

Modélisation du séchage du silicium poreux par les réseaux Neuro-floue (ANFIS)

Mama Bouchaour, Laarej Merad, Amaria Ould-Abbas, Oussama Zeggai et Nasr-Eddine Chabane Sari

Unité de Recherche Matériaux et Energies Renouvelables (URMER), Université Abou Bekr Belkaid, Tlemcen
Tel/Fax: +213(0)43215890
bouchaour.m@gmail.com

Résumé :

Le silicium poreux présente des propriétés très intéressantes dans des domaines différents tels que l'électronique, le photovoltaïque ou le champ médical. Classiquement, une évaporation lente du solvant produit des tensions très importantes dues à l'interface liquide-gaz. Un retrait de la structure conduit à l'apparition de fissures qui peuvent provoquer la destruction du matériau. Dans tous les cas un mauvais séchage est dommageable pour les propriétés finales du matériau. Plusieurs méthodes ont été développées afin d'éviter ou d'éliminer le développement de forces capillaires. Le séchage supercritique ou le séchage par congélation sont les plus utilisés dans la fabrication du silicium poreux.

Nous proposons dans ce travail un modèle par les réseaux Neuro-floue où nous comparons le séchage par trois composants (pentane, éthanol et eau). Les résultats obtenus sont très prometteurs. Le séchage au pentane semble le plus approprié. Les porosités importantes peuvent être atteintes.

Mots clés :

Silicium poreux, modélisation, porosité, épaisseur critique, séchage, pentane, éthanol, eau

1. Introduction

Le silicium poreux (SiP) a connu un regain d'intérêt en 1990 avec la découverte la propriété de la luminescence [1,2]. Comme son nom l'indique, le silicium poreux, est une éponge cristalline obtenue par attaque électrochimique d'une plaquette de silicium en milieu d'acide fluorhydrique concentré (HF) ; la dissolution du silicium n'est possible que si le courant délivre des trous issus du matériau à l'interface : c'est la réaction d'anodisation. La figure 1 représente le mécanisme d'attaque chimique [3].

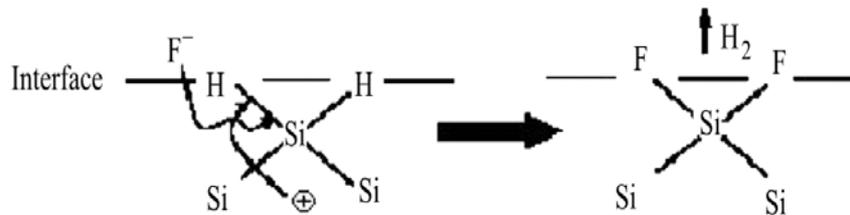


Figure 1 : Mécanisme d'attaque de la couche de passivation Si-H par les ions F^- et l'apport des trous

Le SiP luminescent peut être caractérisé par une forte porosité (>70% de vide) avec une morphologie extrêmement fine, une taille nanométrique des pores et du squelette cristallin. La bande de photoluminescence (PL) est essentiellement dans le visible (550 nm-850 nm).

Le domaine d'application du silicium poreux est très large. Il trouve sa place dans la fabrication des composants optoélectroniques et dans le domaine photovoltaïque [4,5] ; d'autres propriétés du SiP ont été étudiées et ont été exploitées dans des applications scientifiques variées telles que les capteurs biochimiques, les capteurs à gaz d'isolation électrique et thermique [6].

Obtenir un bon matériau de silicium poreux repose sur l'étape du séchage de ce matériau. En effet, à cause de la grande porosité et donc de la faible tenue mécanique, ces échantillons craquent au moment du séchage. Dans ce travail, nous nous intéressons à l'application du modèle des réseaux neuro-floue. Le modèle ANFIS (système d'inférence flou à base de réseaux de neurones adaptatifs), combine les techniques floues et neuronales en formant un réseau à apprentissage supervisé. Avec ce modèle, des matériaux à de fortes porosités peuvent être fabriqués.

2. Le séchage du silicium poreux [7, 8, 9,10]

Le séchage des couches de SiP, et spécialement ceux de grandes porosités, est une étape cruciale. Après la formation de couches épaisses de fortes porosités de couches de SiP, et quand l'électrolyte s'évapore à l'extérieur des pores, un craquement de la couche est systématiquement observé (figure 2). L'origine du craquement est le grand effet de capillarité qui accompagne l'évaporation à partir des pores. Durant l'évaporation une différence de pression ΔP apparaît. Cette différence est donnée par l'équation de Laplace.

$$\Delta p = \gamma \frac{S \cos \Theta}{P} \quad (1)$$

La figure 2 montre le modèle de craquage relevé par le microscope électronique des couches de silicium poreux. Le craquage apparaît par l'épaisseur h_c (équation 2.).

$$h_c = (r/\gamma_{LV})^2 E_{si} (1-p)^3 \gamma_{si} \quad (2)$$



Figure 2 : images du MEB d'un schéma de craquage. Les lignes blanches représentent le silicium cristallin restant) [7]

Les méthodes les plus utilisées sont le séchage à l'air, le séchage supercritique, le séchage par congélation ainsi que le séchage au pentane.

2.1 Séchage à l'air libre

Le séchage à l'air libre est une méthode simple qui écarte les problèmes liés au chauffage des cristaux (sublimation, fusion, décomposition) par contre elle est lente (le séchage pouvant durer de quelques heures à quelques jours) et ne peut être employée lorsque les cristaux sont hygroscopiques ou s'oxydent à l'air. Comme l'air ambiant contient de la vapeur d'eau, cette méthode ne permet pas l'élimination complète de l'humidité. Par contre, cette opération donne une augmentation énorme de pression des tensions. Ainsi le séchage de l'air présente une barrière pour accomplir les hautes porosités. D'où la recherche d'autres techniques plus efficaces.

2.2 Le séchage supercritique

Le séchage supercritique est basé sur le fait que quand la pression est atteinte, l'interface entre le liquide et la phase gazeuse devient instable et quand la pression est supérieure à la pression critique, l'interface gaz/liquide disparaît et un mélange des deux phases apparaît (fluide supercritique)[11]. Dans l'état supercritique, il n'y a pas d'interface liquide/vapeur et par conséquent les pressions capillaires sont supprimées. Néanmoins d'autres pressions peuvent se produire à cause de l'apparition de certaines contraintes entre le pore liquide et le réseau du gel. Dans cette méthode, la solution de HF est remplacé par un liquide adéquat utilisant le dioxyde de carbone, sous haute température. L'usage du séchage supercritique permet l'obtention d'une porosité supérieure à 95%. Cependant le séchage supercritique est cher et compliqué à mettre en œuvre, d'autres méthodes sont normalement employées.

2.3 Le séchage par congélation

Le séchage de l'air présente une barrière pour accomplir les hautes porosités et le séchage supercritique est cher et est difficile à réaliser d'où l'utilisation du séchage par congélation ou « Freeze drying » Le processus du séchage par congélation ou freeze drying est exécuté dans un appareil commercial et dans une cellule sur commande. Ces deux systèmes sont équipés d'une pompe mécanique et d'un élément de frigorigération

(cellule de PELTIER) permettant d'atteindre des valeurs de température au-dessous de -50°C . L'échantillon placé dans une petite cuve d'aluminium. La cuve a été immergée dans LN_2 . Le processus complet prend presque deux heures [12]. le séchage par congélation représente un moyen efficace, simple pour produire les couches de hautes qualités de SiP mais à des porosités inférieures ou égale à 90%.

2.4 Le séchage au pentane

Le séchage à l'air présente une barrière pour accomplir les hautes porosités et le séchage supercritique est cher et est difficile à réaliser. L'utilisation du séchage par congélation est un moyen efficace, simple pour produire les couches de hautes qualités de SiP mais à des porosités inférieures ou égale à 90%. D'où la recherche d'autres méthodes : séchage au pentane, éthanol,...

Le séchage au pentane est le plus facile à réaliser. Le pentane a une tension de surface faible, et ne montre aucune interaction avec le SiP. L'utilisant comme liquide de séchage, le pentane permet de réduire fortement la tension capillaire. Mais puisque l'eau et le pentane sont des liquides non miscibles, le méthanol est utilisé comme liquide intermédiaire. En utilisant cette technique de séchage les couches de fortement poreuses ($P > 90\%$) et d'épaisseur supérieure à $5\ \mu\text{m}$ ne présentent pas de fissures après le séchage.

3. Modèle neuro-flou (ANFIS)

Le réseau Neuro-Floue proposé est un ANFIS (Adaptive Network Fuzzy Inference System), qui a comme entrées l'épaisseur de craquage h_c et la porosité p pour trois composants de séchage afin de comparer et trouver l'élément le plus adapté d'obtention des matériaux sans craquage.

Le modèle ANFIS, connu sous le nom de réseau adaptatif à base de système d'inférence floue, développé par Jang et al [13] en 1993 est une technique qui incorpore les concepts de la logique floue dans les réseaux de neurones. Ce modèle simule la relation entre l'entrée et la sortie d'un processus à travers un apprentissage hybride pour déterminer la distribution optimale des fonctions d'appartenances (figure 3)[14]. L'architecture équivalente du modèle comporte cinq couches, chacune comportant plusieurs nœuds. Les nœuds carrés adaptatifs contiennent des paramètres, alors que les nœuds circulaires (fixes) n'ont pas de paramètres dans le système[15].

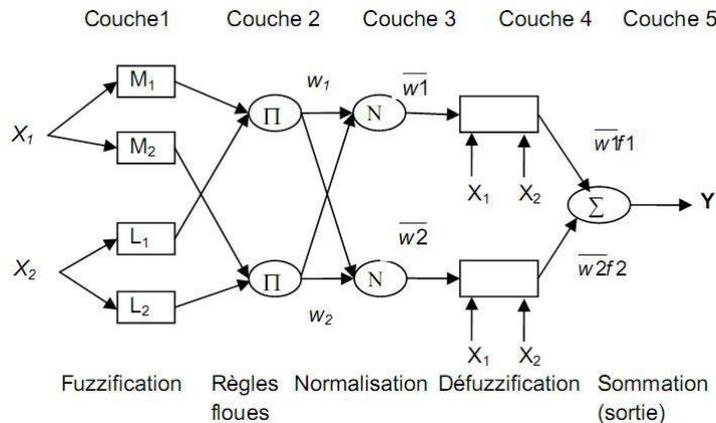


Figure 3 : Architecture du modèle ANFIS

La modélisation d'un système entrée/sortie par la logique floue passe par trois étapes essentielles :

- La fuzzification des variables d'entrée, qui consiste à transformer les entrées numériques disponibles en parties floues. Il est alors possible d'associer à des variables des coefficients d'appartenance à des sous-ensembles flous prenant des valeurs dans l'intervalle $[0,1]$.
- L'inférence floue, composée par la base de règles et par la base de données. La combinaison des entrées avec les règles floues permet de tirer des conclusions.
- La défuzzification qui est l'opération inverse de la fuzzification. Elle convertit les parties floues relatives aux sorties du mécanisme d'inférence en sorties numériques. Il existe plusieurs techniques de défuzzification (11). Cependant la technique la plus utilisée est celle du centre de gravité [15].

Notons, que le système ANFIS est implémenté dans la boîte à outils "Neuro- Fuzzy "de MATLAB. Ce modèle donne de très bons résultats en poursuite de trajectoire, approximation non linéaire, commande dynamique et traitement du signal. Parmi tous les systèmes neuro-flous, le modèle ANFIS présente la plus faible erreur moyenne quadratique

4. Résultats et discussion

Dans le but de mettre en évidence les avantages de l'approche de modélisation neuro floue, une étude comparative a été réalisée avec trois types de séchage au : pentane, éthanol et eau. La figure 4 présente la courbe du séchage par ces trois voies. Avec ce modèle, le séchage au pentane semble le plus approprié du fait que nous pouvons fabriquer des matériaux aux fortes porosités.

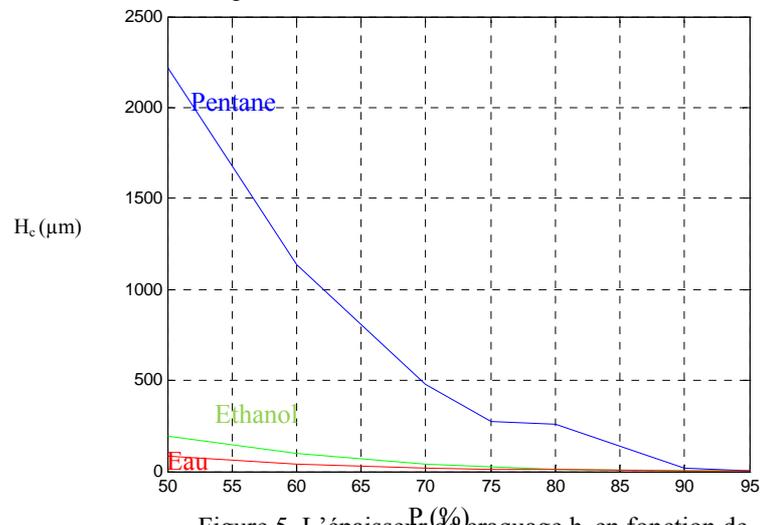


Figure 5. L'épaisseur de craquage h_c en fonction de la porosité pour pentane, éthanol, eau

En effet, nous pouvons atteindre de fortes porosités sans que le matériau ne craque pour le séchage au pentane tandis que le séchage utilisant l'eau comme fluide semble le plus mauvais du fait qu'aux mêmes porosités le matériau est détérioré.

Dans la figure 5, la tension capillaire en fonction de la porosité pour le pentane est la plus basse. En prenant la porosité de 95% cette tension est égale à 5,32 MPa pour le pentane or elle est égale à 27,36 et 17,86 MPa pour l'eau et l'éthanol respectivement. La tension de surface des trois fluides a été prise égale à 47 mJ/m², 72 mJ/m² d'après [16] pour l'éthanol et l'eau respectivement et 14 mJ/m² pour le pentane d'après [17].

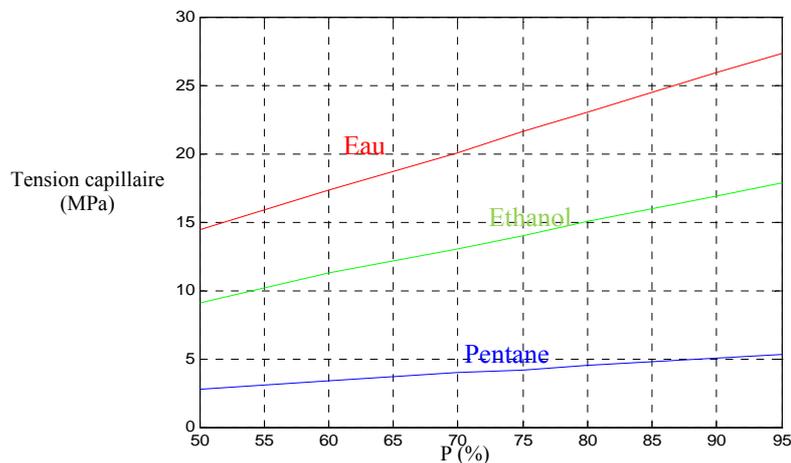


Figure 5. Variation de la tension capillaire en fonction de la porosité dans le cas du séchage au pentane, séchage pour fluide éthanol et eau

La figure 6 concerne le module de Young en fonction de la porosité calculé dans le cas du séchage au pentane. Le module de Young représente le paramètre essentiel des propriétés mécaniques du matériau. A des porosités très élevés (> 90%), ce paramètre s'atténue du fait du quasi disparition de la matière du silicium.

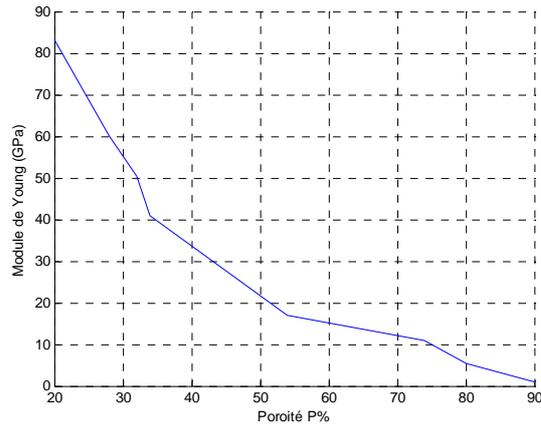


Figure 6. Variation du module de Young en fonction de la porosité

Conclusion :

Le séchage des matériaux poreux sans craquage représente un travail difficile. Classiquement, une évaporation lente du solvant produit des tensions très importantes dues à l'interface liquide-gaz. Un retrait de la structure conduit à l'apparition de fissures qui peuvent provoquer la destruction du matériau. Afin de fabriquer des matériaux de silicium poreux de fortes porosités et sans craquage, différentes techniques sont utilisées. Nous avons appliqué, dans ce travail, le modèle ANFIS-MATLAB au séchage au pentane. Le séchage au pentane est le plus facile à réaliser. Le pentane a une tension de surface faible, et ne montre aucune interaction avec le SiP. L'utilisant comme liquide de séchage, le pentane permet de réduire fortement la tension capillaire. Le séchage au pentane semble la méthode la plus appropriée parmi trois fluides étudiés (pentane, éthanol et eau). A des porosités > 90%, cette épaisseur existe. Par contre, à ces mêmes valeurs de porosité, l'épaisseur h_c disparaît dans le cas de l'utilisation de l'éthanol dans le séchage. Nous avons montré aussi que la tension capillaire est moins grande par rapport au séchage utilisant l'éthanol et l'eau.

Nomenclature

S l'aire de l'interface,
 $\cos\theta$ désigne La courbure de l'interface gaz/liquide ,
P : la porosité
 γ_{LV} La tension de surface.
 h_c l'épaisseur
 γ_{iv} l'énergie de la surface de l'épaisseur de silicium (J/m^2).
r le rayon des pores.
 E_p et E_{si} : les plus petits modules de la porosité de SiP

References :

- [1] Canham, "Silicon quantum wire array fabrication by electrochemical dissolution of wafers, Appl. Phys. Lett. 57, 1041, 1990.
- [2] V. Lehman and U. Gösele, "Porous silicon formation: a quantum effect", Appl. Phys. Lett, Vol 58, 856-858, 1991.
- [3] P. Roussel, Thèse de Doctorat , Lyon, 1999.
- [4] P. Menna, G. Di Francia, and V. La Ferrara, " Porous silicon in solar cells: A review and a description of its application as an AR coating", Solar Energy Materials and Solar Cells, 37, pp.12-24, 1995
- [5] A. Ould-Abbas, "Etude de SiP aspects fondamentaux et pratiques. Application photovoltaïque », Thèse de Doctorat d'Etat, Tlemcen 2003.
- [6] Porous Silicon and Applications, ECE-573.
- [7] O. Bisi, S. Ossicini, L.Pavesi, "Porous silicon: a quantum sponge structure for silicon based optoelectronics", Elsevier Surface Science reports 38,1-126, 2000.
- [8] D. Bellet, L. Canham, "Controlled drying. The key to better quality porous Semiconductors ", Advanced Materials , 10, No. 6 , 1998.
- [9] M.Bouchaour, A.Ould-Abbes, N.Diaf and N.Chabane Sari, « Effect of Drying on Porous Silicon», Journal of Thermal and Calorimetry Analysis, pp 677-684, Vol.76, 2004.

- [10] Ould-Abbas, M. Bouchaour, D. Trari, NE. Chabane Sari, "The Impact Of Drying Phenomena And Heat Treatment On The Structure Of Porous Silicon", *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 109:1347- 1351, 2012.
- [11] Tayanaka H., 2nd W.C.E.P.E.C., Vienna, p. 1272, 1998.
- [12] G. Amato, N. Brunetto, " Porous silicon via freeze Drying", *Materials Letters* 26, 295-298, 1996.
- [13] J.S.R. Jang, 'ANFIS : Adaptive-Network Based Fuzzy Inference System', *IEEE Trans. On SMC*, Vol. 23, N°3, 1993.
- [14] J.S.R. Jang and C.T. Sun, 'Neuro-Fuzzy Modeling and Control', *Proceedings of the IEEE*, Vol. 83, N°3, March 1995.
- [15] S. Heddami, A. Berma, N.Dechemi « Modélisation de la dose de coagulant par les systèmes à base d'inférence floue (ANFIS) application a la station de traitement des eaux de Boudouaou (Algérie) », *Revue des Sciences de l'Eau* 25(1) (2010) 1-19.
- [16] Z-K Lei, Y-L Kang, H. Cen, M. Hu, « Variability on Raman shift to stress coefficient of Porous Silicon », *CHIN. PHYS. LETT*, Vol 23, N°6 (2006), 1623.
- [17] O. Belmont, C. Faivre, D. Bellet, Y. Brechet, « About the origin and the mechanisms involved in the cracking of highly porous silicon layers under capillary stress », *Thin Solid Films*, 276 (1996), 219-222.