

Etude numérique de la conduction dans des nanostructures

Damian TERRIS^{1*}, Karl JOULAIN¹, David LACROIX², Denis LEMONNIER¹.

¹Laboratoire d'Etudes Thermiques

ENSMA, 1, avenue Clément Ader –86960 Futuroscope Cedex

²Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée

Université H. Poincaré, Nancy 1, BP 239 – 54506 Vandoeuvre Cedex

* (auteur correspondant : damian.terris@let.ensma.fr)

Résumé - Ce travail est une étude des transferts thermiques dans des nanostructures (ex: nanofils) en régime instationnaire. L'équation de Boltzmann pour les phonons est résolue dans l'approximation du temps de relaxation dans un système cylindrique bidimensionnel. L'intégration se fait à l'aide de la méthode des ordonnées discrètes en tenant compte de la dispersion des ondes acoustiques et de la dépendance spectrale des temps de relaxation. Les résultats seront comparés avec ceux obtenus par intégration de l'équation de Boltzmann par la méthode Monte Carlo.

Nomenclature

k_B constante de Boltzmann

I luminance des phonons

p polarisation

V_p vitesse de phase, $m.s^{-1}$

V_g vitesse de groupe, $m.s^{-1}$

k vecteur d'onde, $rad.m^{-1}$

L longueur du nanofil, m

D diamètre du nanofil, m

r rayon du nanofil, m

w poids de la quadrature

M nombre de directions de la quadrature

Symboles grecs

Ω angle solide, sr

κ coefficient d'extinction, m^{-1}

τ temps de relaxation

ω fréquence des phonons, $rad.s^{-1}$

1. Introduction

Classiquement, la loi de Fourier et l'équation de la chaleur permet de traiter la conduction thermique. Ces deux relations tirent leur origine dans le fait, qu'à l'échelle microscopique, l'énergie est transportée par des porteurs de chaleur subissant un grand nombre de collisions (marche au hasard). L'étude d'Einstein sur le mouvement Brownien montre que ce type de comportement microscopique conduit toujours à l'échelle macroscopique à une équation de diffusion [1].

Lorsque les échelles mises en jeu (typiquement les dimensions du système) deviennent de l'ordre du libre parcours moyen des porteurs de chaleur, le régime de diffusion disparaît pour rentrer dans un régime où certains des porteurs de chaleur subissent peu de collisions à l'échelle du système. Certains peuvent même traverser par « vol balistique » la totalité du système [2]. L'équation de diffusion n'est plus valable. L'équation de Boltzmann est alors utilisée. Celle-ci est une équation portant sur une fonction de distribution des porteurs de chaleur dans l'espace des phases [3]. Le moyen le plus simple de traiter cette équation est de se placer dans l'approximation du temps de relaxation en considérant que le système est proche d'une distribution d'équilibre. L'équation de Boltzmann est, dans cette approximation, très proche de l'équation de transfert radiatif pour les photons dans sa forme la plus simple c'est-à-dire en l'absence de diffusion [4]. Deux différences notables sont néanmoins

présentes. La conduction thermique tient compte de la propagation à vitesse finie et d'autre part cette vitesse dépend de l'énergie des porteurs de chaleurs.

Le travail réalisé ici s'applique aux transports de chaleur dans des nanofils de silicium. Les porteurs de chaleur sont ici des phonons, c'est-à-dire des modes propres de propagation d'ondes acoustiques dans le milieu (du grec ancien φωνη / *phonê*, la voix). De plus, le modèle géométrique représente des nanofils cylindriques auquel sera appliquée une méthode de résolution largement utilisée pour l'équation de transfert radiatif, la méthode des ordonnées discrètes. L'apport original de cette étude sera de prendre en compte les différentes branches de polarisations des ondes acoustiques dans le cristal ainsi que la dispersion de ces modes. De ce fait la vitesse varie avec la fréquence. Les différents processus de collisions des phonons seront pris en compte par l'intermédiaire des temps de relaxation obtenus dans la littérature [5-7].

En premier lieu, sera présenté la méthode d'intégration de l'équation de Boltzmann qui a été choisie. Cette méthode sera ensuite validée sur un nanofil de silicium. Son comportement simulé en régime stationnaire par cette méthode sera comparé avec des expériences réalisées dans le passé [8-10]. Enfin, l'évolution temporelle de la température le long du fil permettra d'avoir une première approche du comportement temporelle d'un nanofil de silicium.

2. Théories et méthodes

Comme il a été précisé dans l'introduction, cette étude est menée sur les porteurs de chaleur dans un cristal semi-conducteur. Il s'agit de phonons qui sont des quasi-particules associées aux ondes acoustiques dans le cristal. Le quantum d'énergie ainsi véhiculé par ces quasi-particules est $\hbar\omega$ (ou $h\nu$), où $\omega=2\pi\nu$ est la pulsation, en rad/s, ν la fréquence en Hz, de l'onde, et $\hbar=h/2\pi$ avec h la constante de Planck. La fonction de distribution dans l'espace des phases associée aux phonons peut s'interpréter comme une sorte de luminance de phonons représentant le nombre de phonons d'une fréquence donnée, à un endroit donné, se propageant dans une direction donnée.

2.1. Equation de Boltzmann

L'analyse déterministe de ce système est réalisée à partir de l'équation (1) de Boltzmann, dont l'écriture ressemble à celle du transfert radiatif (ETR) [4],[11].

$$\frac{1}{V_g} \frac{\partial I_\omega}{\partial t} + s \cdot \nabla I_\omega = \kappa_\omega (I_\omega^0 - I_\omega) \quad (1)$$

Cette équation est résolue pour deux cas d'études : l'étude stationnaire, dont le premier membre de l'équation (1) disparaît, et aussi l'étude instationnaire, qui permettra de visualiser l'évolution de la température, en Kelvin, en fonction du temps.

Pour ces deux types d'analyses, le système de coordonnées cylindriques permet de bien décrire la géométrie choisie (celle-ci est expliquée au §2.2.2.). Ainsi, l'équation (1) s'écrit sous la forme suivante :

$$\frac{1}{V_g} \frac{\partial I_\omega}{\partial t} + \frac{\mu}{r} \frac{\partial (r I_\omega)}{\partial r} + \frac{\eta}{r} \frac{\partial I_\omega}{\partial \theta} - \frac{1}{r} \frac{\partial (\eta I_\omega)}{\partial \phi} + \xi \frac{\partial I_\omega}{\partial z} + \kappa_\omega I_\omega = \kappa_\omega I_\omega^0 \quad (2)$$

Un terme de redistribution angulaire apparaît et est représenté par le quatrième du membre de gauche. En effet, pour une direction de propagation donnée de l'onde, l'angle constant formé par cette direction avec le repère cartésien varie dans ce nouveau repère cylindrique (dérivée covariante).

2.2. Systèmes d'étude et conditions aux limites

2.2.1. Schéma de propagation des ondes acoustiques

La méthode des ordonnées discrètes [12-14] est utilisée afin de quantifier les luminances selon les directions de propagations des ondes. Le schéma SN8, correspondant à cette méthode, permet de diviser les directions des luminances en 80. Pour l'analyse qui suit ce schéma est utilisé. L'approximation en nombres finis de l'intégration sur l'espace angulaire $d\Omega$ de l'équation (2) entraîne l'association d'un poids w de la quadrature pour chaque groupe de directions tel que :

$$\int_{4\pi} d\Omega = \sum_{m=1}^M w_m = 4\pi, \quad \int_{4\pi} \mu d\Omega = \sum_{m=1}^M \mu_m w_m = 0 \quad \text{et} \quad \int_{2\pi.t.q.\mu_m < 0} \mu d\Omega = \sum_{m.t.q.\mu_m < 0} |\mu_m| w_m = \pi \quad (3)$$

2.2.2. Géométrie

La modélisation de la nanostructure est représentée par un cylindre plein, de longueur et de diamètre finis. Ces dimensions sont les caractéristiques d'un nanofil.

Afin de décrire au mieux cette figure, une analyse tridimensionnelle semble préférable. Cependant, l'existence d'une symétrie axiale est visible au sein de la représentation 3D des nanofils. En posant la dérivée partielle $\partial/\partial\theta=0$, la symétrie est alors décrite. Ainsi, le troisième terme de l'équation (2) disparaît, le système bidimensionnel est, par conséquent, suffisant pour l'analyse d'un nanofil. De plus, cette symétrie permet de diviser par 2 le nombre M (3) de directions de propagations d'ondes étudiées. Néanmoins il est nécessaire de multiplier par 2 le poids associé w à chaque ensemble de directions afin de retrouver l'exactitude de l'analyse.

Le maillage choisi est de forme rectangulaire (fig.1). Il représente une demi-section de plan (r, z) , où l'axe z est l'axe du cylindre. La longueur du nanofil en régime stationnaire vaut $2\mu\text{m}$. Cette distance est divisé en 200 parties égales. En instationnaire, la longueur choisie est d'un micron, et afin d'avoir une même subdivision, elle est divisée en 100 parties égales. Le diamètre étudié dans les deux cas est de 37nm , son rayon est divisé en 40 parties égales pour le régime stationnaire et en 20 pour l'instationnaire. Cette diminution permet de réduire considérablement le temps de calcul, pour une perte de précision $<1\%$.

2.2.3. Conditions aux limites et initiales

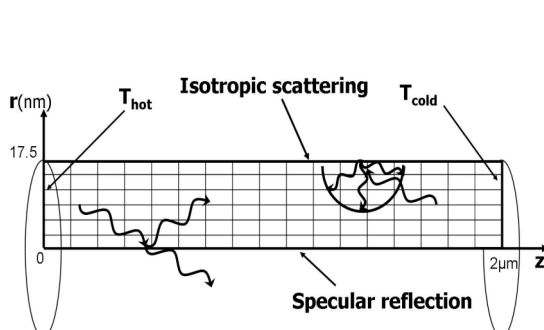


Figure 1 : Discretisation géométrique et conditions aux limites du nanofil étudié

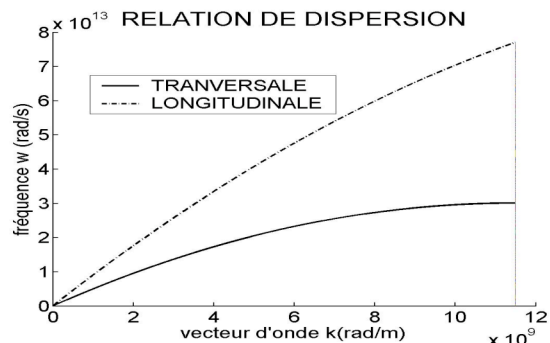


Figure 2 : relation de dispersion

Afin de fermer le système s'appliquant aux nanostructures décrites ci-dessus, plusieurs conditions sont nécessaires (fig.1):

- L'axe de symétrie est considéré comme une paroi de réflexion pure.

- Les extrémités du cylindre sont représentées par des surfaces noires dont la différence des températures est de quelques degrés, afin de considérer le système comme un milieu faiblement anisotherme. Ils émettent de manière isotrope la luminance d'équilibre $I_{\omega}^0(T_{paroi})$.
- La paroi cylindrique est traitée en réflexion diffuse et isotrope. Cette condition est exprimée par l'expression suivante :

$$I_{\omega}(x_p, t, s) = \frac{1}{\pi} \int_{s'.n < 0} (I_{\omega}(x_p, s') |s'.n| d\Omega') \text{ où } n \text{ est le vecteur normal à la paroi.} \quad (4)$$

- Enfin, la température initiale du système, hormis la paroi chaude, est égale à la température froide.

2.3. Particularité de l'étude

Le système a été traité ci-dessus comme un problème radiatif. Cependant, il existe quelques différences qui dissocient la nanothermique du rayonnement. Par exemple, les fréquences des phonons correspondent aux modes propres du réseau cristallin et sont représentées par une courbe de dispersion (fig.2) définissant $\omega(k)$, où k est le vecteur d'onde [15]. L'étude est réalisée pour un réseau isotrope correspondant à la direction $\langle 100 \rangle$, et seuls les phonons acoustiques sont pris en compte. Les phonons optiques, de part leurs petites contributions, sont négligés.

Il reste par conséquent, à cette relation de dispersion, deux polarisations : une longitudinale et une transversale. La première caractérise la vibration des atomes du réseau cristallin dans la direction de la propagation de l'onde, soit dans la direction du vecteur d'onde z . Il est à noter que ce type de polarisation n'existe pas pour les ondes électromagnétiques. La branche inférieure représente les polarisations transversales correspondant aux vibrations des atomes dans les directions x et y , orthonormales au vecteur d'onde de direction z . Il sera nécessaire de multiplier par un facteur 2, les résultats obtenus pour la branche transversale car celle-ci est dégénérée deux fois.

Cette figure met en avant la non-linéarisation de la relation de dispersion. Ceci implique deux types de vitesse intervenant dans le problème : la vitesse de phase $V_p = \omega/k$ et la vitesse de groupe $V_g = \partial \omega / \partial k$. Ces vitesses ne sont ni constantes ni égales entre elles.

En rayonnement, les photons interagissent seulement avec les atomes ou molécules. Pour cette étude, l'interaction des phonons se fait avec les impuretés présentes dans le système, les limites de celui-ci, mais aussi entre eux. Toutefois, le problème ayant été construit en 2 dimensions, et en ayant traduit les frontières comme surfaces noires ou comme parois diffusantes, les interactions avec les limites sont par conséquent déjà prises en compte. Ainsi, la description des collisions restantes se fait à travers le terme κ qui représente le coefficient d'extinction des particules, où :

$$\kappa = \frac{1}{V_g \tau} \text{ et } \tau^{-1} = \tau_N^{-1} + \tau_U^{-1} + \tau_i^{-1}$$

Les temps de vie τ_N et τ_U associés aux phénomènes régissant trois phonons [15], ainsi que τ_i associé aux impuretés sont donnés par Holland [4] et dépendent des courbes de dispersion.

3. Résultats

La validation du système a été réalisée dans des conditions stationnaires. Les temps de relaxations caractéristiques de ces programmes restent inchangés. Seule la définition de la

courbe de dispersion varie, où il a été imposé dans un premier temps $V=V_g(\omega)=V_p(\omega)=\omega(k_{max},p)/k_{max}$; où p représente la polarisation. Dans un deuxième cas, un milieu gris par bande a été réalisé [16]. Puis il a été construit une relation de dispersion linéaire sur $[0, \omega_1]$, où $\omega_1=\omega(k_{max}/2,p)$, ainsi que sur $[\omega_1, \omega_{max}]$, où $\omega_{max}=\omega(k_{max},p)$, avec 2 V_g constantes et inégales.

Enfin, le cas d'étude en stationnaire, est réalisé avec la relation de dispersion définie par E. Pop (fig.1) [17]. Les résultats obtenus suivent un bon profil et s'approchent de ceux obtenus par la méthode de Monte Carlo [8], par le modèle analytique proposé par P.Chantrenne [10] ainsi que des valeurs expérimentales de Li [9] (fig.3). Plusieurs diamètres ont été également étudiés et amènent des résultats similaires.

Afin de visualiser le comportement du système avec les parois de réflexion diffuse, un coefficient d'absorption très proche de zéro a été posé. Pour des températures inférieures à 150K, les points obtenus sont analogues à ceux acquis par la méthode précédente. Ce résultat montre que pour des petites températures, ce sont les collisions avec les parois qui sont prépondérantes. Au-delà, les processus Normaux et Umklapp sont prédominants.

Pour des températures élevées, la conductivité acquise est plus faible que celles obtenues par d'autres méthodes. Selon Holland [4], les temps de relaxation ont été définis pour des basses températures, ce qui peut expliquer ce phénomène.

L'évolution de la température suivant l'axe du nanofil est représenté sur la figure 4. La simulation est réalisée aux alentours de 10K. On observe une évolution temporelle de la température typique du régime de Fourier [18]. Dans ce régime, la température décroît linéairement le long du fil selon la loi de Fourier et en caractérise le système par sa conductivité.

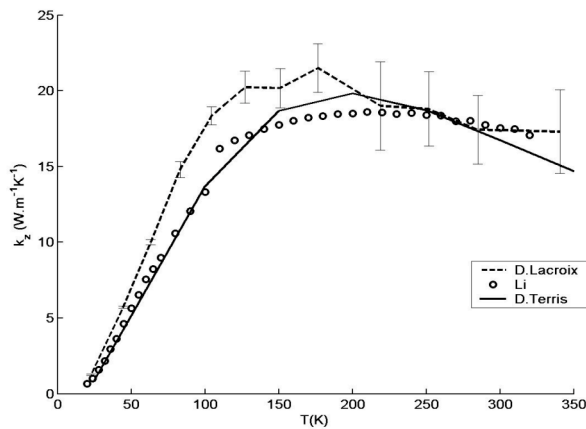


Figure 3 : conductivité dans un nanofils de $L=2\mu m$ et $D=37 nm$

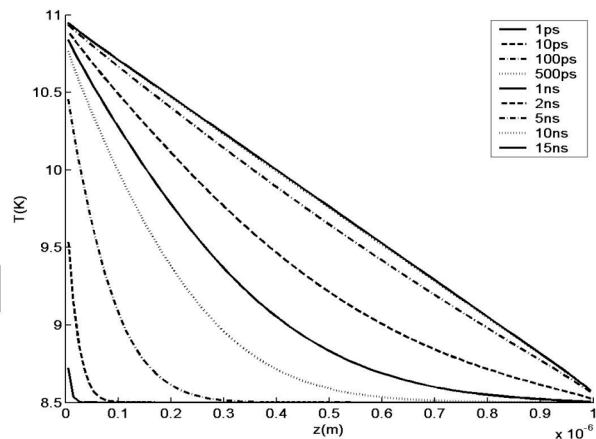


Figure 4 : champs de températures suivant z en régime instationnaire, $L=1\mu m$ et $D=37 nm$.

Pour les dimensions suivantes, $L=1\mu m$ et $D=37 nm$, celle-ci vaut : $k = 0.0076 W.m^{-1}.K^{-1}$. Cette valeur est aussi obtenue, avec ces mêmes longueurs, en régime stationnaire.

Un régime balistique est généralement obtenu pour des faibles températures, ou pour des dimensions typiques inférieures aux libres parcours moyens des phonons. Le phénomène diffus observé ici est du aux collisions des phonons avec les frontières, phénomène décrit précédemment comme dominant à faibles températures. L'absence de frontières suivant r permettrait alors de visualiser ce régime balistique. Cependant un nanofil de rayon infini conduit à un nanofilm et un maillage, constitué d'un nombre infini de nœuds, reste impossible à ce jour. Néanmoins la transformation de la paroi traitée en réflexion diffuse, en paroi de réflexion spéculaire permet de conserver la quantité de mouvement suivant z . Cette modélisation sert alors à représenter un nanofilm.

L'évolution temporelle de la température suivant z ainsi obtenue (fig.5) amène effectivement à un régime balistique pour des faibles températures. Il est par conséquent difficile de parler de conductivité, car le régime de Fourier n'est pas atteint. Ce résultat montre aussi, à travers les « vagues », la propagation des ondes longitudinales, suivie de celles des ondes transversales. Car pour un même vecteur d'onde, la vitesse de la polarisation longitudinale est plus grande que celle des ondes transversales. Ainsi, à un instant donné, l'énergie véhiculée par les ondes longitudinales a parcouru plus de distance que celle véhiculée par les ondes transversales. Cette dernière s'additionnant avec la première à une distance plus courte crée la vague observée.

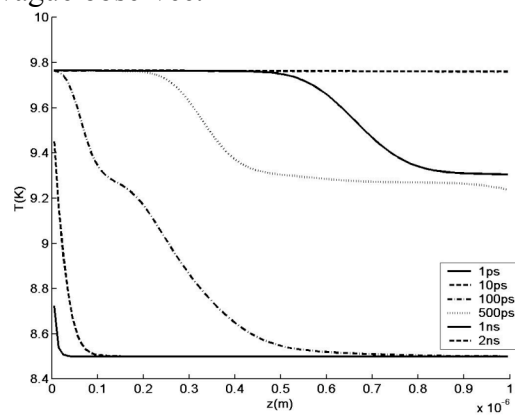


Figure 5 : évolution de la température en régime balistique dans un film de $10\mu\text{m}$ de silicium.

4. Conclusion

Ce travail a permis de simuler le transfert de chaleur, par les phonons, en régime instationnaire à des échelles de temps et d'espaces ultra-courtes. Il a été tenu compte de la dispersion en vitesse des phonons ainsi que de leurs temps de relaxation.

Cette étude a été essentiellement dirigée sur des nanofils de silicium, composants électroniques. Un approfondissement pour des nanofilms semi-conducteurs ainsi que le transfert entre une nanoparticule métallique et un milieu environnant sont à envisager.

Références

- [1] A.Einstein, *Ann. Phys.*, Vol. 17, pp 549 (1905)
- [2] G. Chen, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 86, pp 2297 (2001)
- [3] J. Ziman, *Electrons and Phonons* (Oxford University Press, 1960).
- [4] D.Lemonnier, M.Lallemand, *Heat and Technology*, Vol 18, sup. n.1 pp 63-68 (2000)
- [5] J. Callaway, *Phys. Rev.*, Vol. 113, pp 1046 (1959).
- [6] M. Holland, *Phys. Rev.*, Vol. 132, pp 2461 (1963).
- [7] Y.-J. Han et P.G. Klemens, *Phys. Rev. B*, Vol 48, pp 6033 (1993).
- [8] D.Lacroix, K.Joulain, D.Terris, D.Lemonnier, *App. Phys. Lett.*, Vol 89, pp 103104 (2006)
- [9] D.Li, Y.Wu, P.Kim, P.Yang, A.Majumdar, *Appl. Phys. Lett.*, Vol 83, pp 2934 (2003)
- [10] P.Chantrenne, *J. Appl. Phys.*, Vol 97, 104318 (2005)
- [11] K.D.Lathrop, *J Computational Physics*, Vol.4, pp475-498 (1969)
- [12] W.A.Fiveland, *ASME* 1982; Vol 82-HT-20
- [13] S.Jendoubi, *J. Thermophysics and Heat Transfer*, Vol. 7, no. 2 pp(1993).
- [14] D.Balsara, *J Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, Vol 69 pp 671-707(2001)
- [15] C. Kittel, *Physique de l'état solide*, (Dunod, Paris) 1998.
- [16] S.Volz, D.Lemonnier, JBSaulnier, *Microscale thermophys. eng.*, Vol. 5, no3, pp. 191-207 (2001)
- [17] E.Pop, R.Dutton, K.Goodson, *IEEE, SISPAD*, pp. 121-124, (2003)
- [18] D.Lacroix, K. Joulain et D. Lemonnier, *Phys. Rev. B*, Vol 72, pp064305 (2005).