

cristallines, par le biais du calcul du libre parcours moyen des phonons ou de leur temps de relaxation intercollisionnel, sont dus à Callaway, Klemens et Holland [3-5]. Ils permettent notamment d'écrire la conductivité phonique d'un matériau comme le produit suivant :

$$\lambda = \frac{\rho c}{3} v_g l = \frac{\rho c}{3} v_g^2 \tau \quad (1)$$

où l est le libre parcours moyen des phonons et τ le temps collisionnel associé qui va dépendre des interactions considérées (collision phonon-phonon, phonon-impureté, phonon-structure, ...). Cette représentation, qui est assez précise dans le cas de milieux massifs, sert notamment à établir les constantes structurelles des temps collisionnels. Toutefois, l'emploi de cette technique pour des objets de très petites dimensions est sujette à caution. De plus, à basse température la dépendance de la chaleur spécifique avec T induit des problèmes de non linéarité, dont il faut tenir compte. Enfin, cette approche ne permet pas d'établir les champs de température dans les matériaux, et repose donc sur la résolution de l'équation de la chaleur et de la loi de Fourier dans le formalisme classique.

Le développement des méthodes numériques et des moyens informatiques associés, permet désormais de résoudre directement l'équation de transport des phonons. Deux approches, l'une déterministe, l'autre statistique sont envisageables. Dans le premier cas, il s'agit de réécrire l'équation de Boltzmann sous une forme équivalente à l'équation du transfert radiatif ETRP [6]. On y définit une luminance de phonon et il est possible de résoudre cette ETRP à l'aide de techniques classiques en rayonnement telles que la méthode des ordonnées discrètes ou encore des volumes finis. La seconde approche, que nous avons retenue, implique l'utilisation de nombres aléatoires et de moyennes pour décrire le comportement d'un ensemble statistique de phonons, elle est dite de Monte Carlo. Enfin, d'autres techniques, comme la dynamique moléculaire permettent elles aussi de modéliser le comportement thermique de nanostructures avec une bonne précision, avec cependant d'autres limitations (temps de calculs, ...).

Dans la suite de cet article nous allons brièvement exposer la méthode de Monte Carlo utilisée pour modéliser le transport des phonons. Puis, nous décrirons le cas d'étude retenu (propagation d'un pulse thermique dans une structure). Enfin, les résultats de simulations obtenus seront présentés et discutés.

2. Transport des phonons et modèle thermique

Les détails du modèle brièvement discuté ci-après, ainsi que sa validation ont fait l'objet de publications pour différentes nanostructures [7-8].

2.1. L'équation de transport de Boltzmann (ETB), discrétisation et résolution

Dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation (linéarisation du terme collisionnel de l'ETB), il est possible d'exprimer la densité de phonons, en tout point de coordonnées \mathbf{r} à l'instant t , se déplaçant à la vitesse v_g , sous la forme suivante :

$$\frac{\partial n_{\omega,p}(t, \mathbf{r})}{\partial t} + \mathbf{v}_g \cdot \nabla n_{\omega,p}(t, \mathbf{r}) = \frac{n_{\omega,p}^0(T) - n_{\omega,p}(t, \mathbf{r})}{\tau_{\omega,p}(T)} \quad (2)$$

$n_{\omega,p}^0$ représente la densité de phonon à l'équilibre thermodynamique. Le terme de droite de l'ETB caractérise les interactions collisionnelles sous la forme d'un écart vis-à-vis d'une distribution d'équilibre définie en fonction de la fréquence ω et de la polarisation p des

phonons à une température donnée. Avec ce formalisme, il est assez simple de déterminer la densité d'énergie E d'un ensemble de phonons en fonction de la température :

$$\frac{E}{V} = \sum_p \int_{\omega} \left[\frac{\hbar \omega}{\exp(\hbar \omega / k_B T) - 1} \right] \frac{K^2}{2 \pi^2 v_g} g_p d\omega \quad (3)$$

avec K le vecteur d'onde associé à la fréquence ω pour la polarisation p de l'onde (transverse ou longitudinale). L'identification de cette énergie théorique, à l'énergie transportée par un ensemble statistique de phonons se déplaçant dans une nanostructure discrétisée en espace, permet le calcul de la température au cours du temps en différents points.

Afin de résoudre l'ETB, différentes discrétisations sont nécessaires. En plus des décompositions spatiale et temporelle du domaine de calcul, sur un ensemble de mailles et de pas de temps, il faut discrétiser le domaine des fréquences de vibration pour les deux modes utiles en transfert de chaleur. Cette discrétisation des branches transverse acoustique (TA) et longitudinale acoustique (LA) est faite à partir des relations de dispersion du silicium en supposant le milieu isotrope [9].

La résolution de l'ETB par une méthode statistique requiert une fonction de distribution normalisée $F_{cumul}(\omega_i)$. Celle-ci est établie à partir du nombre théorique de phonons, déduit de l'énergie théorique (3), à une fréquence et une température données [7] en supposant le domaine spectral discrétisé sur $N_{fréquences}$:

$$F_{cumul}(\omega_i) = \frac{\sum_{b=1}^i E(\omega_b) / (\hbar \omega_b)}{\sum_{b=1}^{N_{fréquence}} E(\omega_b) / (\hbar \omega_b)} \quad (4)$$

Ainsi, le tirage d'un nombre aléatoire entre 0 et 1 permet de définir la fréquence ω , puis l'échantillonnage de la polarisation suffit alors à déterminer la vitesse de groupe et le vecteur d'onde associé. On tire au hasard une position et une direction pour ce phonon et on réitère le processus pour les N^{MC} phonons d'une cellule à la température T , jusqu'à satisfaire le critère d'énergie locale :

$$E^{MC} = \sum_{c=1}^{N_{Cellules}} \sum_{n=1}^{N_{MC}} W \times \hbar \omega_{n,c} \quad (5)$$

avec W un facteur de pondération permettant d'échantillonner un nombre raisonnable de phonons. Ces phonons sont ensuite libres de se déplacer et de collisionner. Le calcul de E^{MC} après chaque pas de temps et sa comparaison à la valeur théorique (3) permettent de remonter, après inversion, à la température des différentes cellules du milieu.

2.2. Pulse thermique et analyse de Laplace

Dans le cadre des études antérieures réalisées sur le transport de la chaleur dans des nanostructures, la détermination de propriétés thermiques était réalisée en régime stationnaire. Cependant, le modèle développé décrit également l'évolution transitoire du transfert thermique. Donc, nous nous sommes appuyés sur cette capacité pour essayer d'estimer les propriétés thermiques telles que la conductivité ou la chaleur spécifique. Cette étude repose sur le formalisme de Laplace pour l'estimation des paramètres. Le milieu que nous considérons s'apparente à un film mince, d'épaisseur L , qui est chauffé en face avant pendant un temps $t = \varepsilon$. Ensuite, il est supposé isolé sur l'ensemble de ses faces, on fait donc l'hypothèse que les phonons sont réfléchis spéculairement aux frontières (figure 1). Dans le modèle de Monte Carlo, cette condition initiale s'apparente à la mise en contact du milieu avec un thermostat à la température chaude T_c pendant ε , période durant laquelle les phonons issus de la source chaude se propagent dans le sens de $z > 0$. À l'instant initial l'ensemble du film mince

est à la température uniforme froide T_f . La transformation de Laplace du système d'équations (6) est directe, les opérations usuelles relative à cette technique pourront être obtenue dans l'ouvrage [10]. Q est la densité d'énergie entrant dans le milieu durant le contact avec la source chaude. $F(p)$ est la transformée de Laplace du pulse, on a :

$$F(p) = \frac{1}{p\varepsilon} \times [1 - \exp(-p\varepsilon)] \quad (6)$$

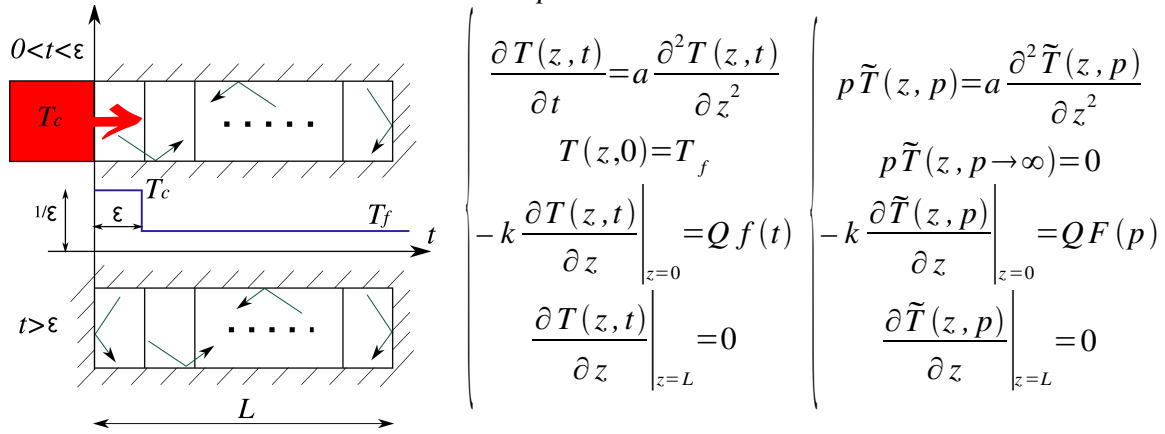


Figure 1 : Description du modèle. Système (7) : Équation et de la chaleur, condition initiale et Conditions aux limites pour les phonons et représentation du pulse avant et après transformation de Laplace.

La solution dans l'espace de Laplace est une fonction des sinus et cosinus hyperboliques, elle ne s'inverse pas simplement. Dans ces conditions, il est plus simple d'observer les comportements asymptotiques aux temps longs et courts pour obtenir des solutions simplement identifiables.

2.5. Solutions asymptotiques

2.5.1. Solution aux temps longs

Aux temps longs ($t \rightarrow \infty$ ou $p \rightarrow 0$), le système étant isolé, la température doit être uniforme dans le milieu. En outre, celle-ci ne dépend alors que de l'énergie injectée durant le pulse ($Q \times S$). L'inversion de la solution de Laplace obtenue par résolution du système (7) donne l'évolution de la température en tout point du milieu :

$$T(z, \infty) = \frac{Q}{\rho c L} + T_f \quad (8)$$

Cette expression, qui ne dépend plus de la conductivité thermique, permet néanmoins d'estimer, comme nous le verrons plus loin, la chaleur spécifique c de la nanostructure à partir de l'élévation de température observée.

2.5.1. Solution aux temps courts

Aux temps courts ($t \rightarrow 0$ ou $p \rightarrow \infty$), l'inversion de la solution de Laplace permet le calcul de grandeurs relatives à la diffusion thermique au sein du matériau. Toutefois, il est nécessaire de prendre certaines précautions quant à l'utilisation des thermogrammes. En effet, le calcul de la température sur la face d'entrée des phonons ($z=0$) est simplement accessible pour $t \rightarrow 0$. Cependant, cette grandeur n'a pas réellement de signification physique dans la mesure où le transport des phonons peut être balistique (surtout à basse température) et donc s'éloigner des conditions de diffusion. C'est pourquoi le problème a été reformulé en supposant le milieu semi-infini, hypothèse réaliste tant que les phonons les plus rapides n'auront pas parcouru

deux fois la longueur L de l'échantillon (distance aller-retour après réflexion sur la face opposée). Dans ces conditions, la solution recherchée fait apparaître une montée, puis une descente de la température dans le milieu consécutivement à la génération du pulse. Nous nous intéressons à la décroissance de T qui s'écrit après inversion :

$$T(z, t') = T_{max} - \frac{Q}{k\varepsilon} \left(2\sqrt{\frac{at'}{\pi}} + \frac{z^2}{\sqrt{\pi at'}} - z \right) \quad (9)$$

avec $t'=t-\varepsilon$ et T_{max} , la température maximale atteinte dans l'échantillon après qu'il ait subi l'impulsion thermique. Cette solution combinée à l'utilisation des thermogrammes obtenus par le code de Monte Carlo a permis le calcul de la conductivité thermique k .

3. Résultats

Un échantillon de silicium d'épaisseur $L = 1 \mu\text{m}$, a été utilisé pour cette modélisation. La discrétisation spatiale est réalisée sur 40 cellules de taille identique ($\Delta x = \Delta y = 4 \times \Delta z = 100\text{nm}$) avec un pas de temps $\Delta t = 0,2 \text{ ps}$. Chaque simulation est réalisée 10 fois de manière à minimiser les écarts statistiques. La durée du pulse est $\varepsilon = 2 \text{ ps}$, le gradient de température $\Delta T_{cf} = 20^\circ\text{C}$. La densité d'énergie Q entrant dans le matériau est directement extraite du modèle numérique par sommation de l'énergie des phonons franchissant la frontière $z = 0$ durant ε .

3.1. Calculs à basses températures

La majorité des calculs a été réalisée aux basses températures. Dans ce cas, les phonons collisionnent peu et on observe distinctement la propagation des ondes acoustiques transverses et longitudinales (figure 2). L'évolution de T en 3 points du domaine ($z=\Delta z/2$, $z=Lz/2$, $z=Lz-\Delta z/2$) montre d'une part qu'il y a succession de 2 maxima de température dans les premiers instants (en $z=Lz/2$, $z=Lz-\Delta z/2$) correspondant au passage des phonons LA puis TA, et d'autre part que la première cellule ($z=\Delta z/2$) dont la température décroît après la fin du pulse voit sa température augmenter à mesure que les phonons réfléchis sur la face opposée de l'échantillon sont de retour. Aux temps longs, la température dans le film devient homogène. Par ailleurs, dans ces conditions de basse températures la chaleur spécifique c (calculée avec la relation (6) à partir de l'accroissement de température mesuré : ΔT stationnaire-initial) évolue proportionnellement à T^3 , conformément à la théorie. En outre, dans le cas du silicium nous avons pu vérifier que les prédictions numériques étaient conformes aux valeurs expérimentales de Flubacher et al. [11].

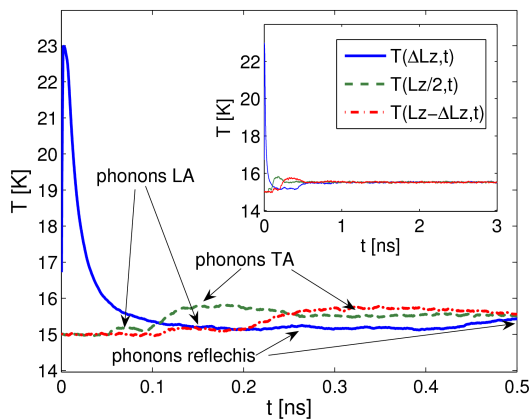


Figure 2 : Profils de température en 3 points du film ($z=\Delta z/2$, $z=Lz/2$, $z=Lz-\Delta z/2$).

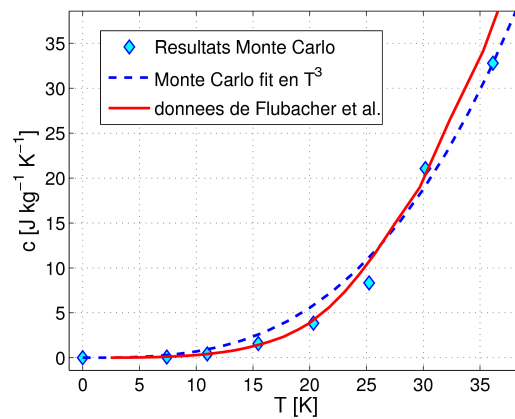


Figure 3 : Évolution de la chaleur spécifique du silicium à basse température, comparaison avec les valeurs expérimentales [11].

3.2. Calcul à température ambiante

Le même type de simulation a été réalisé sur un échantillon initialement à 300 K. Dans ce cas, le libre parcours moyen des phonons est beaucoup plus petit et on ne distingue plus les ondes LA et TA (figure 4). En revanche, on note que le régime diffusif ne s'établit pas directement. Il y a 3 étapes, en premier lieu le chauffage ($\Delta t = \varepsilon$) puis une décroissance rapide de T dans la 1^{ère} cellule (liée aux phonons balistiques) et enfin l'amorce du régime diffusif. C'est à partir de ce moment que peut être ajusté le thermogramme pour en déduire la valeur de la conductivité thermique. Dans le cas présent, en utilisant le terme en $AT^{1/2}$, on obtient pour $300 < T < 350$ K, une conductivité $123,7 < k < 133,6$ W.m.K⁻¹, conforme avec le résultat expérimental ($119 < k_{exp} < 148$ W.m.K⁻¹).

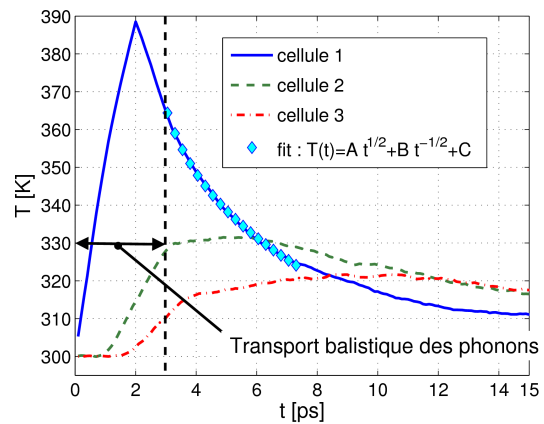


Figure 4 : Évolution du profil de température dans les 3 premières cellules du film.

4. Conclusion

La méthode numérique et les résultats présentés dans cette étude constituent un travail préliminaire qui est en cours de perfectionnement. Nous avons montré que l'analyse instationnaire du profil thermique de nanostructures pouvait servir d'outil pour la mesure de propriétés. Actuellement, nous portons nos efforts sur l'amélioration de la méthode notamment en ce qui concerne sa sensibilité. À terme, cette modélisation pourra faire l'objet de comparaisons avec des dispositifs expérimentaux de type pompe-sonde, utilisant des impulsions ultracourtes obtenues à l'aide de lasers femtosecondes.

Références

- [1] D. Cahill et al., Nanoscale heat transport, *J. Appl. Phys.*, **93** (2003), 793-818.
- [2] A. Dowling, Nanosciences and nanotechnologies: opportunities and uncertainties, <http://www.nanotec.org.uk/index.html>, (2004).
- [3] J. Callaway, Model for lattice thermal conductivity at low temperature, *Phys Rev.*, **113** (1959), 1046-1051.
- [4] P. Klemens, Solid state physics, , Vol. 7, *Academic Press Inc. New York* (1958).
- [5] M. Holland, Analysis of lattice thermal conductivity, *Phys Rev.*, **132** (1963), 2461-2471.
- [6] A. Majumdar, Microscale heat conduction in dielectric thin films, *J. Heat Transf.*, **115** (1993), 7-16.
- [7] D. Lacroix et al., Monte Carlo transient phonon transport in silicon and germanium at nanoscales, *Phys. Rev. B*, **72** (2005), 064305.
- [8] D. Lacroix et al., Monte Carlo simulation of phonon confinement in silicon nanostructures: Application to the determination of the thermal conductivity of silicon nanowires, *Appl. Phys. Lett.* **89** (2006), 103104.
- [9] E. Pop, Analytic band Monte Carlo model for electron transport in Si including acoustic and optical phonon dispersion, *J. Appl. Phys.*, **96** (2004), 4998-5005.
- [10] D. Mailet et al., Thermal quadrupoles, John Wiley & Sons, (2000).
- [11] P. Flubacher et al., The heat capacity of pure silicon and germanium and properties of their vibrational frequency spectra, *Phil. Mag.*, **4** (1959), 273-294.