

Prédiction de la conductance de Kapitza pour des interfaces Si/Au ; utilisation de la Dynamique Moléculaire

Carolina ABS DA CRUZ^{1*}, Xavier KLEBER², Patrice CHANTRENNE¹

¹Université de Lyon - Centre de Thermique de Lyon CETHIL UMR 5008, CNRS, INSA Lyon, Université Lyon 1 F-69621 Villeurbanne, France

²Université de Lyon - MATEIS UMR 5510, CNRS, INSA Lyon, Université Lyon 1 F-69621 Villeurbanne, France

* (auteur correspondant : carolina.abs-da-cruz@insa-lyon.fr)

Résumé - La dynamique moléculaire est utilisée pour simuler le dépôt d'atomes d'or sur un substrat de Si par PVD. Le profil de concentration de l'or dans la zone de mélange est en accord avec la théorie de Cahn et Hilliard. Le transfert de chaleur dans un système Si/Au est simulé par dynamique moléculaire afin de déterminer la conductance de Kapitza. La valeur obtenue (188 MW/m²K) est en accord avec les résultats de Komarov *et al.* (entre 133 et 182 MW/m²K).

1. Introduction

L'intérêt pour les propriétés thermiques de nanostructures et matériaux nanostructurés est croissant. Ces matériaux sont conçus pour être inclus dans les dispositifs micro-électroniques [1,2] et les systèmes micro électromécaniques (MEMS) [3, 4] dont le comportement et la fiabilité dépendent fortement de l'évacuation de la chaleur générée. Les matériaux multicouches diélectrique/métal sont de bons candidats pour la conversion thermoélectrique [5,6] et leur utilisation est envisagée pour diminuer les températures maximales dans les systèmes microélectroniques. La diminution de l'épaisseur des couches permet de diminuer la conductivité thermique, conduisant à un plus grand facteur de mérite de conversion thermoélectrique [7]. Cette diminution est due à la diminution de la conductivité thermique intrinsèque de chaque couche lorsque leur épaisseur décroît jusqu'à des dimensions du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen des porteurs de chaleur et à l'influence croissante de la conductance de Kapitza aux interfaces. La prédiction de la conductivité thermique de tels systèmes passe donc par une simulation fiable du transfert de chaleur aux interfaces. La dynamique moléculaire (DM) est un outil particulièrement bien adapté à ce type d'études.

Le système diélectrique/métal qui a été le plus étudiée avec la dynamique moléculaire mais aussi expérimentalement jusqu'à présent est certainement le système Si/Au [8-11]. Des problématiques telle que l'épaisseur de la zone de mélange Si/Au, le profil de concentration d'Or dans la zone d'interface et la composition de la couche la plus externe de l'Or sur le Si ont été traitées dans la littérature [8, 9, 11]. Cependant des difficultés persistent car la comparaison entre résultats expérimentaux et de simulations sont délicates [10, 12, 13] en raison de la sensibilité des méthodes expérimentales mais aussi de la description des interactions Si/Au pour les simulations de dynamique moléculaire.

Une paramétrisation du potentiel de type 2NN MEAM [4, 5] développée pour calculer les interactions Si/Au par Cruz *et al.* [15] a été utilisée pour les simulations. Ce potentiel est utilisé pour simuler le dépôt d'Or sur un substrat de Si. La configuration ainsi obtenue est comparée avec celle de Ryu et Cai [10] qui ont utilisé un potentiel Si/Au basé sur le

formalisme MEAM [16]. Enfin, la dynamique moléculaire de non-équilibre (NEMD) [17] est utilisée pour prédire la conductance de Kapitza d'un système Si/Au.

2. Etude de l'interface Si/Au

Le potentiel 2NN MEAM est utilisé pour les interactions Si/Si et Au/Au, le choix est basée sur l'évaluation des potentiels pour les propriétés harmoniques et anharmoniques des ces matériaux. Une paramétrisation utilisent le formalisme du potentiel 2NN MEAM a été développée afin de faciliter le calcul des forces atomiques Si/Au [15] pour les simulations de DM. Ce choix de potentiel est validé en comparant les caractéristiques d'interfaces Si/Au avec deux autres interfaces modélisées avec des potentiel différents proposés dans la littérature. La seconde interface est réalisée avec le choix de potentiels de Kuo et Clancy [12] basé sur le potentiel 1NN MEAM de Baskes pour les interactions Si/Si et Au/Au et une loi de mélange pour les interactions Si/Au. La troisième interface est modélisée avec l'approche de Ryu et Cai [10] qui utilise le formalisme 1NN MEAM pour les interactions Si/Si et 2NN MEAM *et al.* Pour les interactions Au/Au. Ryu et Cai [10] ont proposé une paramétrisation particulière basée sur le formalisme MEAM pour les interactions croisées. Ces interfaces sont réalisées en simulant avec la dynamique moléculaire le dépôt en phase vapeur d'or sur substrat de Si. La quantité d'atome d'or déposé est quantifiée en terme de monocouche (ML pour MonoLayer). Une ML correspond au nombre d'atome de Si sur la couche externe d'une surface de Si orientée perpendiculairement à la direction (001), soit $6,8 \times 10^{14}$ atomes/cm² environ. Une fois le dépôt réalisé, la concentration en atome d'or est calculée sur une épaisseur de 10 couches atomiques, ce qui correspond à l'épaisseur de matière analysée par spectroscopie d'électrons Auger [8]. Un exemple de configuration atomique obtenue est représenté sur la figure 1. Les conditions aux limites périodiques sont utilisé dans les directions x et y , la condition de frontière libre est utilisée dans la direction z pour simuler une interface libre Si/vapeur d'Au. Les directions x , y et z correspondent aux directions (100), (010) et (001) du cristal de silicium. Les dimensions du substrat de Si sont de 12 paramètres de mailles dans la direction x et y et 5 paramètres de mailles (soit 10 couches atomiques) dans la direction z .

Les taux de dépôt sous vide peuvent varier grandement, allant de moins de 1 ML/s (3 Å/s) à plus de 3 microns/s [19]. Avec la DM, il n'est pas possible de simuler des durées si importantes. Par conséquent, dans ces simulations, un atome d'or est inséré tous les 5 ps dans la partie supérieure de la boîte de simulation avec une position aléatoire et une vitesse telle que leur énergie cinétique correspondent à l'énergie de vaporisation, soit 0,3 eV [19].

La figure 2 montre le profil de concentration de la zone d'interface pour différentes épaisseurs d'or déposées (ML variant de 1,5 à 6,5) sur un substrat de silicium. Les résultats sont comparés avec des mesures AES de Ceelen *et al.* [8] et les résultats de l'interface obtenue avec les potentiels utilisés par Kuo et Clancy [12]. Pour les monocouches inférieures à 3 ML, les deux potentiels donnent des résultats en bon accord avec les mesures par spectroscopie d'électrons Auger [8]. Toutefois, pour la région où les dépôts sont supérieurs à 3 ML les résultats expérimentaux suggèrent une zone plus grande de mélange.

La Fig. 3 montre les profils de concentration de la zone de mélange de l'interface Si/Au dans la direction z pour trois valeurs différentes de quantité d'or déposée. L'épaisseur de mélange de l'interface pour différentes monocouches d'Au est environ de 2 Å avec le potentiel croisé de Cruz *et al.* [15]. Le profil de concentration de la zone de mélange avec le potentiel croisé de Cruz *et al.* est différent de celui obtenus par Ryu et Cai et Kuo et Clancy. Cependant, ces deux résultats précédents sont en désaccord avec la théorie de Cahn et Hilliard [20] fondée sur la thermodynamique d'un système non-uniforme, conduisant à un gradient de composition en forme de sigmoïde qui minimisent l'énergie libre interfaciale. Seul le potentiel

croisé Cruz *et al.* [15] permet de retrouver qualitativement cette variation monotone de la concentration d'Or dans la zone interfaciale.

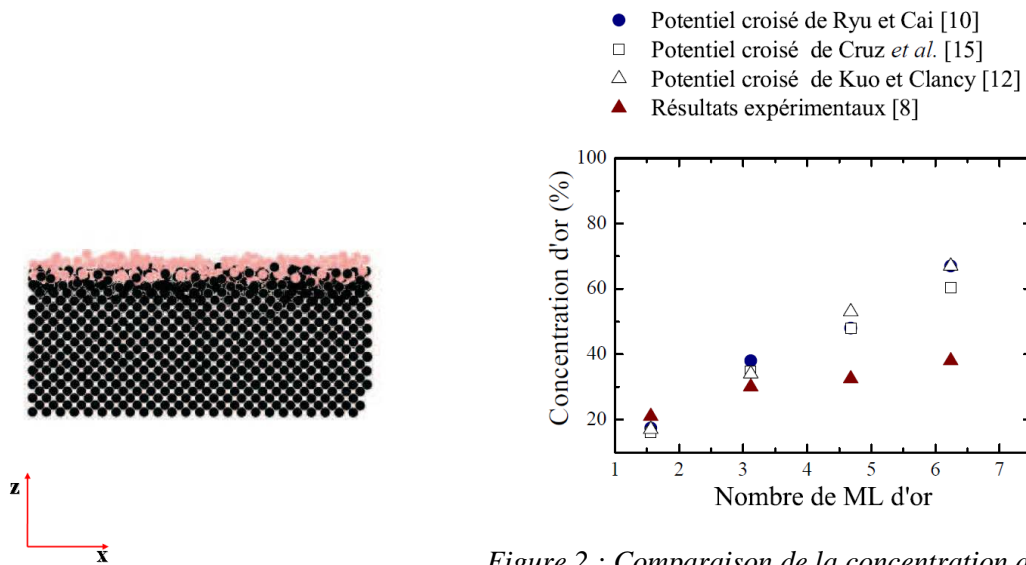


Figure 1 : Vue de Côté d'interface de 1.56ML d'Or déposé sur un substrat de Si.

Figure 2 : Comparaison de la concentration d'Or dans la zone de surface prévue par les potentiels croisés de Ryu et Cai [10], de Cruz *et al.* [15] de Kuo et Clancy [12] et les résultats expérimentaux [8] pour des mesures d'AES à 303K.

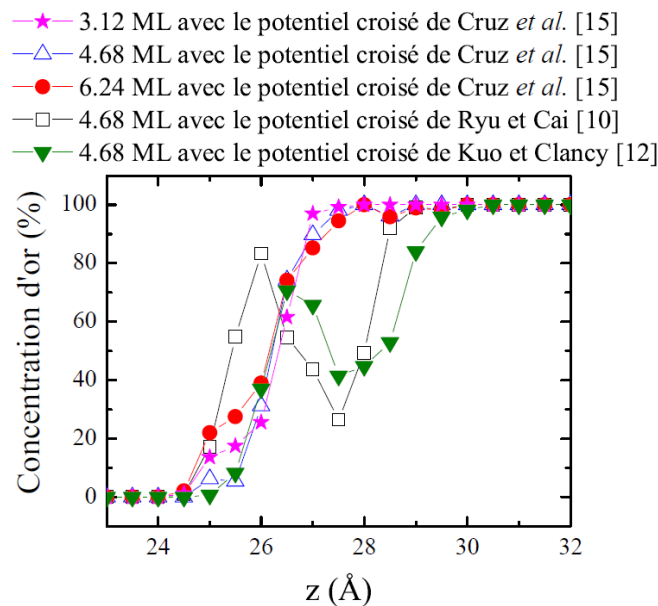


Figure 3 : Concentration d'Or dans la zone de mélange pour différentes épaisseurs d'Or déposées par PVD sur Si. Comparaison des résultats obtenus avec les potentiels croisés de Cruz *et al.* [15], Ryu et Cai [10] et Kuo et Clancy [12].

3. Détermination de la conductance de Kapitza d'une interface Si/Au

La paramétrisation du potentiel croisé de Cruz *et al.* [15] basée sur le formalisme 2NN MEAM pour Si et Au permet d'améliorer la qualité de l'interface entre ces deux matériaux. De plus, les résultats précédents [15] montrent que le potentiel 1NN MEAM ne fait pas une bonne description de les propriétés harmoniques et anharmoniques du Si, ce qui est

fondamental pour les propriétés thermiques. Le potentiel 2NN MEAM est donc choisi pour réaliser des systèmes multicouches Au/Si et pour prédire la conductance de Kapitza de ces interfaces. La conductance de Kapitza, G_K , crée un obstacle au flux de la chaleur et conduit à une discontinuité de température ΔT lorsque le champ de température loin de l'interface est extrapolé au niveau de l'interface théorique. G_K , est définie par :

$$G_K = \frac{Q}{\Delta T},$$

où Q est la densité de flux de chaleur traversant l'interface.

La structure modélisée est constitué de cristaux : un de Si avec une structure en diamant et l'autre d'une structure cfc d' Au. Les deux cristaux sont en contact dans une boîte rectangulaire de dimension de 32,58 x 32,58 Å dans le plan (x,y) et d'une longueur de 217 Å dans la direction z. Les conditions limites périodiques sont utilisées dans les directions x et y et la condition de surface libre est appliquée dans la direction du transfert de chaleur z. Le cristal de Si est composé de 7200 atomes tandis que le cristal d' Au est composé de 6840 atomes (Fig. 4).

Dans la première étape de la simulation, le système est équilibré à une température constante de 303 K pendant 40 ps. Le pas de temps est égal à 5 fs. Le gradient de température est imposé dans la direction z en fixant la température de la couche d'atomes supérieure de l'or à 330 K et la couche d'atomes inférieure du Si à 270 K. Le profil de température dans le système est calculé par une approche statistique après établissement du régime permanent.

Les valeurs de la conductivité thermique obtenue à partir de la DM dépendent de la taille du système étudié dans le cas où le libre parcours moyen des phonons est comparable à la dimension du système [17, 21, 22]. Toutefois, les effets de la taille sont moins importants pour la conductance de Kapitza G_K [23, 24]. Pour valider cette hypothèse, la dimension du système dans la direction du transfert de chaleur a été étendue de 50% (la longueur totale de la structure est portée à 348 Å). Les profils de température pour ces structures sont montrés dans la Fig. 3.

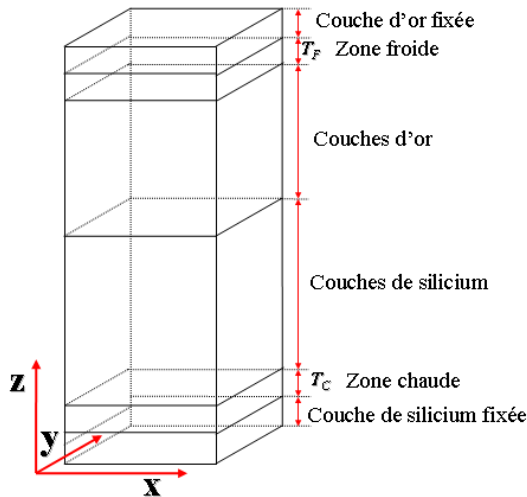


Figure 4 : Schéma de la structure pour les simulations de NEMD.

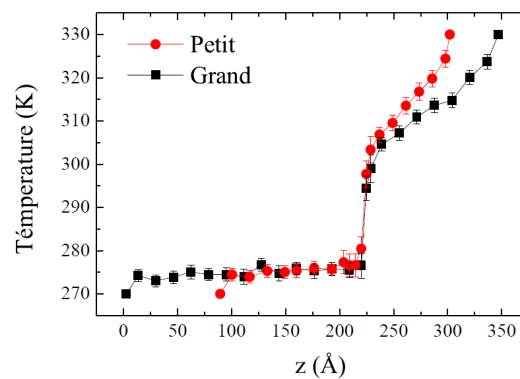


Figure 5 : Profil de température pour les configurations petite et grande pour simuler le transfert de chaleur pour des systèmes Si/Au en utilisant le potentiel croisé de Cruz et al.[15].

La valeur de G_K obtenue est 162 ± 8 MW/m²K pour la plus petite structure et 154 ± 7 MW/m²K pour la plus grande structure, la différence étant de 5%. La valeur moyenne 158 MW/m²K a été considérée comme la conductibilité de Kapitza pour ce système Si/Au. La température dans le Si est presque uniforme en raison de sa conductivité thermique élevée. Le

gradient important dans l'Or est due à sa faible conductivité thermique du réseau. Avec des simulations de DM, il n'est pas possible de simuler le transfert de la chaleur dû aux électrons. Sergeev a tiré une relation entre la conductibilité électronique de Kapitza, G_{KE} , les propriétés électroniques et les propriétés du substrat [25]. Ce modèle prédit une conductibilité électronique de Kapitza de $G_{KE} = 30 \text{ MW/m}^2\text{K}$ pour une interface Si/Au, en considérant que les électrons et le réseau sont en équilibre thermique. Si on considère les deux résistances thermiques dues aux transferts électronique et phononique indépendantes alors la conductance totale de Kapitza est égale à la somme des deux conductances : $G_{KT} = G_{KE} + G_K = 188 \text{ MW/m}^2\text{K}$. Cette valeur est tout à fait cohérente avec celles obtenues par Komarov *et al.* pour une interface d'or déposé sur du Si (Si-28 isotopique pur ou Si naturel) faiblement dopé qui est comprise entre 133 et 182 $\text{MW/m}^2\text{K}$ [26].

4. Conclusion

Le potentiel MEAM est une bonne alternative pour travailler avec le même potentiel pour les systèmes avec des matériaux différents, parce qu'il peut être appliqué pour plusieurs configurations cristallographiques. Le potentiel 2NNMEAM développé par Cruz *et al.* [15] pour simuler les interactions Si/Au est utilisé pour simuler des interfaces Si/Au. Le profil de concentration de l'Or dans le Si a une forme sigmoïde à l'interface Si/Au, ce qui est en accord avec la théorie de Cahn et Hilliard [20] contrairement à ce qui a déjà été obtenu avec d'autres potentiels. Les résultats expérimentaux suggèrent une zone de mélange plus considérable pour l'interface Si/Au que pour les résultats obtenus par les potentiels croisés de Cruz *et al.* [15], Kuo et Clancy [12] et de Ryu et Cai [10]. Pour la conductance de Kapitza, le résultat de 188 MW^2/mK est en bon accord avec celui de Komarov *et al.* [26] pour d'Or déposé sur du Si faiblement dopé, la conductibilité de Kapitza allant de 133 à 182 $\text{MW/m}^2\text{K}$ [26]. Le résultat suggère que la conductance thermique, G_K , dépend principalement du réseau et peut être prédite sans considérer la contribution des électrons pour le transfert de chaleur. Ceci est en accord avec des résultats antérieurs sur le transport thermique [27, 28] qui ont montré une contribution plus significative des interactions phonon-phonon que les contributions des interactions électron-phonon à l'interface.

Remerciements

Ce travail a été financé par le CNRS dans le cadre des travaux du projet ANR-jeunes chercheurs NanoMetrETHer et du projet ANR PNANO COFISIS, ANR-07-NANO-047-03. Les auteurs sont reconnaissants pour l'utilisation des installations informatiques d'IIDRIS et de P2CHPD de la FLCHP (Fédération Lyonnaise de Calcul Haute Performance).

Références

- [1] Green, M. L., Schenck, P. K., Chang, K.-S., Ruglovsky, J., and Vaudin, M., 2009. "Higher-k dielectrics for advanced silicon microelectronic devices: A combinatorial research study". *Mic. Eng.*, **86**(7-9), Jul-Sep, pp. 1662–1664.
- [2] Vastola, G., Marzegalli, A., Montalenti, F., and Miglio, L., 2009. "Strain and strain-release engineering at epitaxial SiGe islands on Si(001) for microelectronic applications". *Mat. Sci. Eng. B*, **159-160**(Sp. Iss), Mar, pp. 90–94.
- [3] Liu, M., Lu, Y., Zhang, J., Xia, S., and Yang, J., 2009. "MEMS/microelectronics self-assembly based on analogy of Langmuir-Blodgett approach". *Microel. Eng.*, **86**(11), Nov, pp. 2279–2282.
- [4] Lee, K.-N., Lee, D.-S., Jung, S.-W., Jang, Y.-H., Kim, Y.-K., and Seong, W.-K., 2009. "A high-temperature MEMS heater using suspended silicon structures". *J. Micromech. Microeng.*, **19**(11), Nov, pp. 115011–8.

- [5] Vashaee, D., and Shakouri, A., 2004. "Electronic and thermoelectric transport in semiconductor and metallic superlattices". *J. Appl. Phys.*, **95**(3), Feb, pp. 1233–1245.
- [6] Vashaee, D., and Shakouri, A., 2004. "Improved thermoelectric power factor in metal-based superlattices". *Phys. Rev. Lett.*, **92**(10), Mar, pp. 106103–4.
- [7] Phanta, B. N., Dahal, R., Li, J., Jiang, H. X., and Pomremke, G., 2008. "Thermoelectric properties of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ alloys". *App. Phys. Lett.*, **92**(4), Jan, pp. 042112–3.
- [8] Ceelen, W. C. A. N., Moest, B., Ridder, M., Ijzen-doorn, L. J. V., Gon, A. W. D. V., and Brongersma, H. H., 1998. "Ultrathin Au layers on Si(100): surface silicide formation at room temperature". *Appl. Surf.Sci.*, **134**(1-4), Sep, pp. 87–94.
- [9] Kuo, C.-L., and Clancy, P., 2004. "Development of atomistic MEAM potentials for the silicon-oxygen-gold ternary system". *Mod.Sim.Mat. Sci. Eng.*, **13**(8), Dec, pp. 1309-1329 .
- [10] Ryu, S., and Cai, W., 2010. "A gold-silicon potential fitted to the binary phase diagram". *J. Phys.: Condens.Matter.*, **22**(5), Feb, pp. 055401–9.
- [11] Kim, J. H., Yang, G., Yang, S., and Weiss, A. H., 2001. "Study of the growth and stability of ultra-thin films of Au deposited on Si(100) and Si(111)". *Surf. Sci.*, **475**(1-3), Mar, pp. 37–46.
- [12] Kuo, C.-L., and Clancy, P., 2004. "Meam molecular dynamics study of a gold film on a silicon substrate". *Surf. Sci.*, **551**(1-2), Feb, pp. 39–58.
- [13] Ryu, S., Weinberger, C. R., Baskes, M. I., and Cai, W., 2009. "Improved modified embedded-atom method potentials for gold and silicon". *Modelling Simul. Mater.Sci. Eng.*, **17**(7), Oct, pp. 075008–15.
- [14] Lee, B.-J and Baskes, M. I., 2000. "Second nearest-neighbor modified embedded-atom-method potential". *Phys. Rev. B*, **62**(13), pp. 8564.
- [15] Cruz, C. A., Chantrenne, P., and Kleber, X., "Molecular Dynamics simulations and kapitza conductance prediction of Si/Au systems using the new full 2NN MEAM Si/Au cross-potential". *To be published in the Proceedings of the ASME/JSME 2011 8th Thermal Engineering Joint Conference.*
- [16] Lee, B.-J., Shim, J.-H., and Baskes, M. I., 2003. "Semiempirical atomic potentials for the fcc metals Cu, Ag, Au, Ni, Pd, Pt, Al, and Pb based on first and second nearest- neighbor modified embedded atom method". *Phys. Rev. B*, **68**(14), Oct, pp. 144112–11.
- [17] Chantrenne, P. and Barrat, J. L., 2004. "Finite size effects in determination of thermal conductivities: Comparing molecular dynamics results with simple models". *J.Heat. Transf. ASME*, **126**(4), Aug, pp. 577-585 .
- [18] Baskes, M. I., 1992. "Modified embedded-atom potentials for cubic materials and impurities". *Phys. Rev. B*, **46**(5), Aug, pp. 2727–2742.
- [19] Mattox, D. M., 1958. *Handbook of physical vapor deposition (PVD) processing*. Noyes Publications, EUA.
- [20] Cahn, J. W., and Hilliard, J. E., 1958. "Free energy of a nonuniform system. I. Interfacial free energy". *J.Chem. Phys.*, **28**(2), Feb, pp. 258–267.
- [21] Schelling, P. K., Phillpot, S. R., and Keblinski, P., 2002. "Comparison of atomic-level simulation methods for computing thermal conductivity". *Phys. Rev.B*, **65**(14), Apr, p. 144306.
- [22] Chantrenne, P., Barrat, J. L., Blase, X., and Gale, J. D., 2005. "An analytical model for the thermal conductivity of silicon nanostructures". *J. Appl. Phys.*, **97**(10), May, pp. 104318–8.
- [23] Hu, M., Keblinski, P., and Schelling, P., 2009. "Kapitza conductance of silicon-amorphous polyethylene interfaces by molecular dynamics simulations". *Phys. Rev.B*, **79**(10), Mar, pp. 104305–7.
- [24] Luo, T., and Lloyd, J. R., 2010. "Non-equilibrium molecular dynamics study of thermal energy transport in Au-SAM-Au junctions". *Int. J. Heat and mass Transfer*, **53**(1-3), Jan, pp. 1–11.
- [25] Sergeev, A., 1999. "Inelastic electron boundary scattering in thin films". *Phys. B*, **263-264**, Mar, pp. 217–219.
- [26] Komarov, P. L., Burzo, M. G., Kaytaz, G., and Raad, P. E., 2003. "Transient thermo-reflectance measurements of the thermal conductivity and interface resistance of metallized natural and isotopically-pure silicon". *Microel. Journal*, **34**(12), Dec, pp. 1115–1118.
- [27] Mahan, J. D., 2009. "Kapitza thermal resistance between a metal and a nonmetal". *Phys. Rev. B*, **79**(7), Feb, pp. 075408–6.
- [28] Leo, H.-K., and Cahill, D. G., 2006. "Thermal conductance of interfaces between highly dissimilar materials". *Phys. Rev. B*, **73**(14), Apr., pp. 144301–6.