

# Simulation par méthode Monte Carlo du transport des phonons aux interfaces entre semi-conducteurs dans les matériaux nanostructurés

Valentin Jean <sup>a</sup>, Sébastien Fumeron <sup>a</sup>, David Lacroix <sup>a</sup>

a : LEMTA, Université de Lorraine, CNRS UMR 7563  
Faculté des sciences et Techniques, B.P. 70239 - 54504 Vandœuvre-lès-Nancy Cedex - France  
valentin.jean@univ-lorraine.fr

ancien résumé

**Résumé** - De nombreuses recherches sont menées afin de trouver des matériaux qui répondent aux exigences croissantes de l'industrie de la micro-électronique. Nous intéressons en particulier aux nanofilms Si/Ge. Nous résolvons l'Equation de Transfert de Boltzmann (ETB) à l'aide d'une méthode de Monte-Carlo. Dans notre modélisation, nous considérons que les phonons sont émis depuis une surface noire. Contrairement aux études réalisées dans le cadre des modèles traditionnels, nous considérons le passage de l'interface d'une manière globale. Les résultats montrent alors un saut de température à cet endroit qui est la manifestation de la résistance de Kapitza

## 1. Contexte

Les récents travaux concernant les transferts de chaleur dans les matériaux nanostructurés ont fait émerger de nouvelles problématiques dans de nombreux domaines de la physique tels que l'énergétique, la micro-électronique et la science des matériaux. Pouvoir contrôler le déplacement des porteurs de chaleur dans les matériaux aux très petites échelles ouvre la voie à la conception de milieux aux propriétés nouvelles. La physique expliquant le mécanisme de conduction de la chaleur (phonons dans les semi-conducteurs et électrons dans les métaux) est connue depuis plus d'un demi siècle pour les matériaux massifs [1], [2]. Depuis, des études ont été menées sur l'influence du couplage électron-phonon [3] ainsi que les problèmes de diffusion aux interfaces entre semi-conducteurs et entre semi-conducteurs et métaux. Ce sont néanmoins des problématiques encore ouvertes. Le phénomène de résistance thermique aux interfaces est particulièrement intéressant pour la création de super-réseaux (empilement de couches nanométriques de différents matériaux) dans lesquels il serait possible de contrôler à la fois les phénomènes de transport électrique et thermique.

Expérimentalement, des études ont déjà montré une chute de la conductivité thermique aux interfaces de nanostructures telles que Si/Ge, Si/SiC, GaAs/InSb. Ces matériaux prometteurs seront utiles pour différentes applications, notamment en thermoélectricité et dans les composants électroniques en constante miniaturisation. Toutefois, le "management thermique" de tels objets est une question cruciale, en particulier pour assurer leur fiabilité. Les principaux outils numériques à disposition pour mener ces études sont les méthodes basées sur la résolution soit

de l'équation de Boltzmann (éléments finis, volumes finis, Monte Carlo) pour les phonons, soit des équations de Newton pour les atomes (dynamique moléculaire).

Dans ce travail, nous présentons une nouvelle façon d'implémenter numériquement les problèmes de transmissions d'énergie à une interface entre deux semi-conducteurs. Cette méthode se différencie des méthodes traditionnelles en s'affranchissant de l'hypothèse d'harmonicité des mécanismes de transport.

## 2. Théorie

### 2.1. Physique dans les massifs

Les mécanismes de transferts thermique dans les matériaux sont variés. Dans les semi-conducteurs et les isolants, les phonons sont les principaux porteurs de chaleur. Les phonons correspondent aux modes propres de vibrations des atomes de la structure cristalline. Ces vibrations sont caractérisées par deux polarisations : transverse ou longitudinale. Selon que les vibrations sont en phase ou non, on distingue également des modes dits acoustiques (vibrations en phase) et des modes optiques (vibrations en opposition de phase). En outre, les phonons sont décrits par leur fréquence  $\nu$  (ou pulsation  $\omega = 2\pi\nu$ ) et leur vecteur d'onde  $\mathbf{K}$ . Les relations entre ces deux grandeurs, appelées courbes de dispersion permettent de caractériser complètement un phonon donné quand on connaît sa polarisation (figure 1).

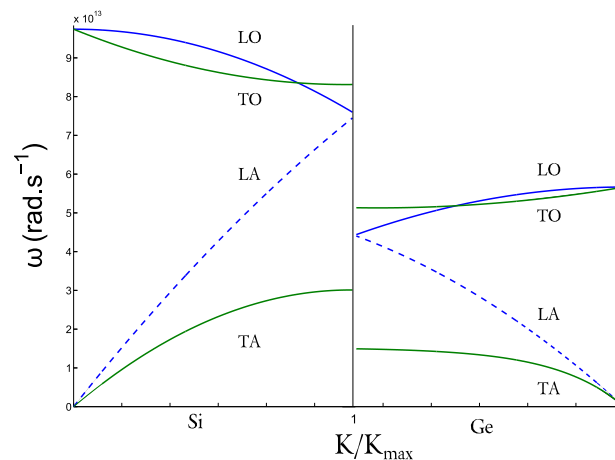


Figure 1 Relations de dispersion du Silicium (gauche) et du Germanium (droite) pour les branches Transverses (T), Longitudinales (L), Acoustique (A) et Optiques (O).

Nous résolvons l'équation de Boltzmann, dans l'approximation des temps de relaxation, qui permet de décrire les déplacements des phonons.

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \nabla_{\mathbf{K}}\omega \cdot \nabla_{\mathbf{r}}f + \mathbf{F} \cdot \nabla_{\mathbf{j}}f = \frac{f^0 - f}{\tau(\omega)} \quad (1)$$

Le terme  $\partial f / \partial t$  représente la variation de la fonction de distribution au cours du temps,  $\nabla_{\mathbf{k}\omega} \cdot \nabla_{\mathbf{r}} f$  traduit le déplacement des phonons dans la structure,  $\mathbf{F} \cdot \nabla_{\mathbf{j}} f$  est la résultante des actions extérieures sur le transport des phonons (négligée dans notre étude).  $\tau(\omega)$  représente le temps moyen avant qu'un phonon ne subisse une collision. La fonction de distribution à l'équilibre est notée  $f^0$ , il s'agit de la distribution de Bose-Einstein.

## 2.2. Interface

Aux échelles micro-nanométriques, les phénomènes qui se produisent à l'interface entre deux matériaux sont mal connus en ce qui concerne le transport de chaleur. Néanmoins, deux modèles font figures de références. Le DMM (diffuse mismatch model) et l'AMM (acoustic mismatch model) [4]. Dans les deux cas, un phonon incident est associé un phonon transmis. La principale différence entre ces modèles vient du fait que dans le DMM, le phonon « perd la mémoire » de ses caractéristiques initiales (direction de propagation, polarisation) avant l'interface alors que dans le second la direction de propagation est donnée par des lois similaires à celles de Descartes pour l'optique géométrique. Afin de conserver l'énergie, la fréquence du phonon incident est égale à celle du phonon transmis. Ces deux approches, et les modèles qui s'en inspirent (référence), permettent de calculer théoriquement des résistances d'interface dont les ordres de grandeur sont proches de ceux mesurés empiriquement dans certaines conditions, par des méthodes de type pompe-sonde. Ces modèles sont « inflexibles » quant à la transmission de phonons de fréquences plus élevées que la fréquence maximum autorisée dans le matériau de destination. Un phonon passe ou ne passe pas. La conservation de l'énergie pose donc implicitement le problème des bandes interdites. La figure 1 le met en évidence. On constate immédiatement que toute les fréquences du silicium ne sont pas accessibles dans le germanium. La théorie prévoit que ce phénomène est responsable d'effets singuliers sur la conductivité thermique - notamment une conductivité plus faible que la plus petite des matériaux considérés.

Les possibilités qui sont offertes pour un traitement numérique du type Monte Carlo (cf. partie 3. où chaque quantum est suivi) sont les suivantes, les phonons qui ont des fréquences trop élevées :

- sont réfléchis de façon spéculaire ou diffuse
- sont détruits
- subissent un processus de décomposition : une partie seulement de l'énergie passe, l'autre étant perdue

L'hypothèse harmonique - conservation du nombre de phonon à l'interface - peut dès lors être contournée. Nous choisissons de considérer qu'un phonon arrivant à une interface peut se décomposer en deux ou plusieurs phonons, c'est-à-dire que nous considérons l'existence de possibles processus anharmoniques. Cette modélisation offre de nouvelles perspectives :

- L'énergie est transmise sous la forme de deux ou plusieurs phonons.
- L'énergie incidente portée par un unique phonon peut être en partie transmise, en partie réfléchi.

Ce traitement à l'interface suppose, d'un point de vue numérique, d'être en mesure de bien échantillonner la population de phonons de part et d'autres. Les détails de l'approche numérique

sont donnés dans la partie suivante.

### 3. Modélisation numérique.

Nous résolvons l'équation de Boltzmann pour les phonons dans les semi-conducteurs massifs et nanostructurés à l'aide d'un code maison développé par D. Lacroix [5]. Ce code a montré qu'il était capable de déterminer la conductivité du silicium et des matériaux similaires du moment que l'on connaît les relations de dispersions et qu'il est possible d'estimer les temps de relaxation des différents processus qui restaurent l'équilibre thermodynamique.

#### 3.1. Géométrie

Dans sa version « matériau massif », un parallélépipède de longueur  $L$  selon l'axe  $z$  et de section  $S$  est soumis à une différence de température  $\Delta T = T_c - T_f$ . L'ensemble est initialement à  $T_f$  et les surfaces en  $z = 0$  et  $z = L$  émettent à chaque pas de temps  $\Delta t$  l'énergie nécessaire pour avoir les températures respectives aux extrémités. Nous nous intéressons davantage au cas

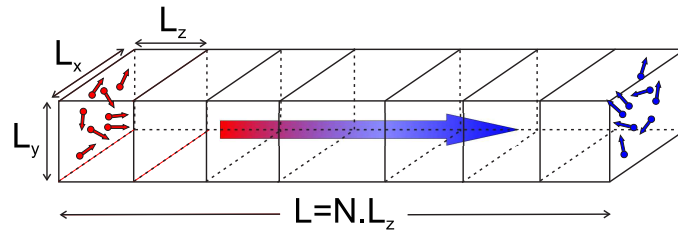


Figure 2 Géométrie modélisée : nanofilm d'épaisseur  $L$  et d'extension infinie selon  $x$  et  $y$ . La position, l'énergie et la vitesse sont tirées aléatoirement en accord avec les relations de dispersion.

d'un nanofilm qu'à celui d'un nanofil. Dans le cas d'un nanofil  $S \ll L$  les réflexions sur les côtés de la nanostructure doivent être traitées de manière diffuse. Pour modéliser un nanofilm  $S \gg L$ , les réflexions sont modélisées de façon spéculaire. Notons que le système est considéré isolé sur les quatre autres faces.

#### 3.2. Initialisation

Le système est initialisé avec une énergie seil, ce qui permet de d'échantillonner moins de phonons. L'énergie correspondant à la température minimale ( $T_f$ ) est implémentée dans chacune des cellules. Cette énergie est calculée à partir de la relation 2.

$$E(T) = \sum_j \int_{\omega} \mathcal{D}_j(\omega) [f^0(\omega, T) - f^0(\omega, T_{ref})] d\omega \quad (2)$$

où  $E$  est l'énergie qui dépend de la température  $T$ . La densité de présence des phonons pour la polarisation  $j$ ,  $\mathcal{D}_j(\omega) = \frac{K_j(\omega)}{2\pi^2 v_{g_j}(\omega)}$  est celle proposée par Kittel [1]. L'échantillonnage des phonons

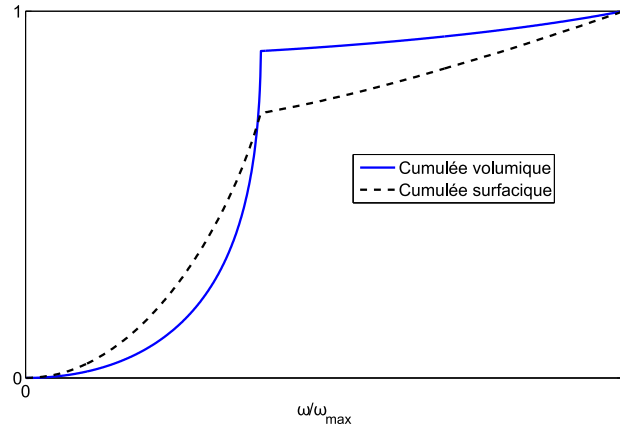


Figure 3 Comparaison entre les cumulées normées volumique et surfacique

dans un volume se fait en tenant compte de la population théorique du matériau massif. De manière numérique, cela revient à tirer un nombre aléatoire entre 0 et 1 et à lui faire correspondre une fréquence. La correspondance est assurée par la fonction dite "cumulée normée",  $F(\omega, T)$  qui correspond au rapport du nombre de phonon volumique à une fréquence sur le nombre de phonons volumique total. Néanmoins, afin de tenir compte du déplacement des phonons (flux des porteurs) il convient de pondérer cette relation par la vitesse de groupe des phonons dépendant de la fréquence (et de la polarisation). Le rapport s'exprime alors à l'aide de la relation suivante :

$$\mathcal{F}(\omega, T) = \frac{\sum_j \int_0^\omega \mathcal{D}_j(\omega) v_{g_j}(\omega) f(\omega, T) d\omega}{\sum_j \int_0^{\omega_{max,j}} \mathcal{D}_j(\omega) v_{g_j}(\omega) f(\omega, T) d\omega} \quad (3)$$

Au premier pas de temps, des phonons sont émis depuis la surface chaude selon la distribution  $\mathcal{F}(\omega, T)$ . La direction de propagation est tirée aléatoirement dans tout le demi-espace avant. Ils se déplacent ensuite à leur vitesse de groupe de la distance  $d = v_g \times \Delta t$  et subissent de collisions en accord avec leur temps de relaxation  $\tau(\omega)$ . La figure 3 révèle l'importance du choix de la cumulée à utiliser pour l'échantillonnage. En effet, les populations qui résultent de ces courbes sont différentes. On favorise l'échantillonnage de phonons rapides, c'est à dire, ceux de basse fréquence. En outre, cette distribution permet également d'échantillonner plus de phonons longitudinaux.

### 3.3. Déplacement et collisions

A chaque pas de temps, des phonons sont émis depuis les surfaces. Les phonons émis contiennent ensuite leur progression et subissent des collisions qui rendent compte des processus de diffusions. Quand un phonon rencontre une frontière et reste dans le même matériau, il est réfléchi

de façon spéculaire. S'il change de matériau, alors son énergie est ajoutée à celle de tous les autres phonons impactant une interface.

### 3.4. Traitement de l'interface

L'énergie arrivant à l'interface de part et d'autre est donc stockée à chaque pas de temps. Il convient de la restituer à l'ensemble du matériau dans son intégralité pour conserver l'énergie. Plusieurs cas peuvent être modélisés.

- Cas 1 : Toute l'énergie allant dans un sens est échantillonnée dans le matériau suivant.
- Cas 2 : Une partie seulement de l'énergie continue sa progression, l'autre est réfléchi.
- Cas 3 : Une partie de l'énergie incidente totale est émise dans un demi-espace, la complémentaire, dans l'autre.

Ces trois possibilités sont représentées sur la figure 4 Avec cette approche, les directions d'émissions

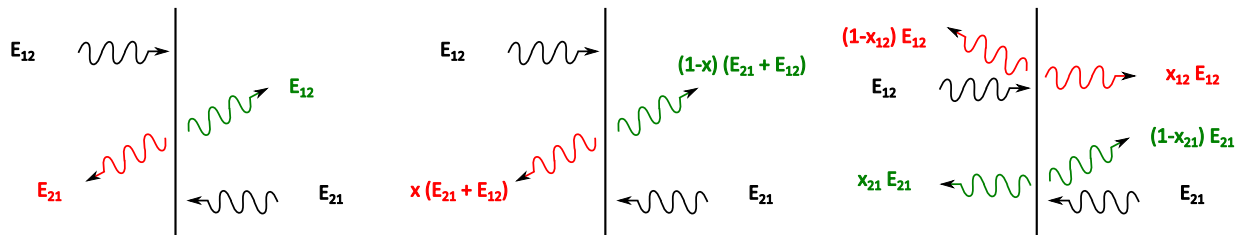


Figure 4 Représentation graphique des possibilités permettant de conserver l'énergie à une interface en autorisant des processus anharmoniques. De gauche à droite, cas 1 à 3

ne peuvent plus être déterminées à partir des directions de départs étant donné que l'on perd l'information sur le nombre de phonons incidents. Ils sont alors émis selon les propriétés du matériau de destination de la même façon qu'est réalisé l'échantillonnage aux surfaces frontières. Ceci permet en outre de modéliser des processus à plusieurs phonons. En effet, il est possible d'avoir des configurations où le nombre de phonons émis dépasse celui incident, et vice-versa. L'étape suivante consiste à trouver les bonnes valeurs des coefficients de transmission.

### 3.5. Coefficient de transmission

Dans le cadre du DMM, le coefficient de transmission dépend de la fréquence et est définie à partir des rapports des densités d'états des phonons de part et d'autres de l'interface, pondérés par les vitesses de groupes. Les trois approches que nous envisageons permettent à la fois de respecter la conservation de l'énergie et d'augmenter le niveau du caractère « diffus » de la modélisation. Les coefficients de transferts seront donc systématiquement indépendants de la fréquence. Ils seront, en revanche, potentiellement dépendant de la température. Les résultats présentés dans la partie suivante ont été obtenus avec les hypothèses décrites pour le cas 3. Le coefficient de transfert du germanium vers le silicium  $x_{Ge \rightarrow Si} = 1$  et  $x_{Si \rightarrow Ge} = 0,67$ . Ce dernier coefficient correspond au rapport de l'énergie volumique du silicium sur celle du germanium à

300K.

#### 4. Résultats de simulation

Nous nous plaçons dans le cas suivant. Nous modélisons un nanofilm de 2 micron d'épaisseur : Ge(1 $\mu$ m)/Si(1 $\mu$ m). soumis à un différence de température de 4 K, de sorte que la face chaude (Ge) soit à 302 K. Le pas de temps  $\Delta t$  vaut 1 picoseconde, ce qui permet que tous les phonons ne collisionnent entre chaque pas de temps. La figure 5 montre les profils de température et de flux dans le matériau une fois le régime permanent atteint.

La conductivité calculée à partir de notre code pour un nanofilm d'un micron vaut 150 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> et 45 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> pour le silicium et le germanium respectivement. Les valeurs obtenues pour les films de Si et Ge, sont proches des valeur théoriques pour les matériaux massifs (respectivement 148 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> et 60 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>). Néanmoins, à ces échelles, des mesures ont montré que la conductivité a tendance à être plus faible pour lorsqu'on diminue les dimensions des objets. Ainsi, la conductivité du germanium calculée est de l'ordre de grandeur souhaitée. Concernant les assemblages Si/Ge, la conductivité équivalente théorique pour un nanofilm de Si/Ge est alors  $\lambda_{eq} = 2 \frac{\lambda_{Si}\lambda_{Ge}}{\lambda_{Si}+\lambda_{Ge}} = 89 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . La conductivité du nanofilm modélisé varie de 112 à 124 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>. Ici encore, il faut chercher à affiner le modèle de transmission à l'interface. Actuellement nous travaillons sur des bilans de flux de phonons, cette voie semble prometteuse. On

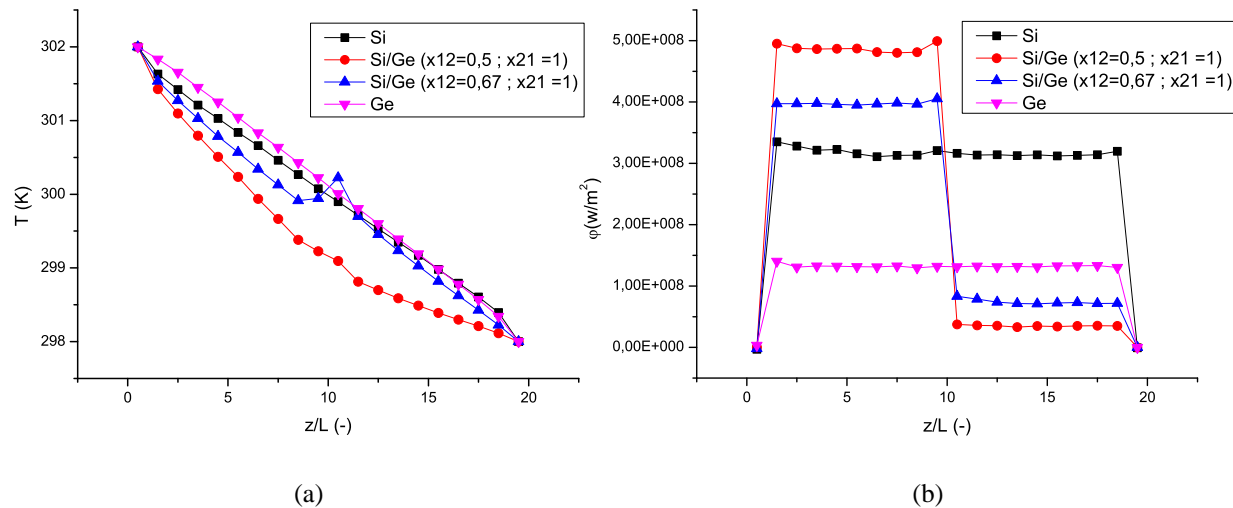


Figure 5 Profil de température (gauche) et de flux (droite) pour un nanofilm de 2 $\mu$ m. La position de l'interface est  $Z/L=10$ .

voit, en outre, le saut de température quand on passe d'un matériau à un autre. Ce saut traduit la résistance thermique d'interface. La discontinuité du flux s'explique par les choix fait concernant

les coefficients de transmission. Le saut de température entre la première et la deuxième cellule est un effet balistique inhérent à la méthode d'échantillonnage. Ce phénomène est fréquent dans les codes de rayonnement thermique.

## 5. Conclusion

Nous avons vu qu'il était possible par une méthode de Monte Carlo de modéliser une interface entre deux nanofilms de semiconducteurs. Les conductivités calculées sont dans la plage de valeurs attendues. Un travail plus approfondi sur les temps de relaxation peut néanmoins ajuster les résultats. On peut cependant constater que la conductivité du matériau Ge/Si modélisé est proche de celle qu'on s'attend à trouver en théorie. La prochaine étape de notre modélisation consistera à modéliser des interfaces successives de ces deux matériaux afin de modéliser un super-réseau. Ceci nécessitera alors une modélisation plus fine de la diffusion des phonons à l'intérieur des matériaux, notamment pour prendre en compte les effets de confinement, ainsi qu'une détermination plus poussée des coefficients de transferts.

## Références

- [1] C. Kittel. Introduction to solid state physics, *John Wiley and sons*, 2004, 8
- [2] N.W. Ashcroft and N.D. Mermin, *Solid state physics*, Saunders College, 1976
- [3] A. Majumdra and P. Reddy, Role of electron-phonon coupling in thermal conductance of metal-nonmetal interfaces. *Applied Physics Letters*, Vol 84, p 4768, 2004
- [4] E.T. Swartz and R.O. Pohl. *Rev. Mod. Phys.*, 61(3) :605-668, 1989
- [5] D. Lacroix and K. Joulain and D. Lemonnier. Role of Phonon Monte Carlo transient phonon transport in silicon and germanium at nanoscales. *Physical Review B.*, Vol. 72, 064305, 2005.