



**HAL**  
open science

## **Identification du coefficient d'échange convectif par la méthode du gradient conjugué dans un procédé de dépôt assisté plasma (PACVD)**

Sébastien Rouquette, Laurent Autrique, Charles Chaussavoine, Laurent Thomas

### ► **To cite this version:**

Sébastien Rouquette, Laurent Autrique, Charles Chaussavoine, Laurent Thomas. Identification du coefficient d'échange convectif par la méthode du gradient conjugué dans un procédé de dépôt assisté plasma (PACVD). Congrès de la société française de thermique, Jun 2002, Vittel, France. <hal-04539626>

**HAL Id: hal-04539626**

**<https://hal.science/hal-04539626v1>**

Submitted on 9 Apr 2024

**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.



Distributed under a Creative Commons CC BY-NC 4.0 - Attribution - Non-commercial use - International License

# Identification du coefficient d'échange convectif par la méthode du gradient conjugué dans un procédé de dépôt assisté plasma (PACVD).

Sébastien ROUQUETTE, Laurent AUTRIQUE, Charles CHAUSSAVOINE, Laurent THOMAS.

Institut des sciences et génie des Matériaux et Procédés – CNRS UPR 8521,  
Technosud, Rambla de la Thermodynamique, 66100 PERPIGNAN,  
Tel : 04.68.68.22.54, Fax : 04.68.68.22.13, e-mail : [rouquett@univ-perp.fr](mailto:rouquett@univ-perp.fr)

**Résumé :** Dans cette communication, un modèle décrivant l'évolution thermique du substrat à revêtir par un procédé de dépôt chimique en phase gazeuse assisté plasma est proposé. A l'aide d'informations fournies par des thermocouples, une technique inverse est mise en œuvre pour l'identification du coefficient d'échange convectif. La méthode présentée consiste à la minimisation d'un critère quadratique par l'algorithme du gradient conjugué.

## Nomenclature :

$\lambda$	Conductivité thermique $W.m^{-1}.K^{-1}$	$\rho$	Masse volumique $kg.m^{-3}$
$h$	Coefficient d'échange convectif $W.m^2.K^{-1}$	$C$	Chaleur spécifique $J.kg^{-1}.K^{-1}$
$R_{th}$	Résistance thermique de contact $m^2.K.W^{-1}$	$\varepsilon$	Emissivité
$n$	Normale extérieure à la frontière	$\sigma$	Constante de Stefan $W.m^{-2}.K^{-4}$

## 1. Introduction

Le traitement de surface des matériaux par dépôt chimique en phase gazeuse assisté plasma (PACVD) permet d'obtenir des propriétés d'usage (dureté élevée, faible coefficient de frottement vis à vis d'un antagoniste acier) intéressant un vaste domaine d'applications industrielles. Un atout de cette technique est de permettre l'élaboration des films à des températures pouvant aller de la température ambiante à environ 800°C. Ainsi, un large choix de substrats est permis (on peut citer en particulier les polymères ou les alliages métalliques en raison des multiples potentialités qu'ils représentent). Pour obtenir de tels revêtements, un procédé de dépôt chimique par voie gazeuse assisté par un plasma micro-onde a été développé à l'IMP et permet l'élaboration de films de Carbure de Silicium amorphe hydrogéné ( $SiC:H$ ). Les propriétés mécaniques de ces films [1] sont très attractives et justifient le transfert technologique du réacteur d'élaboration vers l'industrie. La conception d'unités de production ainsi que le développement de procédures de supervision et de commande, ne pourront s'envisager que lorsque le prototype expérimental sera parfaitement maîtrisé. Une des clés réside en la reproductibilité des films recherchés.

Dans des études précédentes (voir [2], par exemple), on a montré que la température du substrat à revêtir est un des paramètres conditionnant la qualité (microstructure, propriétés) du film de Carbure de Silicium obtenu. Afin d'obtenir les conditions thermiques visées pour l'élaboration du film (et ce de manière reproductible), la formulation d'un modèle thermique fiable permettra de disposer d'un outil prédictif et de définir des procédures de commande (chauffage ou refroidissement). La difficulté réside en ce que les transferts d'énergie entre le

substrat à revêtir et le reste du réacteur (milieu plasma et dispositif de chauffage) sont délicats à appréhender et nécessitent une identification pertinente. Dans cette communication, nous nous proposons d'identifier le coefficient d'échange convectif dont l'incertitude est rédhibitoire à la pertinence du modèle. Le modèle est exposé brièvement dans le paragraphe suivant et conduit à l'écriture d'un problème thermique direct. Une méthode inverse est présentée pour l'identification du paramètre recherché dans le troisième paragraphe. Enfin, des mesures expérimentales sont montrées et quelques perspectives sont proposées.

## 2. Modèle thermique

Le procédé étudié a été présenté en [3]. La géométrie du réacteur étudié est décrite figure 1. Un tube de silice traverse une cavité micro-onde (surfaguide) connectée à un générateur micro-onde. De l'argon permet l'entretien du plasma dans lequel le précurseur TMS est injecté. La surface des échantillons à traiter est supposée régulée thermiquement. Pour ce faire, le ou les substrats sont placés sur un porte-échantillon fixé sur un matériau isolant à l'extrémité d'une canne de transfert motorisée et refroidie. Ils sont chauffés en face arrière par une résistance chauffante en inconel (figure 2). Toutefois, il est délicat d'employer des thermocouples en face avant des surfaces plongées dans le plasma, ce qui limite la pertinence de la régulation. Il est donc nécessaire de disposer d'un modèle fiable permettant d'accéder à cette température de surface (où a lieu le dépôt) en fonction des échanges avec le reste du réacteur. Dans ce qui suit, le modèle est établi hors condition plasma en considérant un porte substrat plein (en acier). La géométrie qui en résulte est axisymétrique mais pour que l'étude reste applicable au cas réel (substrats de géométries variées) la configuration 3D est retenue. Le système modélisé est le suivant (voir figure 2 et 3) :

- le domaine spatial est noté  $\Omega = \Omega^1 \cup \Omega^2$  où  $\Omega^1$  (resp.  $\Omega^2$ ) est le domaine correspondant au porte substrat en acier (resp. à l'isolant en stumatite), les indices supérieures correspondent systématiquement à l'acier<sup>1</sup> et à la stumatite<sup>2</sup>.
- sur la frontière  $\Gamma_1^i$ , on considère un échange convectif (suite à l'injection d'argon dans le réacteur) et un échange par rayonnement,
- la frontière  $\Gamma_2$  est supposée à une température uniforme  $\theta_f$  due au refroidissement imposée à l'extrémité de la canne de transfert,
- sur les faces internes du domaine  $\Omega$ , on considère un élément chauffant disposé sur la frontière  $\Gamma_3$  qui, à température uniforme  $\theta_c$  chauffe par rayonnement la frontière  $\Gamma_4^i$ ,
- une résistance thermique due au contact imparfait entre l'acier et la stumatite est considérée sur la frontière  $\Gamma_5$ ,
- à l'instant initial, la température du domaine  $\Omega$  est égale à la température ambiante  $\theta_a$ .

La température  $\theta(x,t)$  au point  $x \in \Omega \subset \mathbb{R}^3$  à l'instant  $t \in [0, T]$  satisfait le système d'équations aux dérivées partielles (EDP) non linéaire suivant :

$$\rho^i C^i(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial t} - \text{div}(\lambda^i(\theta) \text{grad} \theta) = 0 \quad \text{dans } \Omega^i \times T$$

la condition initiale :  $\theta(t=0) = \theta_0$  dans  $\Omega$

et les conditions aux limites sur les frontières de  $\Omega$  :

$$-\lambda^i(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial n} = h(\theta - \theta_a) + \varepsilon^i \sigma(\theta^4 - \theta_a^4) \quad \text{sur } \Gamma_1^i \times T$$

$$\theta = \theta_f \quad \text{sur } \Gamma_2 \times T$$

$$\theta = \theta_c \quad \text{sur } \Gamma_3 \times T$$

$$\begin{aligned}
-\lambda^i(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial n} &= \varepsilon^i \sigma (\theta^4 - \theta_c^4) \quad \text{sur } \Gamma_4^i \times T \\
-\lambda^1(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial n} &= \frac{1}{R_{th}} (\theta^1 - \theta^2) \quad \text{sur } \Gamma_5 \times T
\end{aligned}$$

La résolution du système d'EDP non linéaire défini par - et noté  $[S]$  conduit à déterminer l'évolution spatio-temporelle de la température  $\theta(x, t)$  dans  $\Omega$ . L'ensemble des paramètres étant connu, ce problème (dit direct) est résolu en utilisant la méthode des éléments finis en espace et une méthode de différences finies en temps (méthode multi-pas).

Tableau 1 : Propriétés thermophysiques du substrat (acier 304L) et de la céramique (stumatite).

	$\rho C(\theta)$	$\lambda(\theta)$	$\varepsilon$
	$J.m^{-3}.K^{-1}$	$W.m^{-1}.K^{-1}$	
Acier $\Omega^1$	$1842\theta + 3.02.10^6$	$0.0143\theta + 11.1$	0.6
Stumatite $\Omega^2$	$1285\theta + 1.7.10^6$	$0.00186\theta + 2.2$	0.85

Afin d'estimer l'influence de l'incertitude de la valeur des paramètres thermophysiques du modèle, un plan d'expériences numérique [4] a été réalisé dans une étude précédente [3] (en utilisant la bibliothèque d'éléments finis Modulef, code développé par l'INRIA). Cela a permis de mettre en évidence l'effet important des incertitudes retenues pour les paramètres  $h$ ,  $\varepsilon_{acier}$  et  $\theta_c$ . Nous nous proposons d'identifier le coefficient d'échange convectif qui s'est avéré le plus dommageable pour la fiabilité du modèle précédent. Le coefficient d'échange convectif est difficile à appréhender et donne souvent lieu à des modélisations empiriques considérant le type d'écoulement, la géométrie et la position de la surface ainsi que sa température. Dans ce qui suit, on considère que  $h$  est une fonction de la température continue et linéaire par morceaux, approche assez générale qui permet de décrire un vaste domaine d'applications (voir [5] par exemple).

Un exemple de résultats (obtenu avec le coefficient d'échange convectif donné figure 4) est présenté figure 5. Les conditions de cette simulation tant numérique (pas d'espace, de temps, test de convergence) qu'expérimentale (durée du dépôt, température de chauffe, de refroidissement, dimension, ...) sont représentatives des situations d'usage. Les résultats montrent qu'il existe un faible gradient de température (inférieur à 5°C) dans l'épaisseur (entre les points 1 et 2). Par contre, le fort gradient (supérieure à 40°C) en surface du porte échantillon (entre les points 1 et 3) est préjudiciable pour la réalisation de films aux propriétés homogènes. Ces résultats montrent aussi qu'après 8 minutes, on est à moins de 95% du régime thermique établi. Ces résultats sont importants pour l'expérimentateur qui peut alors commencer la phase de dépôt, après la phase transitoire de mise en température du substrat. Dans le paragraphe suivant le problème inverse est brièvement formulé.

### 3. Le problème thermique inverse

A partir de mesures de température, l'évolution thermique du matériau est connue, et un problème inverse peut alors être résolu, en minimisant une fonction de coût décrivant l'écart entre les sorties du modèle et les mesures [6]. On suppose que  $h(\theta)$  est parfaitement défini entre 250K et 750K par la donnée du vecteur  $\bar{h} = (h_j)_{j=1, \dots, 11}$  où  $h_j$  est la valeur du coefficient

convectif à la température  $\theta_j = 250 + 50(j - 1)$ . Par exemple, figure 5 on a  $\bar{h} = (1 \ 2 \ 3 \ 4 \ 4,25 \ 4,5 \ 4,75 \ 5 \ 5,5 \ 7 \ 10)$ .

Le problème inverse proposé est : à partir de mesures réalisées en 3 capteurs (placés aux points 1, 2 et 3), identifier le coefficient d'échange convectif  $h(\theta)$ , c'est à dire :

**Problème  $P_{inv}$**  : trouver le vecteur :  $\bar{h} = (h_i)_{i=1,\dots,11} \in \mathbb{R}^{11}$  qui minimise le critère :

$$J(\bar{h}) = \frac{1}{2} \sum_{k=1}^{60} \left( \sum_{p=1}^3 (\theta_p(t_k; \bar{h}) - \hat{\theta}_p(t_k))^2 \right) \quad \text{où } \hat{\theta}_p(t_k) \text{ (resp. } \theta_p(t_k; \bar{h})) \text{ représente la}$$

température mesurée au temps  $t_k$  au thermocouple  $P$  (resp. la température simulée au point  $P$ ) ; avec la contrainte  $\theta(x, t; \bar{P})$  solution du système  $[S]$ .

La minimisation du critère quadratique  $J(\bar{h})$  est réalisée à l'aide de la méthode du gradient conjugué [6], [7], dont l'algorithme est le suivant :

(a) initialement  $n = 0$  ; soit  $\bar{h}^0$  le point de départ et  $\bar{d}^0 = \nabla J(\bar{h}^0) = \left( \left( \frac{\partial J}{\partial h_j} \right)_{j=1,\dots,11} \right) (\bar{h}^0)$  la

direction de recherche initiale,

(b) à l'itération  $n$ , on est à  $\bar{h}^n$ , on définit le point suivant par  $\bar{h}^{n+1} = \bar{h}^n - \gamma^n \bar{d}^n$  avec  $\gamma^n = \arg \min_{\gamma \in \mathbb{R}} (J(\bar{h}^n - \gamma \bar{d}^n))$

(c) on définit la direction de recherche suivante  $\bar{d}^{n+1} = \nabla J(\bar{h}^{n+1}) + \beta^n \bar{d}^n$  où  $\beta^n = \frac{\|\nabla J(\bar{h}^{n+1})\|^2}{\|\nabla J(\bar{h}^n)\|^2}$ .

(d) test d'arrêt : si vérifié FIN ; sinon  $n \leftarrow n+1$  et retourner en (b).

Calcul de la profondeur de descente :

La valeur du coefficient  $\gamma^n$  est obtenue en minimisant  $\min_{\gamma > 0} \left( \frac{1}{2} \sum_{k=1}^{60} \left( \sum_{p=1}^3 (\theta_p(t_k; \bar{h}^n - \gamma \bar{d}^n) - \hat{\theta}_p(t_k))^2 \right) \right)$ .

Pour ce faire, on utilise les fonctions de sensibilité solutions des équations de sensibilité qui ont pour objectif de déterminer la variation de l'état résultante d'une variation des paramètres inconnus  $\bar{h} = (h_j)_{j=1,\dots,11}$ . L'expression de la profondeur de descente fait appel aux températures calculées par le problème direct  $\theta_p(t_k; \bar{h}^n)$  ; aux températures mesurées  $\hat{\theta}_p(t_k)$  et à la fonction de sensibilité  $(\delta\theta)_p(t_k, \bar{h}^n)$ . Le lien entre les fonctions de sensibilité et la profondeur de

$$\text{descente est [5] : } \gamma_n = \frac{\sum_{k=1}^{60} \left( \sum_{p=1}^3 (\delta\theta)_p(t_k, \bar{h}^n) (\theta_p(t_k, \bar{h}^n) - \hat{\theta}_p(t_k)) \right)}{\sum_{k=1}^{60} \left( \sum_{p=1}^3 ((\delta\theta)_p(t_k, \bar{h}^n))^2 \right)}.$$

Calcul de la direction de descente :

La détermination du vecteur  $\bar{d}^n$  nécessite le calcul du gradient  $\nabla J(\bar{h})$ . Pour ce faire on introduit le Lagrangien associé au problème d'optimisation où  $\psi(x, t)$  est le multiplicateur de

Lagrange :  $L(\theta, h, \psi) = J(\theta) + \int_{\Gamma} \int_{\Omega} \psi \left( \rho(\theta) c_p(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial t} - \text{div}(\lambda(\theta) \text{grad} \theta) \right) dx dt$ . Ceci revient à trouver

$\psi(x,t)$  solution d'un système d'équations aux dérivées partielles. A partir de la connaissance de  $\psi(x,t)$ , on déduit le gradient puis la direction de descente.

#### 4. Mesures expérimentales

Un porte substrat plein a été instrumenté par trois thermocouples afin de disposer de mesures de température pour l'identification des échanges convectifs (à l'aide de la méthode présentée au paragraphe précédent). A la figure 6, les résultats expérimentaux d'une première campagne de mesure sont exposés. L'analyse qualitative des gradients spatiaux est en accord avec celle effectuée pour le problème direct. Les dynamiques sont différentes car les matériaux utilisés n'ont pas les mêmes propriétés et les conditions de montée en température ne sont pas les mêmes. Ces premiers résultats expérimentaux nous semblent utilisables pour la procédure d'identification.

#### 5. Conclusions et perspectives

Dans cette communication, un procédé de dépôt chimique en phase gazeuse assisté plasma est étudié afin de maîtriser les conditions thermiques d'élaboration. Pour ce faire, un modèle thermique a été proposé et afin de garantir la fiabilité des simulations prédictives, un paramètre décrivant les échanges convectifs doit être identifié. Sur la base de mesures de température, un problème inverse a été considéré et la méthode du gradient conjugué est brièvement présenté pour sa résolution. A la suite de ce travail, différentes perspectives sont envisagées :

- amélioration de la procédure d'identification : placement optimal de capteurs, mise en place d'horizon glissant pour réduire les temps de calcul, ...
- validation de l'identification du coefficient d'échange convectif pour différentes configurations (matériaux, durée et puissance de chauffage, ...)

A terme, l'étude sera effectuée en présence du milieu plasma, et nécessitera des outils métrologiques variés afin de connaître les températures du substrat : Thermocouples, Pyrométrie infra-rouge et Spectroscopie Optique d'Emission (pour le milieu plasma). La connaissance des transferts thermiques au sein du réacteur en fonctionnement permettra de contrôler la température de surface du substrat à revêtir.

#### Références

- [1] C. Boher, M. Ducarroir, T. Grégoire, S. Scordo. Comportement en frottement sec de dépôts  $\text{SiC}_x(\text{H})$  ( $1,5 < x < 3$ ) élaborés par PACVD micro-onde sur acier. Ann. Chim. Sci. Mater. 23 (1998) 879.
- [2] S. Scordo, M. Ducarroir, L. Thomas, R. Berjoan, J.L. Jauberteau. Dépôts par plasma CVD micro-onde à partir de mélanges TMS/argon : influence des paramètres expérimentaux. Les Annales de chimie, Science des matériaux, vol 23 (5-6), (1998), pp 733-742 .
- [3] S. Rouquette, L. Autrique, C. Chaussavoine, L. Thomas. Estimation de température de surface de substrat dans un procédé de Dépôt Chimique en phase Vapeur Assisté Plasma (PACVD). Congrès français de thermique, SFT 2001, pp.727-732, Nantes, France.
- [4] P. Schimmerling. Fiabilité prévisionnelle en fatigue et plans d'expériences numériques. Revue de la SIA (Ingénieurs de l'Automobile), vol 2. (mars 1987), pp. 88-93.
- [5] R. Abou Khachfe and Y. Jarny. Determination of heat sources and heat transfer coefficient for two dimensional heat flow – numerical and experimental study, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 44, pp. 1309-1322, 2001.
- [6] O.M. Alifanov. Inverse Heat Transfer Problems. Springer-Verlag, 1994.

- [7] O.M.Alifanov, E.A.Artyukhin et S.V. Rummyantsev, *Extreme Methods for Solving Ill-Posed Problems with Applications to Inverse Heat Transfer Problems*, Begell house Inc., pp. 306, 1995.

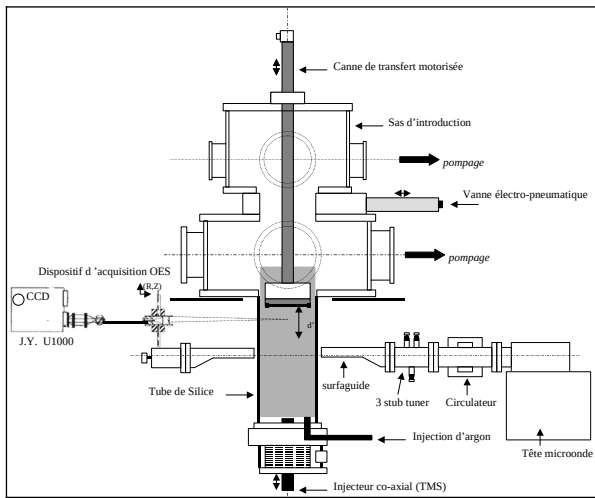


Figure 1 : Détail du réacteur

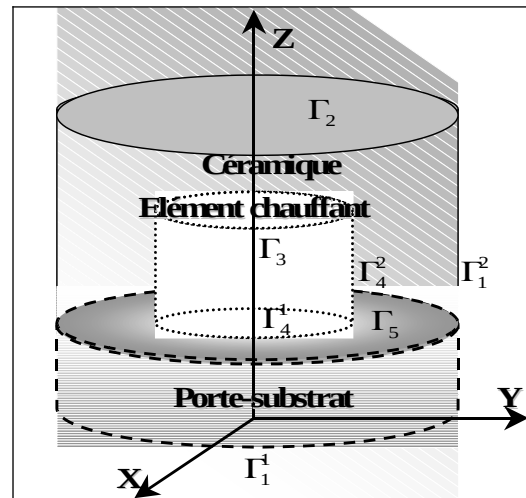


Figure 2 : Domaine d'étude

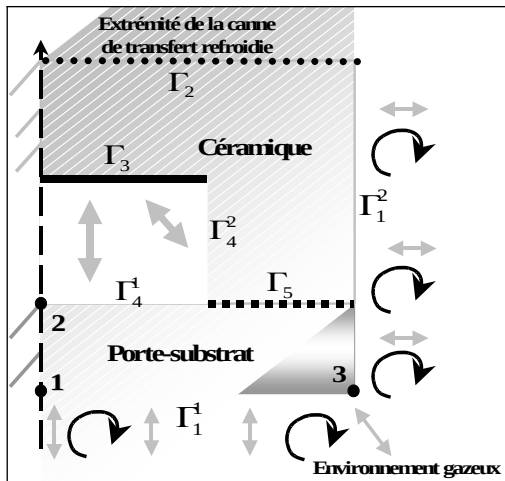


Figure 3 : Coupe transversale du domaine

Figure 4 : Coefficient d'échange convectif

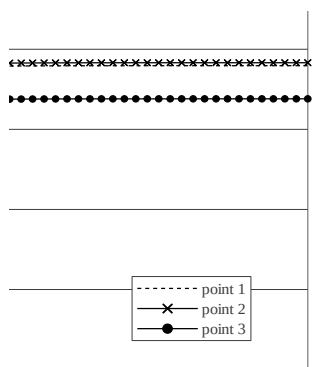


Figure 5 : Résultats du problème direct

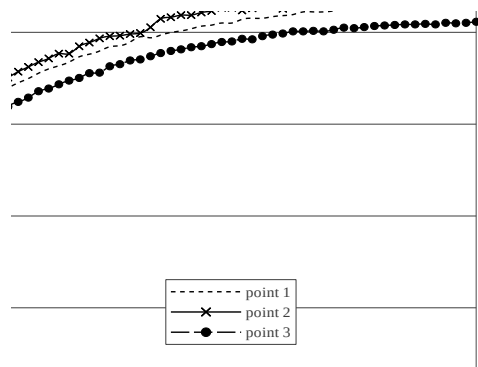


Figure 6 : mesures de température