

## ÉVALUATION DES POTENTIELS INTERATOMIQUES

Le choix du potentiel interatomique dépend du type de la structure atomique et des propriétés à étudier (structurales, thermiques ...) [47]. L'abondance de potentiels montre la difficulté de choisir une orientation théorique spécifique pour les simulations de DM. Dans ce Chapitre, les potentiels interatomiques seront évalués pour les simulations du transfert de chaleur. De cette manière les potentiels qui donnent la meilleure description pour simuler le transfert de chaleur seront choisis pour ensuite créer les potentiel croisés (Chapitre 3) pour les systèmes Si/métal. Tout d'abord, quelques revues de potentiel présentées dans la littérature seront commentées pour le Si et ensuite pour les métaux. Puis, la justification de cette évaluation sera présentée et les critères d'évaluation seront explicités. Les résultats et conclusions de cette évaluation seront exposés pour le Si et les métaux séparément. Les résultats seront organisés de cette manière pour éviter une confusion entre les différents potentiels interatomiques et matériaux utilisés dans cet étude.

Pour le Si, trois des cinq potentiels étudiés sont sélectionnés afin de prédire la conductivité thermique du silicium massif dans la section 2.5, en utilisant la Dynamique Moléculaire Hors d'Équilibre (DMNE) afin de valider la procédure d'évaluation des potentiels.

### 2.1 Revues d'évaluation des potentiels

On trouve dans la littérature des publications sur l'évaluation de potentiels interatomiques pour le Si et les métaux. Elles seront présentées dans cette section. Puis, la méthodologie d'évaluation est présentée et les critères d'évaluation sont explicités.

#### 2.1.1 Revues d'évaluation des potentiels interatomiques pour le Si

Quelques revues sur l'évaluation des potentiels pour le Si ont déjà été publiées [28, 48–51].

Cook et Clancy [49] ont fait une comparaison des potentiels interatomiques pour le silicium et le germanium en utilisant une modification du potentiel Tersoff [52] pour les systèmes à multiples composants de silicium et le potentiel 1NN MEAM de Baskes *et al.* [40] afin d'étudier le comportement des phases cristallines et liquides du silicium et du germanium. Ils ont étudié le point de fusion et les propriétés d'équilibre. Pour le potentiel de Tersoff modifié le point de fusion est surestimé tandis que le potentiel 1NN MEAM de Baskes le sous-estime. Le potentiel de 1NN MEAM de Baskes ne reproduit pas bien la phase amorphe du silicium, alors que Tersoff décrit une phase amorphe.

Lee [28] a développé un nouveau potentiel semi-empirique basé sur le 1NN MEAM de Baskes, le 2NN MEAM de Lee. Il a comparé les propriétés élastiques, structurales, les défauts ponctuels, les propriétés de surface et thermiques (point de fusion, volume et enthalpie ; le nombre de coordination du silicium amorphe et cristallin) décrites avec les potentiels SW, Tersoff III, 1NN MEAM, EDIP [26] et HOEP [27]. Le potentiel 2NN MEAM donne des résultats satisfaisants pour ces propriétés excepté le point de fusion et de relaxation de surface. Des descriptions de dilatation thermique linéaire et de la structure amorphe ont été améliorées pour le Si.

Balamane *et al.* [50] a comparé les potentiels de Pearson, Takai, Halicioglu, et Tiller (PTHT) [29], Bismas et Hamann [30] (BH), Tersoff II, Tersoff III et Dodson [31] (DOD) pour déterminer les défauts ponctuels dans le Si massif, les constantes élastiques, les polytypes, les transformations de phase induites par pression, et les surfaces. Les modèles sont généralement pauvres pour décrire les énergies des agrégats aussi bien que les diverses reconstructions de surface du

Si(111). Néanmoins ils fournissent une bonne description des propriétés du silicium massif, de ses défauts intrinsèques et de la surface du Si(100).

Schelling *et al.* [51] ont comparé les méthodes de DM d'équilibre et de non-équilibre pour calculer la conductivité thermique du silicium en utilisant le potentiel de SW (voir la section 2.5 pour une description de ces méthodes). Ils ont prouvé que les résultats obtenus sont compatibles les uns avec les autres et raisonnablement comparables aux résultats expérimentaux.

Broido *et al.* [53] ont utilisé la solution itérative exacte de l'équation de Boltzmann inélastique pour les phonons afin de comparer les valeurs de conductivité thermique en utilisant les potentiels de SW et Tersoff III. Les conductivités thermiques sont fortement surestimées quand la température est comprise entre 100 et 300 K. Ils ont utilisé des critères harmoniques et anharmoniques pour expliquer les valeurs discordantes et ils ont montré qu'aucun de ces potentiels n'est satisfaisant et ne peut être utilisés pour les simulations de transfert de chaleur.

### 2.1.2 Revues d'évaluation de potentiels interatomiques pour les métaux

Seulement une étude pertinente a été rapportée pour les métaux. Lee [42] a développé le potentiel 2NN MEAM de Lee *et al.*, et il a comparé les propriétés élastiques, structurales, des défauts ponctuels interstitiels et de substitution, de surface, thermiques (point de fusion, chaleur spécifique, dilatation thermique linéaire) avec les résultats expérimentaux. Le potentiel 2NN MEAM de Lee *et al.* donne des résultats satisfaisants pour les propriétés comparées. De plus, il améliore la description de la reconstruction de surface et l'instabilité structurelle existant dans le potentiel 1NN MEAM de Baskes.

### 2.1.3 Critères pour l'évaluation des potentiels

Les études précédentes se focalisent sur une comparaison des propriétés structurales. Aucune comparaison des potentiels pour le calcul du transfert de chaleur par DM n'a été rapportée. Notre comparaison des potentiels est basée sur les propriétés harmoniques et anharmoniques des matériaux pour le Si, l'Au, l'Ag et le Cu. Ce sont les mêmes critères que Broido *et al.* ont utilisé pour l'analyse de la conductivité thermique du Si en utilisant la solution itérative exacte de l'équation de Boltzmann et les potentiels SW et Tersoff.

Le transport d'électrons prédomine dans l'analyse du transfert de chaleur dans les métaux, mais il n'est pas possible de simuler le mouvement des électrons dans les simulations de DM. Comme il n'est pas possible de tester la qualité des interactions électroniques, seules les propriétés du réseau sont commentées afin de déterminer la qualité des potentiels pour les simulations de l'Au, l'Ag et le Cu.

Les propriétés structurelles de base (énergie de cohésion, le paramètre de maille et la constante élastique) sont évaluées. Dans les matériaux diélectriques, le transfert de chaleur dépend de la propagation des phonons et de leurs interactions. Il est donc essentiel d'analyser les courbes de dispersion pour choisir le meilleur potentiel afin de simuler la conductivité thermique. Les interactions phonon-phonon dans le réseau cristallin sont également dues à l'anharmonicité des interactions atomiques. La qualité du potentiel interatomique pour la simulation de transfert de chaleur peut donc aussi être évaluée au travers du coefficient de dilatation thermique linéaire.

## 2.2 Méthodologie

La méthodologie utilisée pour obtenir les différents critères d'évaluation définis dans la section 2.1.3 est la même pour le Si et les métaux. Elle est présentée pour l'énergie cohésive, le paramètre de maille et la constante élastique. Ensuite seront présentées les méthodologies pour la dilatation thermique linéaire et les courbes de dispersion.

### 2.2.1 Méthodologie pour obtenir l'énergie cohésive, le paramètre de maille et la constante élastique

L'énergie cohésive, le paramètre de maille et la constante élastique pour le Si, l'Au, l'Ag et le Cu sont déterminées à 0 K. Pour le Si une structure avec 216 atomes est simulée tandis que pour les métaux la structure contient 108 atomes. Le nombre d'atomes correspond à 3 paramètres de maille dans les trois directions. Les conditions aux limites périodiques sont appliquées dans les 3 directions et l'énergie atomique est calculée en fonction du paramètre de maille. Le paramètre de maille à 0 K est la valeur obtenue lorsque l'énergie par atome est minimale, et la valeur de l'énergie correspondante est l'énergie cohésive.

L'énergie par atome,  $E(V)$ , en fonction du paramètre de maille est utilisée pour déterminer la constante élastique du matériau [54],  $B$  :

$$B(V) = V_0 \frac{\partial^2 E}{\partial V^2}, \quad (2.1)$$

où  $V_0$  est le volume atomique lors du minimum de l'énergie potentielle.

### 2.2.2 Méthodologie utilisée pour obtenir la dilatation thermique linéaire

Une structure en diamant de silicium avec 216 atomes et une structure cfc pour les métaux avec 108 atomes sont utilisées avec les conditions limites périodiques dans toutes les directions. La dilatation thermique linéaire du système en fonction de la température est calculée en utilisant la stratégie de simulation suivante : la température est augmentée de 50 K à 1500 K pour le silicium et à 1200 K pour les métaux tous les 20 ps. Pour chaque température, le système est maintenu à pression constante et le volume moyen occupé par le système est calculé après la relaxation du système. Le volume occupé par le système équilibré est calculé et divisé par le volume à 0 K. Ce rapport est directement proportionnel au coefficient de dilatation.

### 2.2.3 Méthodologie utilisée pour obtenir les courbes de dispersion

La relation de dispersion est calculée à partir de la fonction d'auto-corrélation de la vitesse comme décrite par Papanicolaou [55]. Pour un vecteur d'onde donné,  $k$ , la transformée de Fourier dans l'espace réciproque de la composante de vitesse de chaque particule dans la direction de polarisation considérée,  $v_k^p(t)$ , est calculée :

$$v_k^p(t) = \sum_i v_i^p(t) \exp(-iK \cdot r_i(t)). \quad (2.2)$$

La fonction d'autocorrélation de cette transformée de Fourier est ensuite calculée :

$$A^p(k, t) = \frac{\langle v_k^p(0) v_k^p(t) \rangle}{\langle v_k^p(0) v_k^p(0) \rangle}, \quad (2.3)$$

La transformée de Fourier temporelle de cette fonction d'autocorrélation,  $A^p(k, t)$ , fait apparaître un pic à la fréquence du vecteur d'onde et de la polarisation choisie. Ce calcul est répété pour les différentes directions de vecteurs d'ondes correspondant aux directions de symétrie classiques  $\Gamma K$ ,  $\Gamma X$ ,  $\Gamma L$  en faisant varier la norme du vecteur d'onde entre 0 et  $k_{max}$ .

Pour déterminer les courbes de dispersion pour les matériaux massifs, les conditions périodiques sont employées dans toutes les directions. La taille du système dans les trois directions est de 10 paramètres de maille pour chaque matériau. La température ambiante a été choisie pour tous les potentiels interatomiques. Au début, le système a été équilibré pendant 200 000

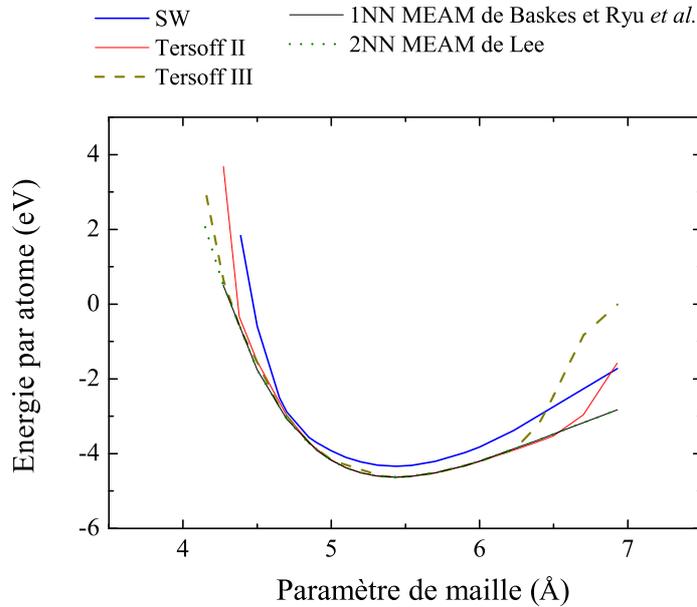


Figure 2.1 – Energie potentiel par atome de Si en fonction du paramètre de maille.

pas de temps. Ensuite, les vitesses instantanées des atomes sont sauvegardées pendant une durée de 100 000 pas de temps et une simulation NVE. Le pas de temps est égal à 3 fs.

Les modes de vibrations optiques ont une vitesse de propagation beaucoup plus faible que les modes acoustiques pour le Si, et à basse température leur énergie est inférieure à celle des phonons acoustiques. Leur contribution à la conductivité thermique est négligeable comparé aux modes acoustiques [56]. Ainsi, l'évaluation du potentiel ne considère pas la qualité des modes optiques. Toutefois, il est connu que la diffusion des modes acoustiques par des modes optiques est importante pour reproduire les temps de relaxation phonon-phonon [57]. Donc, même si la qualité des modes optiques n'a presque aucune influence sur les simulations de transfert de chaleur, ils sont importants pour le processus de diffusion de modes acoustiques qui doivent être correctement reproduits. Ce critère est lié à l'anharmonicité du potentiel, évalué au travers du coefficient de dilatation thermique.

### 2.3 Résultats pour le Si

L'énergie par atome en fonction du paramètre de maille est montrée sur la Fig. 2.1 calculé avec différents potentiels.

En utilisant ces valeurs, le paramètre de maille,  $R_i^0$ , l'énergie cohésive,  $E_i^0$ , et la constante élastique,  $B$ , à 0 K sont déterminées (Table 2.I).

Pour toutes ces propriétés basiques, les potentiels font une bonne description pour le silicium, sauf le potentiel SW qui sous-estime l'énergie cohésive.

La dilatation thermique linéaire est présentée sur la Fig. 2.2 pour les différents potentiels évalués.

Les potentiels 1NN MEAM de Baskes et Ryu *et al.* surestiment grandement l'expansion thermique linéaire. Au contraire, le potentiel Tersoff II sous-estime fortement la dilatation thermique linéaire [49] et il donne une dilatation thermique linéaire négative entre 300 et 500 K. Le potentiel SW donne les résultats les plus proches de résultats expérimentaux, suivi du potentiel 2NN MEAM et du potentiel Tersoff III.

Sur les Figs. 2.3, 2.4 et 2.5 les courbes de dispersion dans les directions  $\Gamma K$ ,  $\Gamma X$  et  $\Gamma L$  sont comparées aux courbes de dispersion expérimentales. Le potentiel SW tout comme le potentiel

Tableau 2.I –  $E_i^0$ ,  $R_i^0$  et  $B$  obtenus pour le Si en utilisant les potentiels SW, Tersoff II, Tersoff III, 1NN MEAM de Baskes, 1NN MEAM de Ryu et 2NN MEAM de Lee. Les valeurs expérimentales  $R_i^0$  (Å) et  $E_i^0$  (eV) provenant de Kittel [58], et la constante élastique  $B$ (GPa) provenant de McSkimin et Andreatch [59].

	$E_i^0$	$R_i^0$	$B$
SW	-4,33	5,431	102
Tersoff II	-4,63	5,431	97
Tersoff III	-4,63	5,431	96
1NN MEAM de Baskes	-4,63	5,431	96
1NN MEAM de Ryu <i>et al.</i>	-4,63	5,431	97
2NN MEAM de Lee	-4,63	5,431	98
Exp.	-4,63	5,431	98

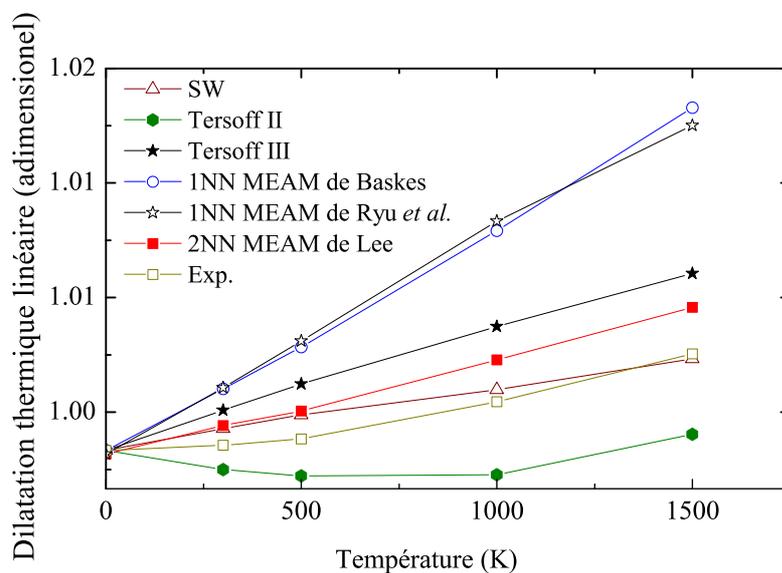


Figure 2.2 – Dilatation thermique linéaire pour Si. Les variations de la dilatation thermique linéaire sont comparables aux valeurs expérimentales à 5 % près [60].

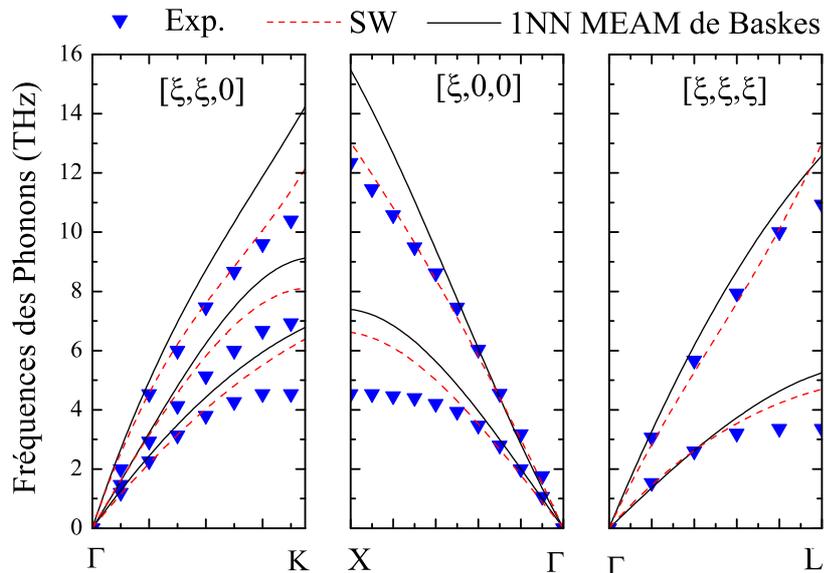


Figure 2.3 – Courbes de dispersion acoustiques pour le Si obtenues avec les potentiels SW et 1NN MEAM et résultats expérimentaux correspondants [61].

1NN MEAM de Baskes surestiment les modes transversaux pour les grands vecteurs d’onde. Pour le mode longitudinal le potentiel SW est en bon accord avec les résultats expérimentaux. En outre, le potentiel 1NN MEAM de Baskes surestime le mode longitudinal d’environ 50 % dans les directions  $\Gamma K$ ,  $\Gamma X$  pour les grands vecteurs d’onde.

Le potentiel Tersoff III a un comportement similaire au potentiel SW pour le mode longitudinal et les modes transversales. On constate que le potentiel Tersoff II sous-estime largement les modes transversales pour toutes les directions et le mode longitudinal dans la directions  $\Gamma L$  d’environ 30 % pour les grands vecteurs d’onde. Le potentiel 1NN MEAM de Ryu *et al.* montre le même profil pour les courbes de dispersion que les résultats obtenus avec le potentiel 1NN MEAM de Baskes. Pour tous les autres modes, les résultats sont en bon accord avec les résultats expérimentaux.

## Conclusion

Pour toutes les propriétés structurales (énergie cohésive, paramètre de maille et constante élastique), les potentiels font une bonne description pour le silicium, sauf le potentiel SW qui sous estime l’énergie cohésive. Les potentiels Tersoff II, 1NN MEAM de Baskes et 1NN MEAM de Ryu *et al.* ne devraient pas être utilisés pour des études de transfert de chaleur avec la DM. Ils ne permettent pas de reproduire l’anharmonicité et le comportement du réseau. Non seulement le potentiel 1NN MEAM de Baskes surestime largement les modes longitudinal et transverses [62], mais il surestime aussi grandement l’expansion thermique linéaire [28, 43]. Au contraire, le potentiel Tersoff II sous-estime les modes acoustiques longitudinales [63] et il sous-estime fortement la dilatation thermique linéaire [49]. En outre, le potentiel Tersoff II donne une dilatation thermique linéaire négative entre 300 et 500 K.

Les potentiels SW et Tersoff III surestiment les modes acoustiques transverses de plus de 40 % pour tous les grands vecteurs d’onde [63], ce qui peut conduire à une surestimation de la conductivité thermique. Cependant, le potentiel SW est en excellent accord avec les résultats expérimentaux pour la dilatation thermique linéaire.

En opposition, le potentiel 2NN MEAM surestime les modes transverses acoustiques de seulement 20 % pour tous les grands vecteurs d’onde et donne de bons résultats pour la dilata-

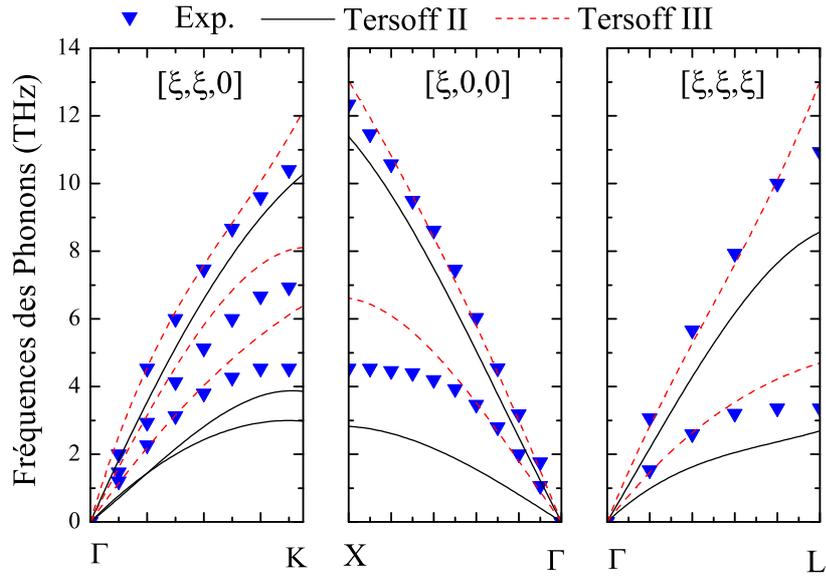


Figure 2.4 – Courbes de dispersion acoustiques pour le Si obtenues avec les potentiels Tersoff II et Tersoff III et résultats expérimentaux correspondants [61].

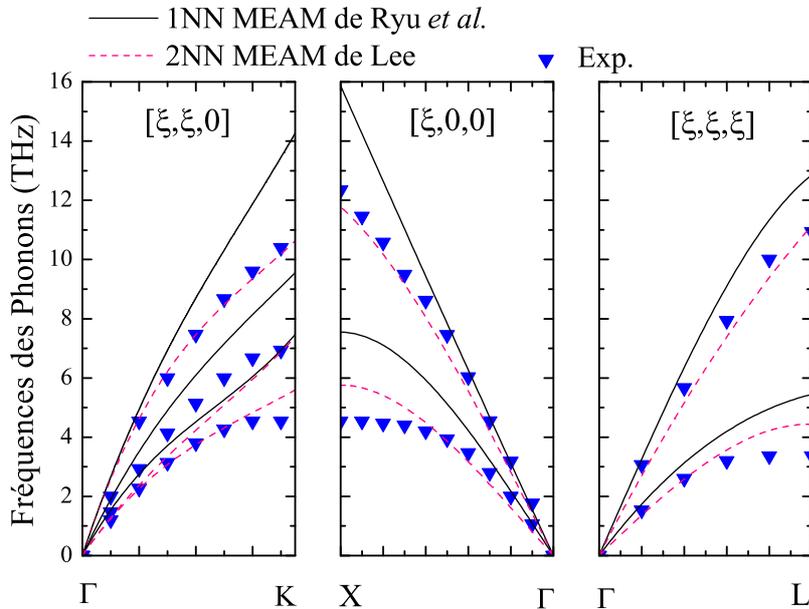


Figure 2.5 – Courbes de dispersion acoustiques pour le Si obtenues avec les potentiels 1NN MEAM de Ryu *et al.* et 2NN MEAM de Lee et résultats expérimentaux correspondants [61].

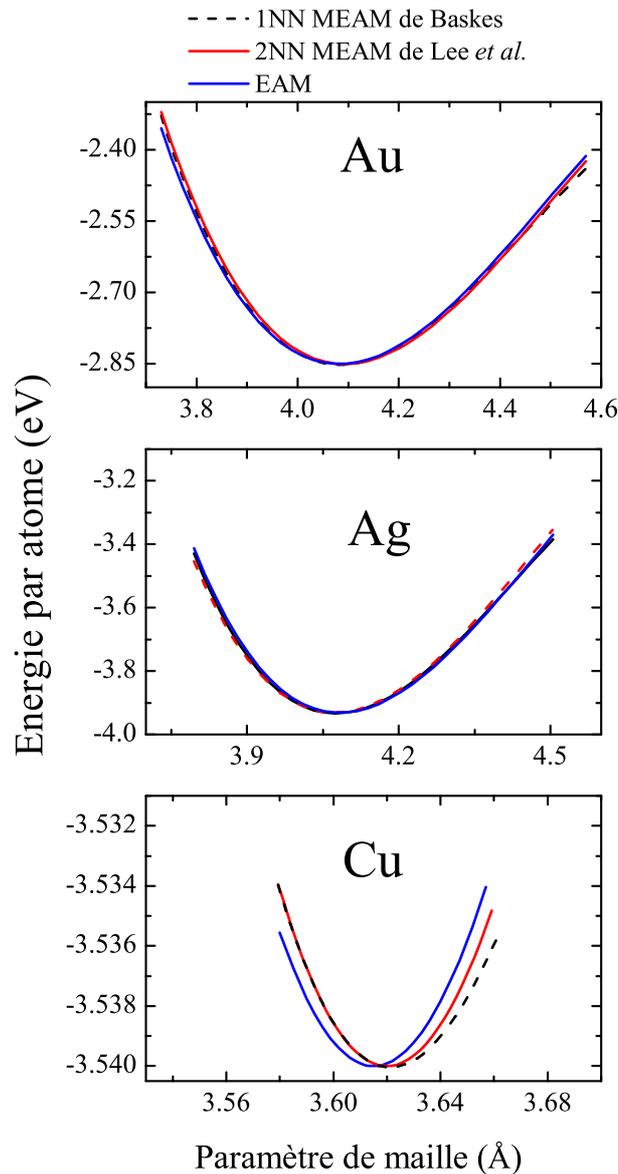


Figure 2.6 – Energie potentiel par atome en fonction du paramètre de maille pour Au, Ag et Cu.

tion thermique linéaire.

On peut conclure que le potentiel 2NN MEAM pourrait donner les valeurs les plus proche des valeurs expérimentales pour la conductivité thermique.

## 2.4 Résultats pour les métaux

L'énergie par rapport au paramètre de maille est montrée sur la Fig. 2.6.

D'où sont déduits le paramètre de maille,  $R_i^0$ , l'énergie cohésive,  $E_i^0$ , et la constante élastique,  $B$ , à 0 K pour l'Au, l'Ag et le Cu (Table 2.II).

Pour toutes ces propriétés, les potentiels interatomiques donnent une bonne description des valeurs expérimentales.

La Fig.2.7 permet de comparer les résultats obtenus pour la dilatation thermique linéaire en utilisant les potentiels EAM, 1NN MEAM de Baskes, 2NN MEAM de Lee *et al.* et 2NN MEAM de Ryu *et al.* aux valeurs expérimentales.

Pour les trois métaux, le potentiel 1NN MEAM de Baskes donne une bonne description

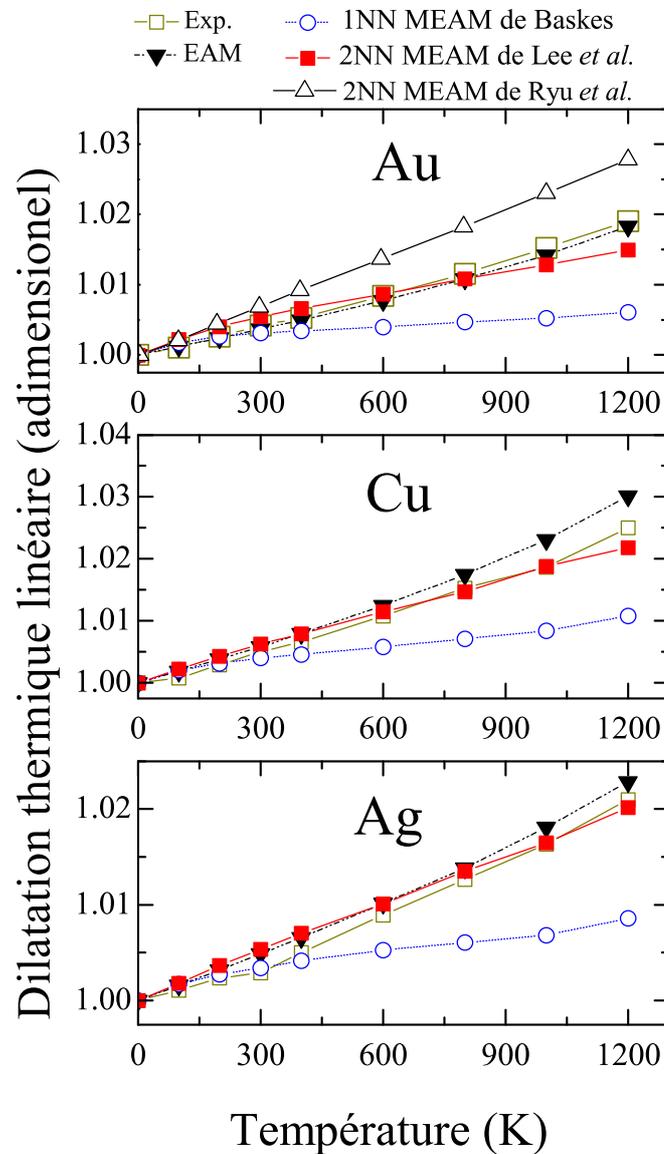


Figure 2.7 – Dilatation thermique linéaire pour Au, Ag et Cu. Les variations sur la dilatation thermique linéaire sont inférieures à 5 % de la variation comparée aux valeurs expérimentales [60].

Tableau 2.II –  $E_i^0$ ,  $R_i^0$  et  $B$  obtenus pour Au, Ag et Cu en utilisant les potentiels EAM, 1NN MEAM de Baskes et 2NN MEAM de Lee *et al.* et les valeurs expérimentales.  $R_i^0$  (Å) et  $E_i^0$  (eV) provenant du Kittel [58], et la constante élastique  $B$ (GPa) provenant de Simmons et Wang [64].

Matériel	Potentiel	$E_i^0$	$R_i^0$	$B$
Au	EAM	-3,93	4,08	174
	1NN MEAM de Baskes	-3,93	4,07	174
	2NN MEAM de Lee <i>et al.</i>	-3,93	4,07	175
	Exp	-3,93	4,07	166
Ag	EAM	-2,85	4,08	108
	1NN MEAM de Baskes	-2,85	4,09	108
	2NN MEAM de Lee <i>et al.</i>	-2,85	4,08	109
	Exp.	-2,85	4,08	109
Cu	EAM	-3,54	3,615	138
	1NN MEAM de Baskes	-3,54	3,62	138
	2NN MEAM de Lee <i>et al.</i>	-3,54	3,62	138
	Exp.	-3,54	3,61	142

de la dilatation thermique linéaire jusqu'à 300 K. Pour les températures supérieures à 300 K les valeurs obtenues par le potentiel 1NN MEAM de Baskes s'éloignent et sous-estiment les valeurs expérimentales pour tous les métaux. En opposition, le potentiel 2NN MEAM de Ryu *et al.* surestime largement la dilatation thermique linéaire pour l'Au. Pour les potentiels EAM et 2NN MEAM de Lee *et al.* les résultats sont en excellent accord avec les résultats expérimentaux. On peut conclure que le potentiel 2NN MEAM de Lee *et al.* améliore la qualité des propriétés anharmoniques pour tous les métaux.

Nous avons ensuite représenté les courbes de dispersion pour les métaux considérés suivant les directions  $\Gamma K$ ,  $\Gamma X$  et  $\Gamma L$  et les différents potentiels interatomiques (Figs. 2.8, 2.9, 2.10 et 2.11).

Pour l'Au, les potentiels 2NN MEAM de Lee *et al.* et 2NN MEAM de Ryu *et al.* sous-estiment largement les mode longitudinal et transverses. Les potentiels EAM et 1NN MEAM de Baskes donnent des valeurs plus proches des résultats expérimentaux pour les modes transverses. Les potentiels EAM et 1NN MEAM de Baskes sous-estiment aussi le mode longitudinal, mais pas autant que les potentiels 2NN MEAM de Lee *et al.* et 2NN MEAM de Ryu *et al.*.

Pour l'Ag, les trois potentiels donnent de bons résultats pour les courbes de dispersion. Le potentiel 1NN MEAM de Baskes donne les résultats les plus proches des valeurs expérimentales. Le potentiel EAM surestime légèrement le mode longitudinal dans les directions  $\Gamma K$  et  $\Gamma X$  tandis que le potentiel 2NN MEAM de Lee *et al.* le sous-estime légèrement. Dans la direction  $\Gamma L$  tous les potentiels donnent une excellente description pour le mode longitudinal et transverses, sauf le potentiel EAM qui sous-estime le mode longitudinal.

Pour le Cu, tous les potentiels sont en excellent accord avec les résultats expérimentaux. Les trois potentiels donnent une bonne description des propriétés harmoniques.

## Conclusion

Les potentiels interatomiques évalués permettent une bonne description des propriétés de structure (énergie cohésive, paramètre de maille et constante élastique) pour les métaux étudiés.

Pour l'Au, le potentiel EAM donne la meilleure description pour les propriétés harmoniques et anharmoniques. En ce qui concerne les potentiels MEAM qui peuvent être appliqués pour le Si et pour les métaux, le potentiel 2NN MEAM de Lee *et al.* donne les résultats les plus proches

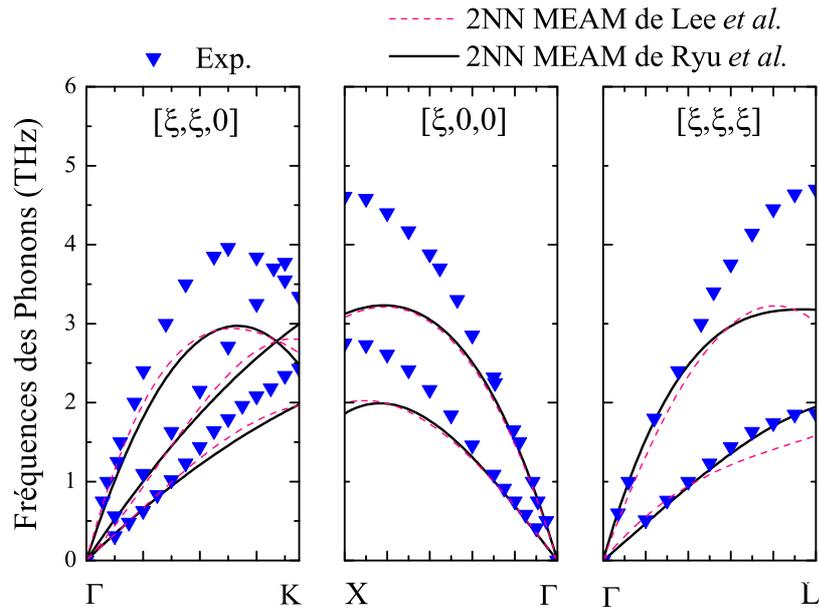


Figure 2.8 – Courbes de dispersion pour l’Au obtenues avec les potentiels 2NN MEAM de Lee *et al.* et 2NN MEAM de Ryu *et al.* et résultats expérimentaux correspondants [65].

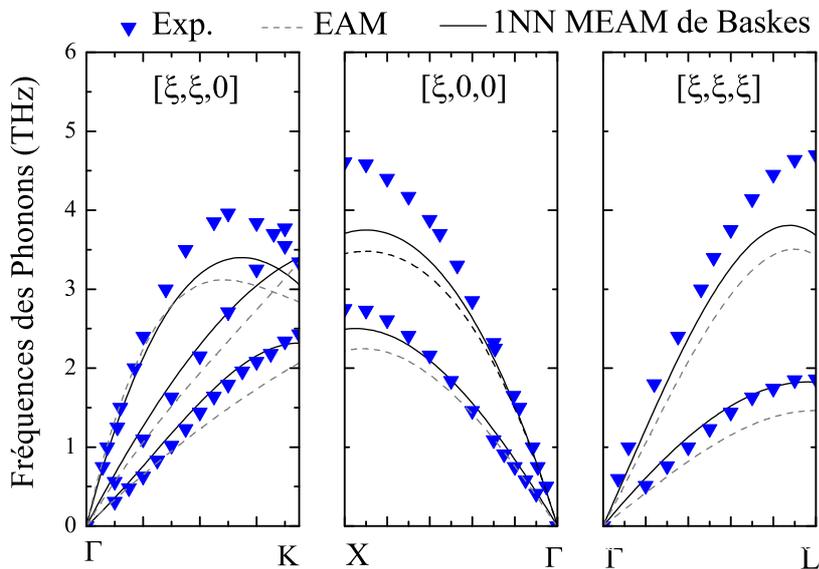


Figure 2.9 – Courbes de dispersion pour l’Au obtenues avec les potentiels EAM et 1NN MEAM de Baskes et résultats expérimentaux correspondants [65].

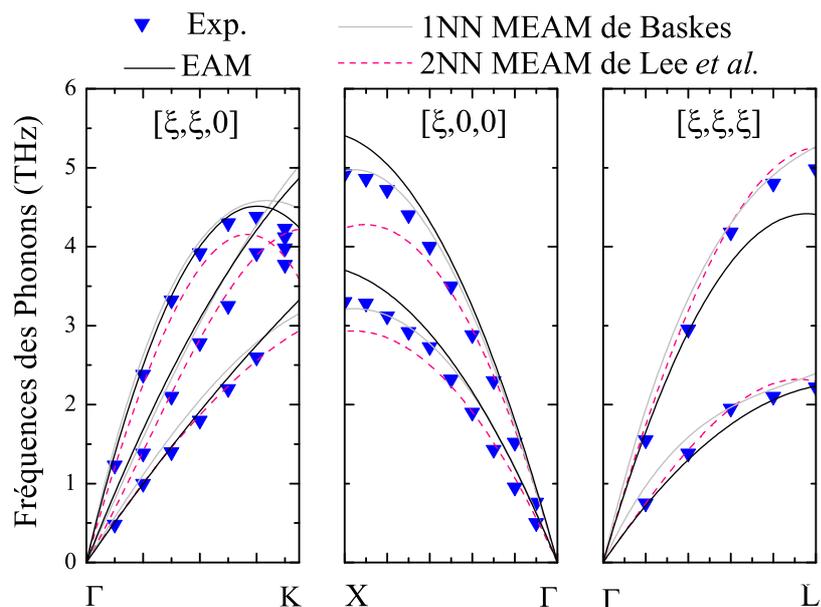


Figure 2.10 – Courbes de dispersion pour l’Ag obtenues avec le potentiel EAM, 1NN MEAM de Baskes et 2NN MEAM de Lee *et al.* et résultats expérimentaux correspondants [66].

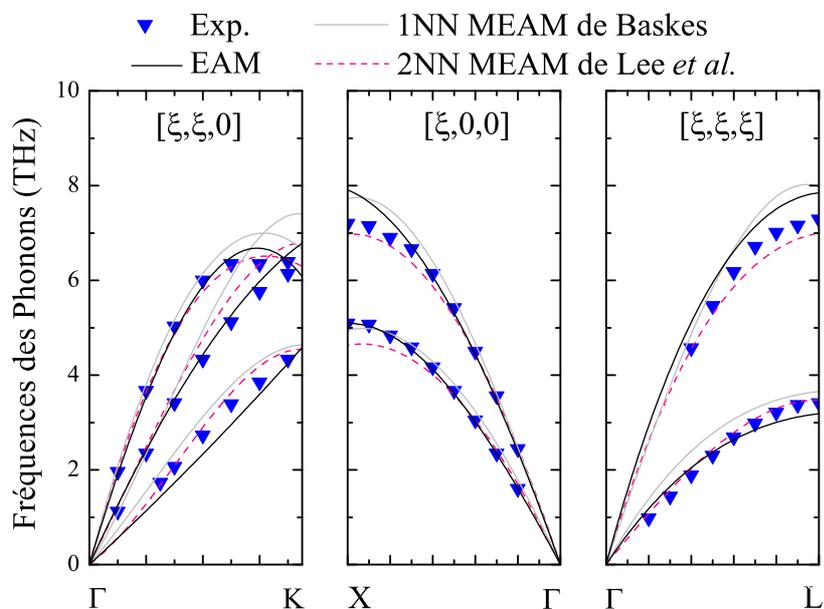


Figure 2.11 – Courbes de dispersion pour le Cu obtenues avec le potentiel EAM, 1NN MEAM de Baskes et 2NN MEAM de Lee *et al.* et résultats expérimentaux correspondants [66].

des valeurs expérimentales pour la dilatation thermique linéaire et les courbes de dispersion. En rapport aux courbes de dispersion le potentiel 1NN MEAM de Baskes donne des résultats légèrement meilleurs comparés à ceux obtenus avec les autres potentiels MEAM. Mais le potentiel 1NN MEAM de Baskes n'a pas été choisi car il sous-estime largement la dilatation thermique linéaire.

Pour l'Ag, le potentiel 1NN MEAM de Baskes donne les meilleurs résultats pour les courbes de dispersion. Comme il sous-estime largement la dilatation thermique linéaire et compte tenu la faible différence pour les courbes de dispersion en rapport autres potentiels ; nous avons choisi le potentiel EAM et 2NN MEAM de Lee *et al.* pour simuler la transfert de chaleur. De plus, ces potentiels donnent une dilatation thermique linéaire en bon accord avec les résultats expérimentaux.

Pour le Cu, la dilatation linéaire thermique est utilisée comme critère de choix car tous les potentiels donnent une bonne description pour les courbes de dispersion expérimentales. Dans ce cas, le potentiel EAM est le meilleur potentiel pour simuler le transfert de chaleur suivi par le potentiel 2NN MEAM de Lee *et al.*

## 2.5 Prédiction de la conductivité thermique du Si massif

Comme mentionné dans la section précédente, parmi les cinq potentiels interatomiques évalués, trois potentiels interatomiques reproduisent correctement le comportement vibratoire harmonique et anharmonique du Si massif : les potentiels SW, Tersoff III et 2NN MEAM de Lee. La conductivité thermique du silicium massif calculée avec ces trois potentiels est comparée avec les valeurs expérimentales de la conductivité thermique du Si naturel pour des températures allant de 500 à 950 K [67]. Les simulations de DM ne prennent pas en compte les effets de diffusion dus aux différences de masse entre les isotopes présents dans le Si naturel. Des résultats obtenus pour du Si enrichi en isotope Si<sup>28</sup> à 99,8588 % ont été prédits par Kazan *et al.* [57]. Ils permettent de relativiser sur les conclusions relatives à l'évaluation des potentiels ainsi que les résultats publiés précédemment. Comme le temps de simulation nécessaire à la prédiction de la conductivité thermique est important, les deux autres potentiels 1NN MEAM et Tersoff II ne sont pas considérés ici.

Plusieurs méthodes peuvent être utilisées pour prédire la conductivité thermique à l'aide de la DM : La DM d'équilibre [68, 69], la DM Homogène hors d'équilibre [70, 71] et la DM non Homogène hors d'équilibre (DMNE). La dernière méthode est certainement la plus utilisée. La DMNE peut être implémentée de deux manières : en imposant un flux thermique [26, 51, 72] ou un gradient de température [73–75] pour obtenir un transfert de chaleur mono dimensionnel.

Pour notre étude, le gradient de température a été créé en imposant une température chaude dans un volume placé au centre du système et une température froide aux deux extrémités du système (dans la direction  $z$ ) (Fig. 2.12).

Cette configuration permet de respecter les conditions limites périodiques. La conductivité thermique a été calculée en utilisant la loi de Fourier :

$$Q = \lambda A \frac{dT}{dz}, \quad (2.4)$$

où  $Q$  est le flux thermique,  $T$  la température,  $\lambda$  la conductivité thermique et  $A$  la section de passage du flux  $Q$ . Le gradient de température doit être suffisamment grand pour que celui-ci soit significativement différent des variations statistiques de la température locale, mais pas trop important pour que la valeur de la conductance thermique moyenne du système puisse être utilisée.

La méthode proposée par Lukes *et al.* [72] est utilisée pour calculer l'incertitude.

Schelling *et al.* [51] ont montré que lorsque le flux échangé entre la zone chaude et la zone froide augmente, il n'y a pas d'écart important par rapport à la Loi de Fourier. Pour obtenir des

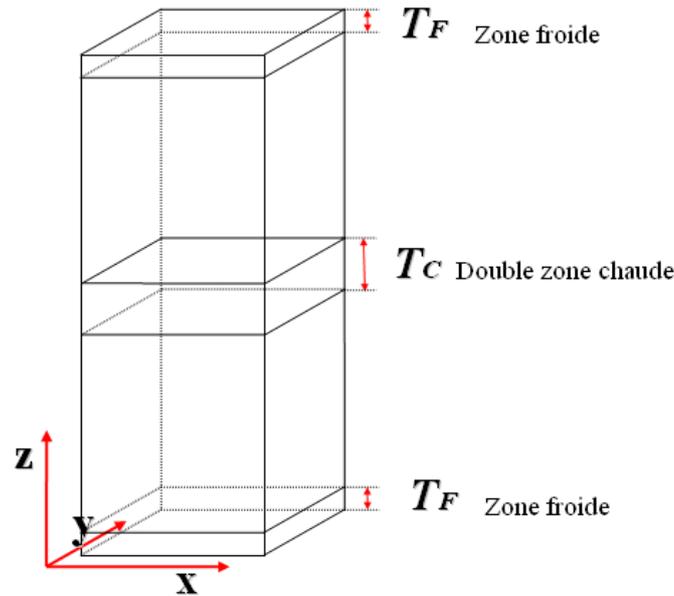


Figure 2.12 – Configuration pour simuler le transfert de chaleur dans le Si massif avec la DMNE.

valeurs raisonnables, la différence entre les températures imposées est égale à 10 % de la valeur de la température moyenne. Cette valeur conduit à des valeurs de densité de flux entre  $1.4$  et  $4.8 \times 10^{-4}$  eV/nm<sup>2</sup> pour nos systèmes ayant une dimension de  $5 \times 5$  dans le plans  $x$  et  $y$  (Fig. 2.12). Ces valeurs semblent être appropriées et en bon accord avec les valeurs de Schelling *et al* pour les systèmes de dimensions  $4 \times 4$ .

Des simulations de transfert de chaleur ont été réalisées avec des systèmes de dimensions variant de 54.3 à 651.6 nm dans la direction  $z$ . La forme du profil de température dépend du rapport entre la dimension du système et le libre parcours moyen des phonons qui diminue lorsque la température augmente (Fig. 2.13). En théorie, la loi de Fourier ne peut être utilisée que lorsque ce profil est linéaire [51]. Schelling *et al* [51] ont montré que la diffusion par les zones thermostatées crée une distorsion proche des régions à températures imposées. A mi-chemin entre la source chaude et la source froide, le profil de température est une fonction linéaire et le gradient de température résultant a été utilisé pour obtenir la conductivité thermique.

Comme la chaleur est principalement portée par les modes acoustiques, l'équation de la conductivité thermique en fonction de la longueur du système et du libre parcours moyen des phonons est [51] :

$$\frac{1}{\lambda} = \frac{\alpha_0^3}{4k_B v} \left( \frac{1}{l_\infty} + \frac{4}{L_z} \right), \quad (2.5)$$

où  $k_B$  est la constante de Boltzmann,  $v$  est la vitesse de groupe de la branche acoustique,  $l_\infty$  le libre parcours moyen des phonons d'un système infini et  $L_z$  est la longueur de la cellule de la simulation, dans la direction du transfert de chaleur. Cette équation donne une estimation de  $1/\lambda$  en fonction de  $1/L_z$  et permet d'extrapoler la valeur de la conductivité thermique d'un système de taille infinie (Fig. 2.14).

Les valeurs de conductivité thermique pour le silicium à 500, 700 et 950 K obtenues avec les potentiels SW, Tersoff III et 2NN MEAM de Lee et les valeurs obtenues par Schelling *et al* [51] utilisant le potentiel SW sont représentées sur la fig. 2.15. Ces valeurs sont comparées avec les valeurs expérimentales pour le Si naturel [67] et les valeurs prédites théoriquement pour le Si<sup>28</sup> isotopique pur [57] entre 500 à 950 K.

Les valeurs de conductivité thermique obtenues avec le potentiel SW sont en bon accord

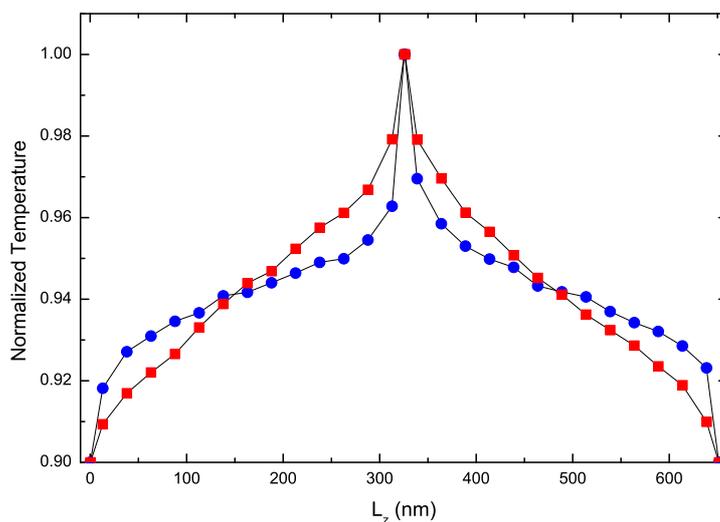


Figure 2.13 – Profil de température adimensionnelle pour le potentiel SW et une structure de taille  $z = 434$  nm. Les cercles sont pour une température moyenne de 285K et les carrés sont pour une température moyenne de 950K.

avec les valeurs de Schelling *et. al* [51] obtenues à l'aide de la DMNE avec un flux de chaleur imposé de  $119 \pm 40$  W/mK à 500 K et de  $65 \pm 16$  W/mK à 1000 K. Les potentiels Tersoff III et SW surestiment la conductivité thermique de plus de 50 % tandis que le potentiel 2NN MEAM la sous-estime de moins de 30 % pour Si naturel.

## 2.6 Conclusion

Pour le Si, l'Au, l'Ag et le Cu le potentiel qui donne la meilleure description des propriétés harmoniques et anharmoniques est le potentiel 2NN MEAM de Lee *et al.*. Dans le logiciel LAMMPS, il est possible d'utiliser des combinaisons de potentiels interatomiques différents pour différents matériaux. Ce type de simulation a été initialement exploré, mais on a opté pour utiliser le même type de potentiel interatomique pour tous les systèmes Si/métal. Dans ce cas, le potentiel 2NN MEAM de Lee pour le Si et le potentiel 2NN MEAM de Lee *et al.* pour les métal ont été choisi pour le développement du potentiel croisé dans le chapitre suivant.

Le potentiel 2NN MEAM de Lee donne les résultats les plus proches des valeurs expérimentales de conductivité thermique du Si naturel. Toutefois, la DM ne tient pas compte de la diffusion des phonons en raison de la différence de masse des trois isotopes principaux du silicium naturel :  $Si^{28}$  (92,18 %),  $Si^{29}$  (4,71 %) et  $Si^{30}$  (3,12 %). Toutes les simulations ont été réalisées avec une masse molaire moyenne de 28,0855. Kazan *et al.* [57] ont prédit la conductivité thermique pour le silicium isotopiquement pur et les résultats excèdent 30 à 50 % les valeurs expérimentales. Ces résultats tendent à montrer que les phénomènes de diffusion dus à la différence de masse entre isotopes est non négligeable. Ces phénomènes pourraient être pris en compte aisément par les simulations de DM et intégrées à l'élaboration de potentiels interatomiques en vu de la simulation du transfert de chaleur. Par exemple, le potentiel Tersoff III est en bon accord avec les résultats de Kazan *et al.* et il serait intéressant de prédire la conductivité thermique du Si naturel en tenant en compte de sa composition isotopique et de la comparer avec les valeurs expérimentales. Les contraintes de temps de calcul n'ont pas permis de réaliser ces simulations. La conclusion de cette étude est que le potentiel 2NN MEAM de Lee permet de prédire mieux la conductivité thermique du Si naturel avec des simulations de DMNE en utilisant une masse moyenne identique pour tous les atomes de Si.

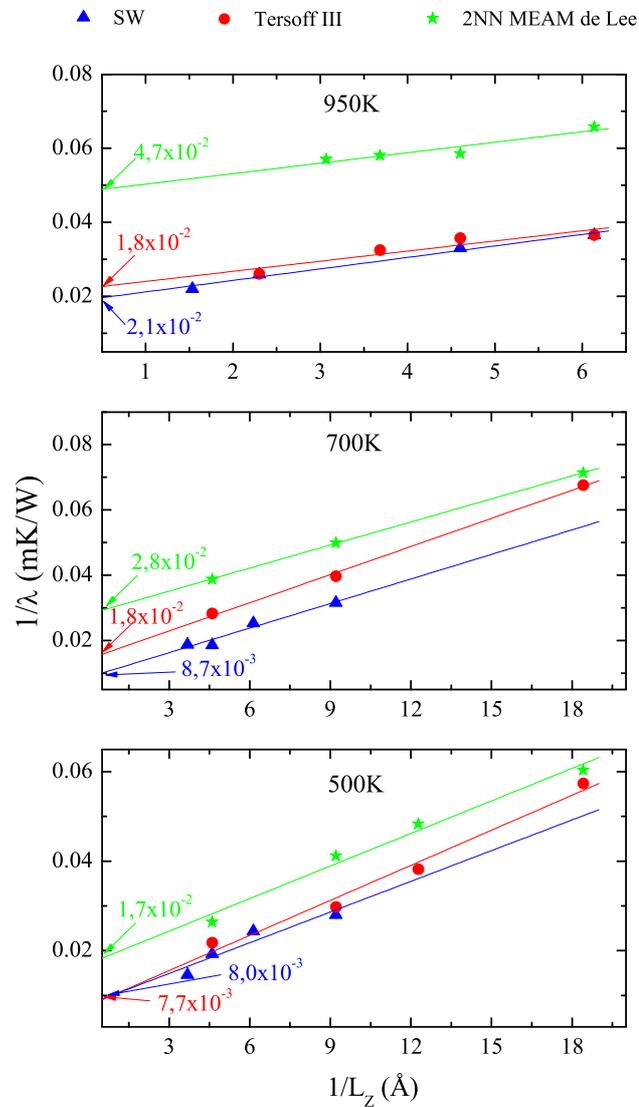


Figure 2.14 – Inverse de la conductivité thermique,  $1/\lambda$ , représenté en fonction de l’inverse de la taille du système,  $1/L_z$ , pour les différents potentiels à différentes températures. Les valeurs extrapolées de la conductivité thermique pour chaque potentiel et température sont également représentées dans le graphique (les unités sont en mK/W).

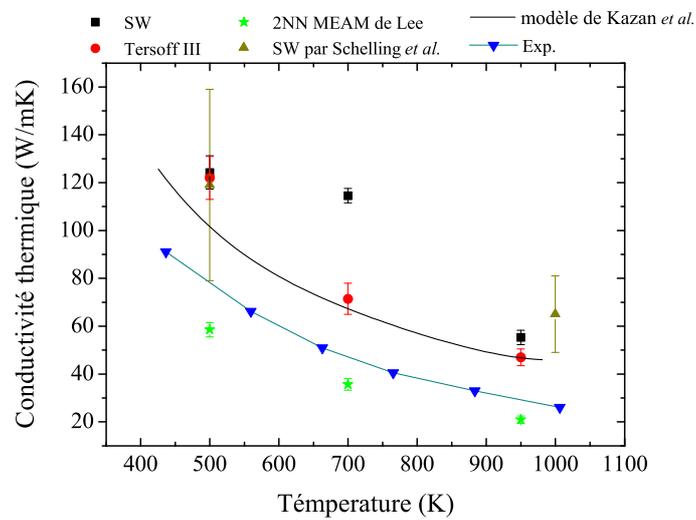


Figure 2.15 – Conductivité thermique en fonction de la température du système prédite avec les potentiels SW, Tersoff III et 2NN MEAM à 500, 700 et 950 K, comparée aux valeurs expérimentales [67], aux valeurs prédites théoriquement par Kazan *et al.* [57] pour le Si isotopique pur, ainsi qu’aux valeurs obtenues par Schelling *et. al* [51] avec le potentiel SW.