscope, with the text 'Microscope utilisé pour préparer les échantillons'.



Ecole doctorale 287  
 « Sciences pour l'Ingénieur »  
 Laboratoire EM2C, CNRS & Ecole Centrale Paris