

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE



MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR  
ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

**UNIVERSITE DE BATNA**

**FACULTE DES SCIENCES DE L'INGENIEUR  
DEPARTEMENT D'ELECTROTECHNIQUE**



MEMOIRE PRESENTE POUR L'OBTENTION DU DIPLOME DE  
MAGISTER EN ELECTROTECHNIQUE

Option

Matériaux d'Electrotechnique

Par

**M. Rebai CHOUCANE**

Thème

***Modélisation de la résistivité électrique dans les  
couches minces métalliques applications aux  
amorphes métalliques***

Soutenue : 22 / 01 / 2009

Devant le jury :

<b>BENOUDJIT</b> Azeddine	Pr.	Président	U. Batna
<b>MESSAADI</b> Saci	Mc.	Rapporteur	U. Batna
<b>BENTHABET</b> Abdelouahab	Mc.	Examineur	C.U. Bordj-Bouariridj
<b>MEDOUER</b> Hadria	Mc	Examineur	U. Batna
<b>BENHAYA</b> Abdelhamid	Mc	Examineur	U. Batna

## *Remerciements*

*Je remercie en premier lieu Dieu de m'avoir donné le courage et la volonté pour réaliser ce modeste travail.*

*Ce travail a été réalisé au laboratoire d'études physico-chimiques des matériaux "E.P.C.M" de l'université de Batna, sous la direction de Mr. MESSAADI Saci Maître de conférences à l'université de Batna. Qu'il me soit permis de lui exprimer ma profonde gratitude pour l'aide, les conseils et les encouragements qu'il ne me cessa de me prodiguer au cours de cette étude.*

*Je tiens à exprimer mes remerciements à Mr. Azeddine BENOUDJIT, Professeur à l'université de Batna, pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de présider le jury de ce mémoire.*

*Je Tiens aussi à remercier Mr. Abdelouahab BENTHABET, Maître de conférences au centre universitaire de Bordj-Bouariridj, à Mme .Hadria MEDOUER, Maître de conférences à l'université de Batna, à Mr .Abdelhamid BENTHAYA, Maître de conférences à l'université de Batna qui ont accepté d'être les examinateurs de mon travail.*

*Je ne saurais oublier toutes les personnes qui ont contribué à la réalisation de ce mémoire.*

*A toute ma famille et mes amis, je dis merci pour la sympathie et le soutien qu'ils m'ont témoignés.*

# SOMMAIRE

INTRODUCTION.....	1
-------------------	---

## **Chapitre I**

### *Généralités sur le phénomène de conduction dans les métaux*

Introduction.....	4
I.1.Théorie élémentaire de la conduction dans les métaux massifs .....	5
I.1.1.Propriétés électroniques des conducteurs .....	5
I. 1.1.1.Le modèle de Drude et Lorentz .....	5
I.1.1.2.Conductivité électrique des métaux.....	7
I.1.1.3.Loi de distribution des vitesses des électrons libres .....	10
I.2.Modèle de l'électron presque libre.....	13
I.3. Règle de Mathiessen .....	14
I.4.Modèle quantique de Sommerfeld (1928).....	16
I.4.1.Calcul des niveaux d'énergie électroniques.....	16
I.4.2.Dénombrement des niveaux d'énergie électroniques .....	17
I.4.3.Remplissage des niveaux d'énergie électroniques.....	20
I.5.Equation de Boltzmann.....	22
I.5.1.Résolution .....	23
I.5.2.Solution Générale.....	26
I.6.Conductivité électrique.....	27
I.6.1.Conductivité électrique dans l'approximation de l'électron libre.....	27
I.6.2.Conductivité électrique des électrons dits presque libres .....	28
Conclusion.....	29

## **Chapitre II**

### *Les Différents modèles de la conductivité électrique des couches minces métalliques*

Introduction.....	30
II.1.Modèle de Fuchs-Sondheimer.....	30
II.1.1.Le modèle de référence élaboré par F-S .....	31
II.1.1.1.Réflexion diffuse.....	33
II.1.1.2.Prise en compte de la réflexion spéculaire.....	35
II.2.Modèle de COTTEY.....	36
II.3.Modèle MAYADAS SHATZKES .....	38
II.3.1.Description mathématique du modèle .....	38
II.3.2.Analyse du modèle MAYADAS-SHATZKES .....	41
II.4. Le Modèle Unidimensionnel.....	42
II.5. LE modèle tridimensionnel.....	45
II.5.1.Présentation du modèle.....	46
II.5.2.Conductivité électrique des couches minces.....	47
II.5.2.1.Expression du libre parcours moyen .....	49
II. 5.2.2.Expression générale de la conductivité totale.....	49
Conclusion.....	51

### **Chapitre III**

#### *Coefficient de température de la résistivité électrique dans les couches minces métalliques*

Introduction.....	53
III.1.Hypothèses et définitions.....	53
III.2.Différentiation logarithmique.....	54
III.3.Le c.t.r. dans le modèle F-S effectif.....	55
III.4.Le c.t.r. dans le modèle M-S.....	57
III.5.Expressions du c.t.r. dans le cadre des modèles statistiques .....	59
III.5.1.Hypothèses .....	59
III.5.2.Effet des surfaces externes.....	60
III.5.3.Effet des joints de grains.....	62
III.5.3.1.Expression du c. t. r. en l'absence des dilations thermiques.....	62
III.5.3.2.Expression du c. t. r. en présence des dilations thermiques .....	63
III.5.3.3.Expression approximative.....	65
III.6.Expression générale du c. t. r. dans le cadre des modèles statistiques.....	65
Conclusion.....	67

### **Chapitre IV**

#### *Applications expérimentales aux couches minces de cuivre et analyse numérique du c. t. r.*

Introduction.....	69
IV.1.Expressions asymptotiques de la conductivité électrique .....	69
IV.1.1.Formules asymptotiques déduites du Modèle F-S.....	70
IV.1.2.Formules asymptotiques déduites du Modèle M-S .....	70
IV.1.3.Formules asymptotiques déduites des modèles statistiques.....	71
IV.2.Application aux couches de cuivre.....	72
IV.3.Effet de la température et du recuit sur la conductivité électrique.....	76
IV.3.1.Variation de la conductivité électrique avec la température.....	76
IV.3.2.Variation de la conductivité électrique sous l'effet du recuit.....	82
IV.4.Variation du c. t. r. avec les paramètres dimensionnels .....	88
Conclusion.....	90
<i>Conclusion générale.....</i>	92

#### **Bibliographie**

## *Index des Symboles*

---

$A(k, p)$	Terme relative à l'effet dimensionnel dans le modèle Fuchs-Sondheimer
$A(k, p, \alpha)$	Terme relative à l'effet dimensionnel dans le modèle Mayadas-Shatzkes
a	Paramètre intervenant dans la conduction électrique pour les modèles multidimensionnel
B	Constante de Boltzmann.
b	Paramètre intervenant dans la conduction électrique pour les modèles Tridimensionnels
$C(\mu)$	Fonction de cottey
D	Diamètre moyen de grain
d	épaisseur de la couche
E	Champ électrique.
e	Valeur absolue de la charge de l'électron.
$F_0, f_1$	Fonction de distribution.
$f(\alpha)$	Fonction de Mayadas-Shatzkes.
$G(\gamma)$	Fonction de grain dans le modèle bidimensionnel.
H	Constante de Plank.
$\hbar$	$h/2\pi$ .
J	Densité de courant électrique.
K	Vecteur d'onde.
K	Épaisseur réduit $(k=d/\lambda_0)$ .
m	Masse de l'électron
n	Nombre d'électrons.
p	Coefficient de réflexion spéculaire des électrons sur les surfaces externes.
R	Coefficient de réflexion des électrons dans le modèle Mayadas-Shatzkes.
T	Température en Kelvin.

## *Index des Symboles*

---

t	Coefficient de transmission sur le joint de grain.
V	vitesse de l'électron.
$v_f$	vitesse de Fermi.
$\alpha$	Paramètre de grain dans le modèle Mayadas-Shatzkes
$\beta_f$ ,	c.t.r dans la couche mince métallique
$\beta_g$ ,	c.t.r du aux effets des joints de grains
$\beta_0$	c.t.r dans le métal massif.
$v_d$	Vitesse de dérive
$v_{th}$	Vitesse thermique
$\lambda$	l.p.m réduit = $\lambda_0/r$ ; r est le rayon de Larmor
$\varepsilon$	énergie de l'électron
$\varepsilon_F$	Énergie de Fermi
$\lambda_0$	l.p.m dans le métal massif
$\gamma$	Paramètre de grain dans les modèles multidimensionnels
$\mu$	Paramètre dimensionnel dans les modèles multidimensionnels
$\rho_f$	Résistivité électrique dans la couche mince
$\rho_g$	Résistivité électrique due aux effets des joints de grains
$\rho_0$	Résistivité électrique dans le métal massif
$\tau$	temps de relaxation
$\chi_d$	Coefficient de dilatation thermique de l'épaisseur de la couche
$\chi_D$	Coefficient de dilatation thermique du grain



Au début du dernier siècle, on ne possédait aucune théorie sérieuse sur l'état métallique et par conséquent on ne pouvait postuler aucune théorie sur les mécanismes qui régissent la conductivité d'un métal. La conductivité électrique varie beaucoup d'un métal à un autre. Mais l'on a remarqué vers 1850 que les bons (respectivement mauvais) conducteurs électriques sont les bons (respectivement mauvais) conducteurs thermiques. Dans bon nombre de cas, la résistivité varie linéairement avec  $T$  (température absolue), sauf à très basse température, où la variation est souvent en  $T^5$ .

C'est la découverte de l'électron (J. J. Thomson, 1897) qui va permettre de jeter les bases d'une première théorie des métaux. Drude perçoit en effet immédiatement le rôle que jouent les électrons dans les métaux et propose une description phénoménologique de la conduction. Bien que basée sur un postulat qui, plus tard, se révèle faux, la théorie de Drude utilisant le concept de l'électron libre et le temps de relaxation était arrivée à donner des interprétations physiques au phénomène de conduction. Ce sont les concepts de la mécanique quantique qui vont corriger les défaillances de la théorie de Drude, ce travail a été proposé par Sommerfeld.

La conduction électrique dans les couches minces métalliques a été l'objet d'un nombre important de travaux théoriques depuis que Fuchs a proposé en 1938 une formulation exprimant les conditions aux limites de la fonction de distribution des électrons de conduction, à partir du rapport du libre parcours moyen des électrons  $\lambda_0$  et de la dimension transversale  $d$  de la couche mince métallique. Des travaux ultérieurs ont été proposés et ont conduit à un modèle plus affiné appelé modèle de Fuchs-Sondheimer en 1952. Ce dernier modèle a permis des interprétations physiques qualitatives de quelques phénomènes physiques.

On admet alors que les processus de relaxation intervenant lors des réflexions sur les interfaces de la couche mince et lors des collisions internes dans le métal massif sont comparables et que chaque électron subit sur les surfaces des collisions diffuses.

Un coefficient de réflexion  $P$  est introduit pour décrire la fraction des électrons subissant la réflexion élastique en arrivant à la surface de la couche mince métallique.

Il a fallu attendre la publication des travaux de Mayadas-Shatzkes parue en 1970, pour obtenir un modèle de conduction qui permette une description satisfaisante de la conduction électronique dans les couches minces polycristallines dans lesquels les effets des joints de grain sont tenus en comptes. Mais le caractère mathématique compliqué des équations obtenues pour exprimer la résistivité électrique ne permet pas de les utiliser de manière commode.

En 1977 Tosser publie un nouveau modèle appelé "modèle statistique" dans lequel, les travaux de modélisation relatifs aux phénomènes de transport dans les couches minces métalliques sont réexaminés en utilisant le concept de libre parcours moyen en suivant la procédure proposée par Cottey, des expressions simplifiées ont été obtenues dans le cadre de ce modèle. Les nouvelles expressions simplifiées utilisées dans le cadre de ce travail décrivent les phénomènes de transport dans les couches minces métalliques. Dans notre travail, nous nous sommes intéressés en particulier à l'effet de la température sur la conductivité électrique et à l'étude du coefficient de température de la résistivité.

Le travail présenté dans le cadre de ce mémoire est réparti en quatre chapitres et se présente comme suit :

- Le premier chapitre contient des généralités sur les phénomènes de conduction électrique
- Le deuxième chapitre est consacré à la présentation de certains modèles de la conductivité électrique dans les couches minces métalliques.
- Dans le troisième chapitre, nous introduisons les expressions analytiques du coefficient de température de la résistivité (c. t. r.), dans le cadre des modèles présentés dans le 2<sup>ème</sup> chapitre.

- Le quatrième chapitre est consacré aux applications expérimentales et au calcul numérique relatif aux effets dimensionnels sur le "c. t. r.", à cet effet nous avons examiné :
  - La réinterprétation de certaines données expérimentales de Cuivre relatives à la variation de la conductivité électrique en fonction de l'épaisseur de la couche mince métallique.
  - L'effet de la température sur la conductivité électrique des couches minces métalliques de Cuivre, toujours à partir du formalisme des modèles statistiques, en utilisant les coefficients de réflexion spéculaire effectif.
  - Le dernier paragraphe est consacré à l'étude de la variation du c. t. r. avec les paramètres dimensionnels.

Pour terminer cette introduction, nous rappelons que les propriétés physiques des matériaux classiques peuvent évoluer en fonction de la taille des grains qui les constituent, jusqu'à devenir très différentes de ce que l'on peut observer pour le système massif. On parlera alors de « granulo-dépendance » ; qui s'explique par deux effets plus ou moins reliés.

- Un effet dimensionnel : Au dessous d'une certaine dimension critique, les caractéristiques de la propriété dépendent de la dimension du grain. On parle alors d'effet dimensionnel ou d'effet de confinement. L'évolution de ces caractéristiques en fonction des dimensions est assez souvent non monotone.
- Un effet surfacique, ou d'interface : La contribution des couches proches de la surface prend une place importante dans le comportement global du matériau, quand les dimensions du grain diminuent.

## Introduction

Bien avant l'apparition de la mécanique quantique, Drude et Lorentz [1] ont interprété la conductivité électrique d'un métal, à l'aide d'un modèle d'électrons libres. Mais leur théorie a échoué sur le problème de la chaleur spécifique. Néanmoins, l'idée de l'électron libre était lancée et, reprise dans le contexte de la mécanique quantique, elle constitue le point de départ de la physique de l'état solide.

Depuis la découverte de l'électron par J. J. Thomson (1897) et les travaux de H. A. Lorentz, on sait que le courant électrique est véhiculé par des électrons ayant la propriété de se mouvoir au sein de la matière. En considérant un gaz d'électrons libres auquel est appliquée la théorie cinétique des gaz de Boltzmann, Drude et Lorentz ont montré entre 1900 et 1905 que la conductivité électrique  $\sigma$  définie par la loi d'Ohm  $J = \sigma \cdot E$ , s'exprimait de la façon suivante :  $\sigma = (n \cdot e / m \cdot \tau)$  ; où  $n$  est la densité volumique d'électrons libres,  $e$  la charge de l'électron,  $\tau$  le temps moyen entre deux collisions et  $m$  la masse de l'électron.

Le développement de la mécanique quantique permit à Sommerfeld,[2,3] en (1928), de reformuler la théorie de Drude-Lorentz en incluant la statistique de Fermi-Dirac et la notion de puits de potentiel, puis Bloch en (1929), prit en compte la périodicité du potentiel cristallin et montra ainsi l'existence de bandes d'énergie. Ce modèle rend alors correctement compte de la capacité calorifique, de la conductibilité thermique, et de la conductivité électrique des métaux. Il permet également d'expliquer la distinction entre métaux, semi métaux, semi-conducteurs et isolants.

En effet, dans un cristal constitué d'un ensemble d'atomes, les électrons n'occupent plus des niveaux d'énergie discrets comme dans le cas de l'atome isolé mais sont localisés dans des bandes d'énergie séparées par de larges domaines d'énergies interdites. La formation de ces bandes d'énergie résulte du recouvrement des orbitales électroniques des couches externes qui se produit lorsque les atomes sont proches les uns des autres. Les électrons des couches externes ne restent pas liés à un atome particulier, et deviennent plus ou moins libres de se propager d'un atome à l'autre. On les appelle électrons de conduction. La répartition des électrons dans les différents états énergétiques obéit au principe d'exclusion de Pauli et suit la statistique de Fermi-Dirac. A 0° K, le niveau de plus haute énergie occupé par des électrons est appelé le niveau de Fermi et l'énergie qui lui correspond est appelée l'énergie de Fermi ( $E_F$ ). [1]

## **I.1 Théorie élémentaire de la conduction dans les métaux massifs**

### **I.1.1 Propriétés électroniques des conducteurs**

La conductibilité est l'aptitude que possède un matériau à conduire l'électricité. Il est de constatation courante que d'un corps solide à l'autre, on observe de très large variation de la conductibilité électrique. C'est ainsi qu'à température ambiante, le rapport entre la résistivité du meilleur isolant et de celle du meilleur conducteur, atteint  $10^{25}$ . Les processus responsables de la conductibilité sont d'ailleurs très variés, ainsi que les particules mises en cause : électrons libres pour les métaux, porteurs de charge (électrons et trous) issus du dopage d'un semi-conducteur, ions mobiles. Notre approche vis-à-vis des mécanismes physique de la conduction de l'électricité sera progressive. Nous étudierons :

- Le modèle de Drude et Lorentz,
- Le modèle quantique simplifié de Sommerfeld,
- Les modèles décrivant la conductivité électrique dans les couches minces métalliques.

#### **I.1.1.1 Le modèle de Drude et Lorentz**

Les métaux possèdent un certains nombre de propriétés que l'on ne retrouve pas dans les autres solides :

- Ils sont d'excellents conducteurs de l'électricité et de chaleur,
- Ils peuvent être déformés sans se rompre,
- Ils possèdent des surfaces réfléchissantes.

Environ 2/3 des éléments sont métalliques, bien que la plupart des solides que l'on rencontre (ils sont formés de plusieurs éléments) soient non métalliques. L'étude des métaux est cependant un bon point de départ pour comprendre aussi les propriétés d'autres solides.

Dans ce paragraphe, nous étudierons la théorie de Drude des métaux. Elle est importante pour diverses raisons :

- Elle introduit une manière de penser (libre parcours moyen, temps de relaxation, collisions) très utile dans la physique du solide,
- Motivation historique : ce fut la première théorie (1905) qui a permis d'expliquer avec succès plusieurs propriétés des métaux,
- Ses défauts mettent bien en évidence les limites d'une théorie classique.

A l'époque de Drude, l'existence de l'électron est découverte depuis peu (1897) et des mesures de conductivité électrique ont déjà été réalisées. De plus, des descriptions statistiques ont permis de modéliser avec succès des systèmes comme les gaz parfaits, avec la distribution des vitesses de Maxwell-Boltzmann. La première théorie des solides, élaborée par Drude, a consisté à décrire un métal comme un gaz parfait d'électrons ayant une probabilité de collision de  $\frac{1}{\tau}$  par unité de temps. [1]

C'est le modèle le plus ancien et le plus élémentaire ; les bases furent jetées par Drude en 1902, peu après la découverte de l'électron par J. J. Thomson en (1897) ; tout primitif qu'il soit, ce modèle conduit à une interprétation phénoménologique intéressante des lois fondamentales telles que la loi d'Ohm pour décrire la conduction d'électricité et de chaleur dans les métaux. Ce modèle assimile les électrons à de minuscules particules ; simplement régies par la loi de Newton et les lois de Maxwell, sont :

- Des Electrons indépendants et libres : Cela veut dire que les électrons n'interagissent pas entre eux et que leur mouvement, entre deux collisions successives avec les noyaux atomiques qui composent le solide, est décrit par les lois de Newton pour une particule libre. La première hypothèse nous est imposée par la difficulté de décrire la cinétique d'un système à N-corps interagissant. Aujourd'hui on sait qu'elle est particulièrement efficace pour décrire un gaz d'électrons libres ;

- Subissent des collisions instantanées : Drude introduit l'interaction entre électrons et ions à une fréquence telle que la loi de répartition des durées entre deux chocs consécutifs est donnée par :  $dP = e^{-\frac{t}{\tau}} \frac{dt}{\tau}$ . Cette expression représente la probabilité qu'une collision ait lieu entre le temps  $t$  et le temps  $(t + dt)$ ,  $\tau$  étant l'inverse de la fréquence et donc la durée d'un libre parcours moyen  $\lambda$ .

Le libre parcours moyen  $\lambda$  est la distance parcourue par une particule avant qu'elle ne subisse une autre collision. De façon générale on a :  $\lambda = \langle v \rangle \tau$ .

$\tau$  : est appelé temps de relaxation, cela veut dire qu'un électron se propage en moyenne pendant un temps  $\tau$  avant sa prochaine collision.

- Des électrons thermalisés (Chaos moléculaire) : La direction et la vitesse qui caractérisent un électron après une collision ne sont pas corrélées aux quantités respectives avant la collision.

En particulier, la direction après une collision est supposée aléatoire. La vitesse après une collision est aussi aléatoire, mais sa distribution de probabilité est celle dictée par la température à la position où la collision a eu lieu. Cette dernière hypothèse est nécessaire pour dériver le coefficient de transport de chaleur. [1]

### I.1.1.2 Conductivité électrique des métaux

La loi d'Ohm permet de définir la résistance  $R$  d'un conducteur selon :

$$V = R.I \quad (1.1)$$

Où :  $I$  : est le courant et  $V$  : est la différence de potentiel aux extrémités du conducteur. L'expérience montre que la quantité  $R$  est dans la plupart des cas une constante indépendante de  $V$  et  $I$ . Le modèle de Drude a pour but d'expliquer ce comportement. La quantité  $R$  dépend de la taille et de la géométrie du conducteur. On introduit donc la résistance par unité de volume, dite résistivité, à l'aide de la relation :

$$E = \rho.J \quad (1.2)$$

Où  $E$  : est le champ électrique uniforme et constant auquel est soumis le métal et  $j$  : est la densité de courant, défini comme étant la charge par unité de temps qui traverse une unité de surface orthogonale à la direction de  $j$ .

On a donc :

$$J = -n.e.v_d \quad (1.3)$$

Où  $n$  : est le nombre volumique des électrons,  $v_d$  la vitesse moyenne de dérive.

$$J = \frac{ne^2\tau}{m} E \quad (1.4)$$

La conductivité  $\sigma$  se déduit immédiatement de la comparaison de (1.4) avec la loi d'Ohm sous la forme :

$$J = \sigma.E \quad (1.5)$$

On aura donc :

$$\sigma = \frac{ne^2\tau}{m} = ne \frac{e\tau}{m} \quad (1.6)$$

On remarque que la conductivité contient le produit volumique des électrons par leur mobilité, ainsi la résistivité électrique provient de la perturbation dans le mouvement des électrons, et la conductivité dépendrait du champ électrique, par l'intermédiaire du temps de collision.

En effet,  $E$  croit plus quand la vitesse des électrons augmente. Or, la linéarité de la loi d'Ohm ( $\sigma$  indépendant de  $E$ ) est un fait expérimental établi avec précision dans tous les conducteurs habituels. L'origine de cette contradiction réside dans la différence considérable des ordres de grandeurs de  $v_{th}$  et  $v_d$ . Par conséquent, même dans un fort champ électrique, la vitesse de dérive ne représente qu'une infime fraction de la vitesse thermique ( $v_{th}$ ). Comme la vitesse thermique ne dépend pas de  $E$ , il s'avère qu'en pratique la vitesse des électrons est indépendante du champ électrique. En d'autre terme l'établissement d'un courant, même intense, n'a qu'une incidence absolument négligeable sur la vitesse des électrons.

La linéarité de la loi d'Ohm, en tant que réalité expérimentale, n'est donc pas en contradiction avec le modèle de Drude. L'effet de non-linéarité prévu par ce modèle est plus petit que les marges d'erreur des meilleures mesures. [5]

En supposant que les électrons sont le siège d'une force moyenne  $F(t)$ . Etant donné l'impulsion moyenne  $p(t)$ , et en calculant la valeur  $p(t+dt)$ . Dans l'approximation du temps de relaxation (*collisions instantanées*), un nombre d'électrons  $\left(1 - \frac{dt}{\tau}\right)$ ; arriveront au temps  $(t + dt)$  sans avoir subi de collisions. Les électrons qui subissent au moins une collision entre  $t$  et  $(t+dt)$  sont la fraction restante  $\frac{dt}{\tau}$  et auront une vitesse aléatoire due à l'hypothèse de chaos moléculaire. En faisant l'approximation que tous ces électrons ont subi la collision exactement au temps  $t$  (approximation exacte dans la limite  $(dt \rightarrow 0)$ ), ils auront en moyenne une impulsion  $F(t)dt$  au temps  $(t + dt)$ . L'impulsion moyenne au temps  $(t + dt)$  s'obtient donc d'après la somme des deux contributions:

$$p(t + dt) = \left(1 - \frac{dt}{\tau}\right) t(p(t) + F(t)dt + 0(dt)^2) + \frac{dt}{\tau} (F(t)dt + 0(dt)^2) \quad (1.7)$$

Dans la limite  $dt \rightarrow 0$  les termes en  $dt$  d'ordre plus grand que deux tombent et un peu d'algèbre nous mène à :

$$\frac{dP}{dt} = -\frac{P}{\tau} + F \quad (1.8)$$

Où on sous entend la dépendance de  $p$  et  $F$  en  $t$ . L'équation (1.8) est un point essentiel de la théorie de Drude. Elle exprime l'impulsion moyenne en fonction du temps en présence d'une force arbitraire. En présence d'un champ externe  $E$  uniforme et stationnaire, La force est donnée par :

$F = -e.E$  et ne dépend pas du temps. La dérivée dans (1.8) est donc zéro et on obtient :

$$v = \frac{P}{m} = -\frac{e\tau}{m}E \quad (1.9)$$

On introduit cette expression dans (1.3) on obtient :

$$J = \frac{ne^2\tau}{m}E \quad (1.10)$$

A l'aide de (1.4) on obtient finalement :

$$\sigma = \frac{ne^2}{m}\tau \quad (1.11)$$

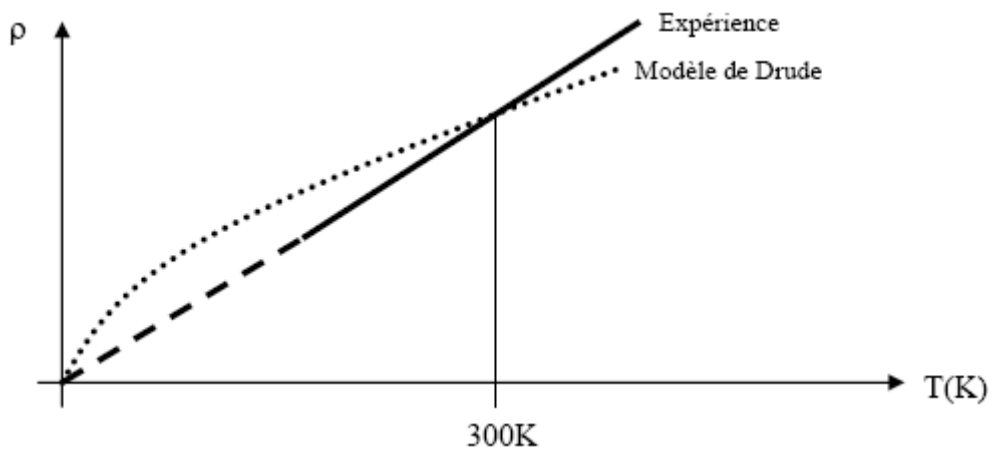


Fig. 1.1 Variation de la résistivité avec la température

Il est possible de considérer un modèle de Drude, amélioré, qui fait appel à la physique statistique, et à la physique quantique, et qui permet d'aboutir à un résultat correct de la conductivité.

- On retiendra que le modèle de Drude fait appel à la mécanique classique, qu'il est relativement simple à comprendre. On notera particulièrement le fait que ce modèle ne 'colle' pas parfaitement aux réalités physiques, notamment au niveau de la dépendance avec la température.
- De plus ce modèle a complètement échoué dans l'interprétation de la vitesse  $V_0$  en fonction de la température. On constate qu'à température ambiante  $V_0$  est de l'ordre de  $10^7$  cm/s cette estimation est fautive, car les valeurs obtenues en tenant compte de la nature quantique et du principe d'exclusion de Pauli sont de l'ordre de  $10^8$  cm/s. [1]

### I.1.1.3 Loi de distribution des vitesses des électrons libres

On appelle électrons libres des électrons supposés sans interactions les uns avec les autres et sans interactions avec les charges positives autres que celles qu'imposent les surfaces (bord du puits de potentiel) du métal. Cette définition [2] implique les restrictions suivantes :

- L'interaction, coulombienne répulsive, des électrons est dans une première approche négligée
- L'interaction de chacun des électrons de valence avec les ions est schématisée de

La manière suivante :

- La présence des ions positifs crée, dans la région d'espace occupée par le solide, un potentiel attractif pour les électrons.
- Un électron tendant à s'échapper du métal subit de la part de ce dernier un potentiel attractif dû à l'excès ainsi créé d'une charge positive.
- Les électrons sont donc piégés dans un puits de potentiel dont la forme épouse celle du solide. A part cette région globale des ions, leur action locale sur les électrons est négligée. Autrement dit, on admet que les électrons de valence éprouvent dans le métal un potentiel constant, que nous pouvons prendre égal à zéro.

On obtient cette loi en partant de la distribution de Fermi-Dirac dans laquelle on introduit les changements de variables ; les particules sont repérées par leur énergie qui peut varier de 0 à  $\epsilon_f$  :

$$\left\{ \begin{array}{l} g_r \rightarrow \frac{2d^3rd^3p}{h^3} \\ \epsilon_i \rightarrow \frac{p^2}{2m} \\ p \rightarrow mv \end{array} \right. \quad (1.12)$$

On obtient alors le nombre d'électrons contenus dans le volume élémentaire  $d^3r$  et ayant la vitesse  $\mathbf{v}$  à  $d^3v$  près :

$$d^6N_{r,v} = \frac{2m^3}{h^3} \left[ \exp\left(\frac{mv^2}{2kT} - \frac{\delta F}{kT}\right) + 1 \right] d^3rd^3V \quad (1.13)$$

Cette distribution varie peu avec la température alors on peut la considérer : A  $T=0$  elle vaut :  $\frac{2m^3}{h^3} d^3rd^3V$ , tant que l'énergie est inférieure à l'énergie de Fermi, ou de façon équivalente,

tant que la vitesse des électrons est inférieure à la vitesse de Fermi  $V_F^0 = \left(\frac{2\varepsilon_F^0}{m}\right)^{1/2}$ . Elle est nulle pour des vitesses supérieures à la vitesse de Fermi.

Bien que ces hypothèses paraissent très restrictives et peu réalistes à première vue, elles permettent de rendre compte, au moins qualitativement, des propriétés les plus caractéristiques de l'état métallique.

Pour une particule libre, l'équation de Schrödinger s'écrit :

$$H\psi = -\frac{\hbar^2}{8\pi^2m}\Delta\psi = E\psi \quad (1.14)$$

Avec :

$\hbar$  : constante de Planck,  $m$  masse de l'électron,  $\psi$  : fonction d'onde représentant la particule,

$E$  : valeur propre de l'Hamiltonien  $H$ .

Avec les conditions aux limites imposées au modèle, les solutions peuvent être mises sous la forme :

$$\psi(X, Y, Z) = \sqrt{\frac{8}{v}} \sin\left(\frac{n_1\pi X}{L}\right) \sin\left(\frac{n_2\pi Y}{L}\right) \sin\left(\frac{n_3\pi Z}{L}\right) \quad (1.15)$$

Un état est caractérisé par trois nombres quantiques  $n_1, n_2, n_3$  qui ne peuvent être que des entiers strictement positifs. L'énergie  $E$  est donnée par :

$$E(n_1, n_2, n_3) = \frac{\hbar^2}{8mL^2} (n_1^2, n_2^2, n_3^2) \quad (1.16)$$

Les fonctions d'ondes qui décrivent les états électroniques dans le modèle de Sommerfeld représentent des ondes stationnaires. Mais elles ne sont pas adaptées au problème de la conductivité. Il convient par exemple, de disposer de fonctions d'ondes décrivant le mouvement de l'électron dans une direction définie.

En mécanique classique, une particule libre est caractérisée par un vecteur quantité de mouvement  $\vec{P}$  ; en mécanique quantique, l'onde représentant cette particule sera une fonction propre de l'opérateur  $P$  :

$$\vec{P} = -i\frac{\hbar}{2\pi}\vec{\nabla} \quad (1.17)$$

$\vec{\nabla}$  : est l'opérateur de composantes  $\frac{\delta}{\delta X}, \frac{\delta}{\delta Y}, \frac{\delta}{\delta Z}$ .

Les fonctions propres sont du type :

$$\psi_K(\vec{r}) = \exp(i\vec{K}\vec{r}) \quad (1.18)$$

Et qu'il leur correspond la valeur propre :

$$\vec{P} = \frac{h}{2\pi} \vec{K} \quad (1.19)$$

$\vec{K}$ : est le vecteur d'onde de l'équation (1.18).

Ces fonctions d'ondes décrivent la particule libre, dans un milieu étendu à l'infini et ne sont pas compatibles directement avec le solide de dimensions finies. Born proposa alors de considérer le solide comme un milieu infini, construit par translations élémentaires de longueur L, et pour tenir compte de la périodicité on impose aux fonctions d'onde de vérifier :

$$\psi(X, Y, Z) = \psi(X + L, Y, Z) = \psi(X, Y + L, Z) = \psi(X, Y, Z + L) \quad (1.20)$$

Les fonctions d'ondes peuvent être normées sur le volume d'un solide et deviennent :

$$\psi_K(\vec{r}) = \sqrt{\frac{1}{v}} \exp(i\vec{K}\vec{r}) \quad (1.21)$$

Avec :

$$K_X = \frac{2\pi}{L} n_1, K_Y = \frac{2\pi}{L} n_2, K_Z = \frac{2\pi}{L} n_3 \quad (1.22)$$

L'énergie s'écrit enfin :

$$E_K = \left(\frac{h^2}{8\pi^2 m}\right) K^2 = \left(\frac{h^2}{8\pi^2 m}\right) (K_x^2 + K_y^2 + K_z^2) \quad (1.23)$$

Les états électroniques se représentent généralement par le vecteur d'onde  $\vec{K}$  dans l'espace des coordonnées :  $K_X, K_Y, K_Z$ . Dans cet espace, les surfaces iso-énergétiques sont des sphères centrées à l'origine. [5]

L'ensemble des niveaux d'énergies  $E_n$  forme une bande d'énergie possible pour l'électron. Les premiers niveaux (n petit) sont très rapprochés les uns des autres, lorsque n augmente ces niveaux s'espacent : leur densité diminue.

L'état occupé de plus haute énergie correspond à une valeur :

$$E_F = \left(\frac{h^2}{8\pi^2 m}\right) (3\pi^2 n)^{2/3} \quad (1.24)$$

Où n : est la densité électronique

$E_F$  : est l'énergie de Fermi

Le modèle de Sommerfeld donne une représentation satisfaisante de la part des propriétés électriques des métaux. Cette constatation justifie a priori l'hypothèse de ce modèle selon laquelle les électrons se déplacent librement, c'est à dire qu'ils sont soumis, dans la matière, à un potentiel constant. Ses limitations proviennent du fait qu'il ne tient pas compte de la structure des matériaux. Donc ce modèle ne permettra pas d'expliquer pourquoi tel cristal est conducteur, et tel autre est isolant ou semi-conducteur. Son usage doit être limité aux cas des métaux.

En effet le modèle de Sommerfeld fournit une base pour l'identification de théories plus spécifique. Cette base est la distribution en énergie des électrons, obtenue par le produit de deux fonctions : densité des états et la distribution de Fermi-Dirac. [3]

## I.2 Modèle de l'électron presque libre

Le modèle de l'électron libre [4] a été construit essentiellement et uniquement pour les métaux, dont il permet l'interprétation d'un certain nombre de propriétés, cependant, du point de vue de solide, il ne résoud pas le problème fondamental, à savoir la différence entre un isolant, un semi-conducteur, ou un métal. Cette distinction ne peut être obtenue qu'en réintroduisant la structure triplement périodique du réseau. L'objet de ce qui suit porte sur les conséquences de cette périodicité.

Chaque ion positif  $i$  exerce un potentiel attractif sur les électrons  $V_i(r)$ .

Le potentiel vu par les électrons est :  $V(r) = \sum_i V_i(r)$ . L'équation de Schrödinger prend la forme :

$$\left[ \frac{\hbar^2}{8\pi^2m} \Delta + V(r) \right] = E\psi(r) \quad (1.25)$$

Où  $V(r)$  : est une fonction périodique, les solutions de l'équation (1.25) appelées fonctions de Bloch sont données par :

$$\psi_K(\vec{r}) = U_K(\vec{r}) \exp(i\vec{K}\vec{r}) \quad (1.26)$$

Elles représentent des ondes planes modulées par les fonctions  $U_K$  (notés souvent  $U$ ) telle que  $U(r)$  : est de même périodicité que  $(r)$ , on écrit :

$$U(r) = \sum_l U_l \exp(i\vec{K}\vec{r}) \quad (1.27)$$

$$U_l = -\frac{8\pi^2}{h^2} \frac{U_0}{2\vec{k}\vec{l} + |l|^2} \quad (1.28)$$

Les vecteurs  $\vec{l}$  sont les vecteurs du réseau réciproque. Ceci détermine complètement les fonctions de Bloch par les coefficients de Fourier  $U_l$ , qui sont proportionnels aux  $V_l$  et ils sont d'autant plus petits que les  $V_l$  sont petits.

Les valeurs de  $\vec{K}$  qui annulent le dénominateur de l'équation (1.28) pour un vecteur  $\vec{l}$  donné ont leur extrémité dans le plan médiateur de  $\vec{l}$ .

Parmi les conséquences de cette étude structurale, il faut noter:

- L'apparition d'une série de discontinuité dans la courbe de l'énergie des électrons appelée bande interdite. Un élément est conducteur si sa structure électronique présente au moins une bande permise partiellement occupée, et par conséquent il existe des états vides au voisinage du niveau de Fermi et infiniment proches des états occupés. Un champ électrique aussi faible soit-il peut ainsi exciter les électrons. Par contre à cause du principe d'exclusion de Pauli, ce mécanisme est impossible dans une bande pleine. Toute excitation suppose une transition entre bande avec franchissement d'une bande interdite.

- La vitesse d'un électron n'est plus colinéaire à  $K$  comme pour les électrons libres. Elle est dans ce cas représentée par : (6) :

$$\vec{V} = \frac{2\pi}{h} \vec{\nabla}_K E \quad (1.29)$$

### I.3 Règle de Mathiessen

Dans le métal massif la résistivité électrique provient des perturbations dans le mouvement des électrons, provoquées par la présence de défauts cristallins. L'étude de la résistivité  $\rho$  trouve son origine dans l'interaction des électrons avec les oscillations du réseau (phonon), les imperfections (lacunes, dislocations...) et les impuretés éventuellement présentes.

L'influence de la température sur la résistivité nécessite la séparation des effets de chaque type de défaut.

Les probabilités pour un électron de subir, pendant un intervalle de temps unité, un choc avec un phonon, une impureté chimique, ou un défaut provoqué par déformation mécanique, sont au nombre de trois et sont indépendantes les unes des autres et peuvent être représentées par la relation :

$$\alpha = \alpha_{ph} + \alpha_{im} + \alpha_{d\acute{e}f} \quad (1.30)$$

Le temps de collision moyen pour chaque type de choc s'obtient par :

$$\tau_{ph} = \frac{1}{\alpha_{ph}}, \tau_{im} = \frac{1}{\alpha_{im}}, \tau_{d\acute{e}f} = \frac{1}{\alpha_{d\acute{e}f}}$$

D'où

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{ph}} + \frac{1}{\tau_{im}} + \frac{1}{\tau_{d\acute{e}f}} \quad (1.31)$$

La conductivité :  $\sigma$  se déduit de la loi d'Ohm sous la forme :  $J = \sigma \cdot E$ , on obtient donc :

$$\sigma = \frac{ne^2}{m} \cdot \tau \quad (1.32)$$

En comparant (1.31) et (1.32), on découvre que les résistivités partielles de chaque type de choc doivent être additionnées pour obtenir la résistivité totale du matériau considéré. C'est la règle de Mathiessen. [1]

$$\rho = \frac{m}{n \cdot e^2} \left( \frac{1}{\tau_{ph}} + \frac{1}{\tau_{im}} + \frac{1}{\tau_{d\acute{e}f}} \right) \quad (1.33)$$

L'équation (1.33) s'écrit encore, par définition des résistivités partielles :  $\rho_{ph}, \rho_{im}, \rho_{d\acute{e}f}$ .

La résistivité totale est de la forme :

$$\rho = \rho_{ph} + \rho_{im} + \rho_{d\acute{e}f} \quad (1.34)$$

Avec :  $\rho_{ph}$  due aux phonons,  $\rho_{im}$  due aux impuretés et  $\rho_{d\acute{e}f}$  due aux déformations.

L'expérience montre que  $\rho_{d\acute{e}f}$  et  $\rho_{im}$  sont indépendantes de la température, à condition que le nombre volumique des défauts demeure faible et que la température ne soit pas trop élevée pour agir sur les défauts.

On peut écrire la relation (1.34) sous la forme :

$$\rho = \rho_{ph}(T) + \rho_i \quad (1.35)$$

Où  $\rho_{ph}(T)$  : est la résistivité due aux phonons et  $\rho_i$  : est la résistivité due aux déformations et aux impuretés.

La résistivité électrique d'un matériau métallique est due à l'existence d'imperfections dans la structure du réseau cristallin. Elles consistent soit en des vibrations thermiques des ions, soit en des défauts du réseau qui donnent lieu à deux sortes de dispersions des électrons de conduction responsables de la résistance idéale et de la résistance résiduelle selon la loi dite de Matthiessen. Cela veut dire que les métaux, à l'état solide, étaient constitués de cristaux orientés de manière aléatoire et que la surface limite entre deux cristaux s'appelait un joint de grain et représentait

généralement une entrave au passage aisé des électrons de conduction d'un cristal à l'autre. Ce sont effectivement ces joints entre 2 cristaux adjacents qui sont responsables de la partie de la résistivité peu dépendante de la température, tandis que le volume à l'intérieur du cristal va être responsable de la partie dépendante de la température. En effet, on a précisé que, lorsque la température varie quelque peu, les limites des cristaux restent invariantes tandis qu'à l'intérieur d'un cristal l'agitation des noyaux et les orbites des électrons les plus périphériques varient, ce qui influe sur les trajectoires des électrons de conduction et donc se traduit par une variation de résistivité, celle-ci augmentant donc logiquement avec la température.

#### 1.4 Modèle quantique de Sommerfeld (1928)

##### 1.4.1 Calcul des niveaux d'énergie électroniques

Si l'on prend comme convention d'affecter la valeur zéro à l'énergie d'un électron de vitesse nulle à l'infini, l'énergie potentielle d'un électron sera négative. Du fait de la périodicité du réseau ionique, cette énergie est une fonction triplement périodique des coordonnées de l'espace, dans un but de simplification, Sommerfeld suppose qu'elle est constante, et de valeur  $-W_0$ . [3]

Ainsi l'électron « libre » dans le solide se trouve enfermé dans un puits de profondeur  $W_0$  et

$W_{\text{POTENTIELLE}}(r) = c^{\text{ste}} = -W_0$ . On va représenter cela graphiquement sur la figure 1.2.

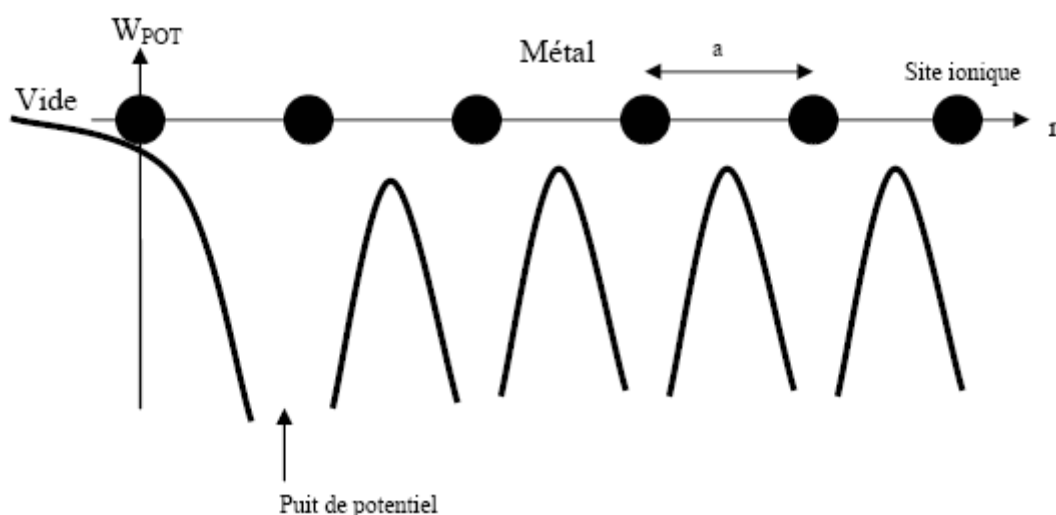


Figure 1.2 : Energie potentielle d'un électron dans un cristal unidimensionnel de paramètre « a ».

Sommerfeld a fait une approximation [3] : il a considéré l'énergie comme étant constante à l'intérieur du réseau ; ce qui donne la figure (1.3).

Sommerfeld va aussi admettre que l'équation de Schrödinger valable pour un électron en régime stationnaire, est également valable pour chaque électron du solide, soit :

$$\frac{-\hbar^2}{2m} \Delta \psi + W_{pot} \cdot \psi = W \cdot \psi \quad (1.36)$$

Ce type d'équation différentielle à coefficients constants se résoud, mais l'on va se contenter du résultat, et s'affranchir de la démonstration :

$$W_{pot} = -W_0 + \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \quad (1.37)$$

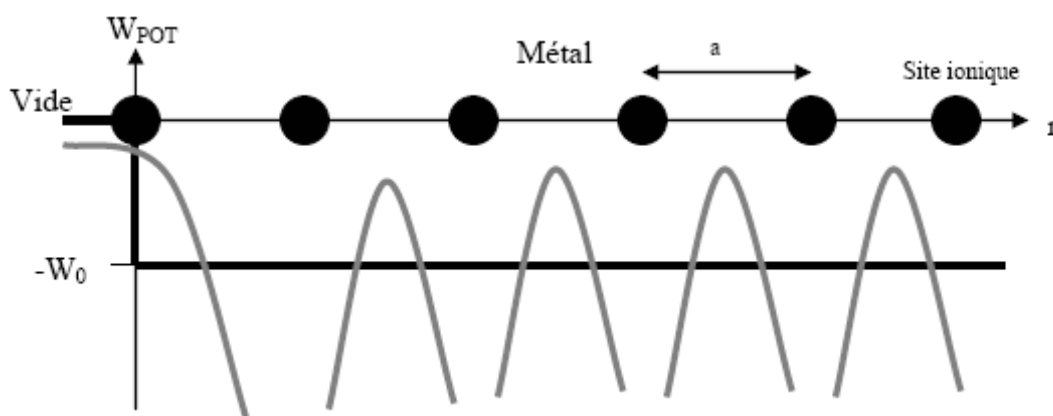


Figure 1.3 : Energie potentielle à l'intérieur du réseau.

On notera que 'k' est le vecteur d'onde, et il appartient à l'espace réciproque. On peut représenter graphiquement l'énergie électronique en fonction du module du vecteur d'onde : (figure 1.4)

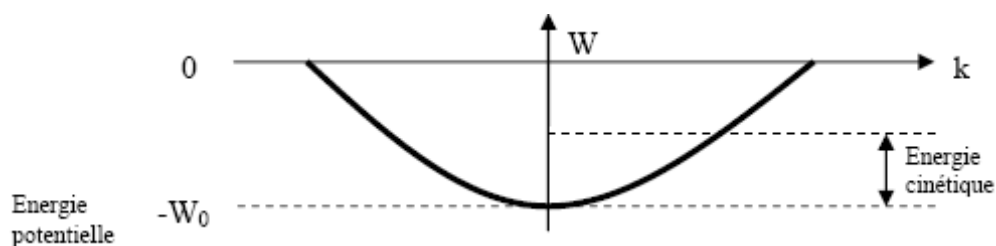


Figure 1.4 : Energie électronique en fonction du vecteur d'onde K

#### 1.4.2 Dénombrement des niveaux d'énergie électroniques

On a vu précédemment, que pour l'énergie électronique dans le métal on a une représentation théorique sous forme d'un puits de potentiel (figure 1.5).

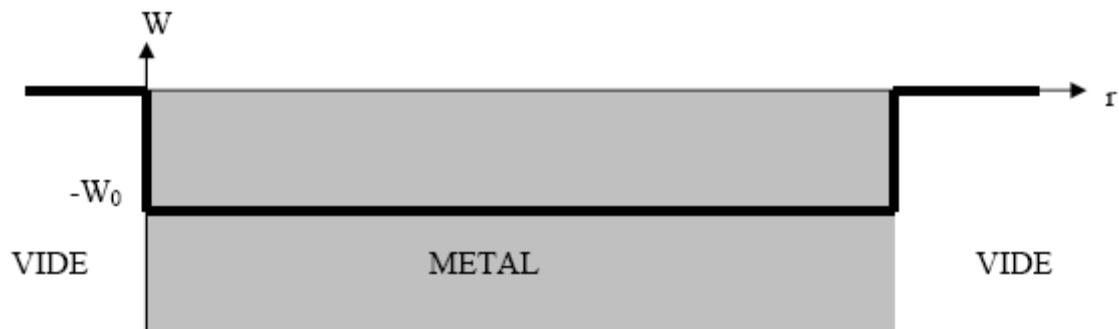


Figure 1.5 : Puits de potentiel

Si on se translate dans la structure métallique, on doit retrouver les mêmes propriétés : ce sont les conditions cycliques de Born Von Karman. La périodicité des propriétés physiques du cristal se traduit par de « bonnes » valeur du vecteur d'onde, soit :

$$\begin{cases} k_x = m_x \frac{2\pi}{L} \\ k_y = m_y \frac{2\pi}{L} \\ k_z = m_z \frac{2\pi}{L} \end{cases} \quad (1.38)$$

Il y a donc trois nombres (trois entiers) :  $m_x, m_y, m_z$ , qui sont les trois nombres quantiques. On a donc une quantification de l'énergie :

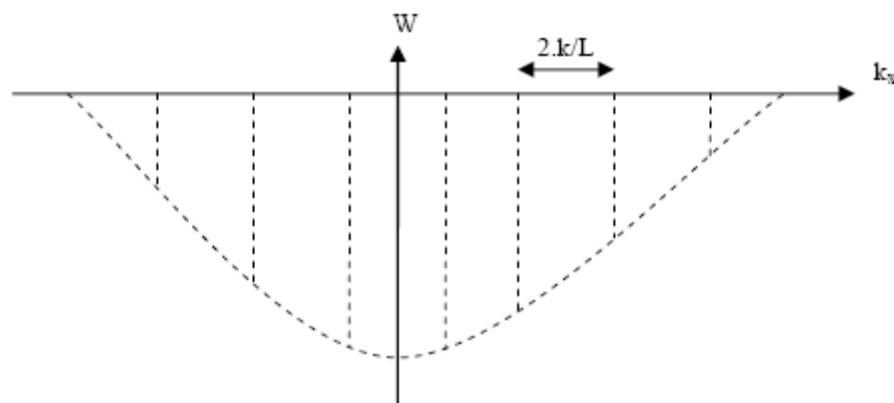


Figure 1.6 Représentation graphique de la périodicité des propriétés physiques du cristal

En remarquant que dans l'espace des  $k$ , une surface iso-énergétique ( $W = \text{constante}$ ) est une sphère, on constate qu'un « bon vecteur  $k$  » a à sa disposition un volume  $\left(\frac{2\pi}{L}\right)^3$ , ce qui donne une coquille sphérique d'épaisseur  $dk$ .

Il y a :  $\frac{4\pi k^2 dk}{(2\pi/L)^3}$  « bonnes valeurs » de  $k$ .

La densité d'états sera donc représentée par la relation :

$$N(k)dk = 2 \cdot \frac{4\pi k^2 dk}{(2\pi/L)^3} = \frac{L^3}{\pi^2} k^2 dk \quad (1.39)$$

$$N(k)dk = \frac{L^3}{2\pi^2} \left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)^{3/2} \cdot (W - W_0)^{1/2} dw = N(w) \cdot dw \quad (1.40)$$

D'où l'expression de la densité d'états, ou nombre d'états d'énergie disponible par unité de volume :

$$N(k) = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)^{3/2} \cdot (W - W_0)^{1/2} \quad (1.41)$$

On peut représenter la densité d'états en fonction de l'énergie :

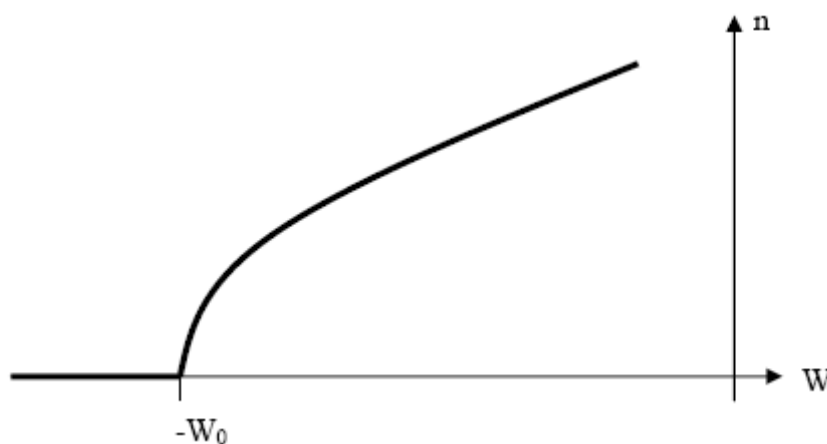


Figure 1.7 : Représentation graphique de la densité d'état  $n$  en fonction de l'énergie  $W$ .

Il est aussi possible d'écrire la densité d'états en fonction de l'énergie cinétique électronique :

$$n(E) = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)^{3/2} \cdot (E)^{1/2} \quad (1.42)$$

La courbe associée sera alors de la forme:



Figure 1.8 : Représentation graphique de la densité d'état  $n(E)$  en fonction de l'énergie  $W$ .

### I.4.3 Remplissage des niveaux d'énergie électroniques

En vertu du principe d'exclusion de Pauli, et comme l'énergie du système dans son état fondamental est minimale, chaque niveau d'énergie autorisé sera occupé par un seul électron, en commençant par le plus bas niveau. En effectuant la sommation sur une unité de volume, tous les niveaux seront remplis jusqu'à une valeur limite de l'énergie, soit  $W_{\text{LIMITE}}$ , telle que:

$$N = \frac{1}{2\pi^2} \left( \frac{2m}{\hbar^2} \right)^{3/2} \int_{-W_0}^{W_{\text{Limite}}} (W + W_0)^{1/2} dW \quad (1.43)$$

L'énergie cinétique limite se calcule alors aisément :

$$E_{\text{Limite}} = W_{\text{Limite}} + W_0 = \frac{n^*}{2m} (3\pi^2 N)^{2/3} \quad (1.44)$$

En réalité, le résultat précédent n'est valable qu'à très basse température. En effet il faut tenir compte de la statistique d'occupation des niveaux d'énergie par les électrons : c'est la statistique de Fermi-Dirac.

La probabilité d'occupation du niveau d'énergie  $W$  à la température  $T$  est donnée par la fonction de distribution de Fermi-Dirac :

$$f_{F-D}(W, T) = \frac{1}{e^{\frac{W-W_F}{k_B T}} + 1} \quad (1.45)$$

$W_F$  : Energie de Fermi

Au zéro absolue, la distribution de Fermi-Dirac se traduit par la courbe (Fig:1.9).

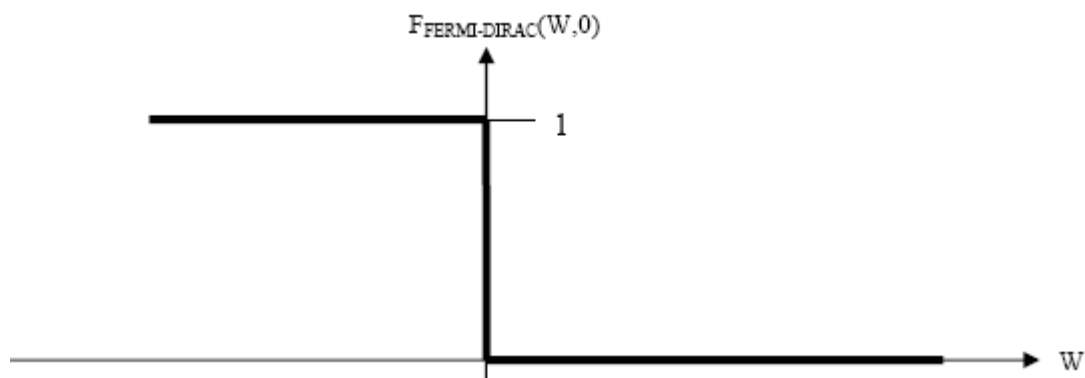


Figure 1.9 : distribution de Fermi-Dirac (la probabilité qu'un électron possède l'énergie  $W$ )

Dans le cas général, il y a un étalement de la fonction au voisinage de l'énergie de Fermi et le calcul du remplissage des niveaux d'énergie doit donc s'effectuer en écrivant :

$$N = \int_{-w_0}^{-\infty} f_{\text{Fer-Dir}}(W, T) \cdot n(W) \cdot dW \quad (1.46)$$

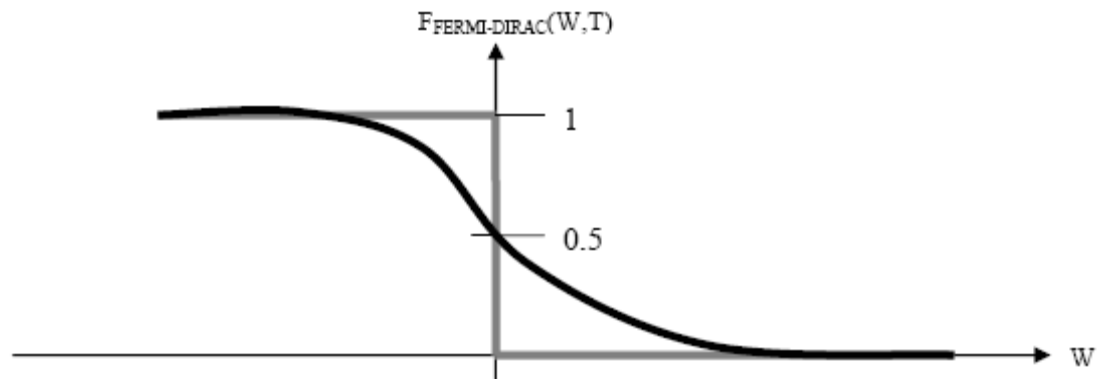


Figure 1.10 : Représentation graphique de la probabilité qu'un électron possède l'énergie  $W$

Ainsi la notion de remplissage jusqu'à une énergie limite n'est-elle valide en toute rigueur que pour le zéro absolu : on dit alors que le gaz d'électron est totalement dégénéré (il y a dégénérescence de spin pour tous les états) (figure 1.11)

Lorsque l'on se place à une température différente du zéro absolu, les états électroniques ne sont pas tous dégénérés : il y a « étalement » des états occupés au voisinage de l'énergie de Fermi, effet d'autant plus accentué que la température est élevée.

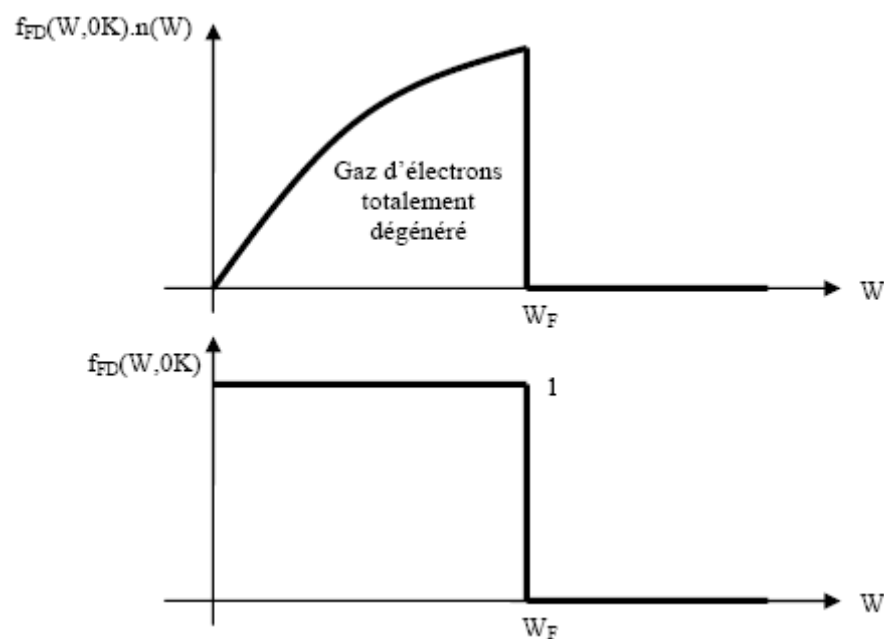


Figure 1.11 Distribution en énergie des électrons

### I.5 Equation de Boltzmann

La distribution de Boltzmann régit le comportement d'un ensemble de particules ponctuelles de nature classique :

- En équilibre thermodynamique,
- Sans interactions mutuelles sauf à l'occasion de collisions qui sont des chocs élastiques,
- Susceptibles d'être soumises à l'action d'un potentiel extérieur.

Une perturbation de la fonction de distribution  $F(\vec{K}, \vec{r}, \vec{t})$  des électrons de conduction d'un métal peut être induite par différents effets qui sont supposés être superposables ; on écrit donc :

$$\frac{dF}{dt} = \left. \frac{\delta F}{\delta t} \right|_{coll} + \left. \frac{\delta F}{\delta t} \right|_{diff} + \left. \frac{\delta F}{\delta t} \right|_{ch} \quad (1.47)$$

Où :

$\left. \frac{\delta F}{\delta t} \right|_{coll}$  : représente l'effet des collisions sur les phonons ou les électrons ;

$\left. \frac{\delta F}{\delta t} \right|_{diff}$  : rend compte des effets de diffusion ;

$\left. \frac{\delta F}{\delta t} \right|_{ch}$  : rend compte de l'effet des forces extérieures (champs E ou B).

En calculant les différentielles totales exactes à  $\vec{K} = \text{constante}$  ( $\vec{K}$  est le vecteur d'onde) ou à  $\vec{r} = \text{constante}$  (la position géométrique), on écrit :

$$\left. \frac{\delta F}{\delta t} \right|_{diff} = - \frac{\delta \vec{r}}{\delta t} \nabla_r F \quad (1.48)$$

$$\left. \frac{\delta F}{\delta t} \right|_{ch} = - \frac{\delta \vec{K}}{\delta t} \nabla_K F \quad (1.49)$$

Comme la résultante de forces extérieures vaut :

$$\vec{f} = \hbar \frac{\delta \vec{K}}{\delta t} \quad (1.50)$$

On obtient :

$$\frac{dF}{dt} = \left. \frac{\delta F}{\delta t} \right|_{coll} - \vec{V} \nabla_r F - \frac{\vec{f}}{\hbar} \nabla_K F \quad (1.51)$$

$$\text{Avec : } \vec{V} = \frac{\delta \vec{r}}{\delta t} \quad (1.52)$$

En régime stationnaire, on a :

$$\frac{dF}{dt} = 0 \quad (1.53)$$

Et l'équation de Boltzmann s'écrit :

$$\left. \frac{\delta F}{\delta t} \right|_{coll} = \vec{V} \nabla_r F + \frac{\vec{f}}{\hbar} \nabla_K F \quad (1.54)$$

Dans l'hypothèse du temps de relaxation et en partant du principe que si la cause de la perturbation cesse alors le système retourne en un certain temps à son état antérieur. Or ce retour résulte de la variation par unité de temps du nombre de collisions, ce que l'on va donc exprimer de la façon suivante :

On écrit :

$$\left. \frac{\delta F}{\delta t} \right|_{coll} = \frac{F(\vec{K}, \vec{r}, t) - F_0(K)}{\tau} \quad (1.55)$$

Où  $F_0$  est la fonction de distribution non perturbée, n'apporte pas de contribution à la densité de courant qui résulte de la seule perturbation apportée par le champ E.

Ou encore :

$$\left. \frac{\delta F}{\delta t} \right|_{coll} = -\frac{F_1(\vec{K}, \vec{r}, t)}{\tau} = \frac{\phi}{\tau} \frac{\delta F_0(\xi)}{\delta \xi} \quad (1.56)$$

Où  $F_1$  : est l'écart par rapport à l'équilibre et  $\xi$  l'énergie de l'électron.

### 1.5.1 Résolution

On suppose que :

$$\nabla_r F \approx \nabla_r F_0 \quad (1.57)$$

S'il existe un gradient de température  $\Delta T$  uniforme dans le système, nous avons :

$$\nabla_r F_0 \approx \frac{\delta F_0}{\delta T} \nabla_r T \quad (1.58)$$

L'équation (1.57) est justifiée si la déviation par rapport à l'équilibre est faible.

Calculons maintenant  $\frac{\delta F_0}{\delta T}$  :

$$\frac{\delta F_0}{\delta T} = \frac{\delta F_0}{\delta \xi} \frac{\delta \xi}{\delta Q} \frac{\delta Q}{\delta T} \quad (1.59)$$

$$\text{Avec : } Q = \frac{\xi - \xi_F}{\beta T} \quad (1.60)$$

Où  $\beta$  est la constante de Boltzmann.

$$\frac{\delta F_0}{\delta T} = \frac{\delta F_0}{\delta \xi} \beta T \left[ -\frac{1}{\beta T} \frac{\delta \xi_F}{\delta T} - \frac{\xi - \xi_F}{\beta T^2} \right] = -\frac{\delta F_0}{\delta \xi} \left[ \frac{\delta \xi_F}{\delta T} - \frac{\xi - \xi_F}{T} \right] \quad (1.61)$$

L'équation (1.27) devient alors :

$$\nabla_r F \approx -\frac{\delta F_0}{\delta \xi} \left[ \nabla_r \xi_F + \frac{\xi - \xi_F}{T} \nabla_r T \right] \quad (1.62)$$

La fonction de distribution  $F$  étant donnée par l'expression :

$$F = F_0 + F_1 \quad (1.63)$$

Et  $\nabla_K F$  s'écrit :

$$\nabla_K F = \nabla_K F_0 + \nabla_K F_1 \quad (1.64)$$

$$\nabla_K F_0 = \frac{\delta F_0}{\delta \xi} \frac{\delta \xi}{\delta K} = \frac{\delta F_0}{\delta \xi} \nabla_K \xi \quad (1.65)$$

D'où :

$$\nabla_K F = \frac{\delta F_0}{\delta \xi} \nabla_F \xi + \nabla_K F_1 \quad (1.66)$$

Dans l'équation (1.66), le terme  $\nabla_K F_1$  peut être négligé à condition que le terme  $\frac{\delta F_0}{\delta \xi} \nabla_F \xi$  n'entraîne pas une contribution identiquement nulle dans l'expression où il se trouve.

Un électron de masse  $m$ , possède une énergie :

$$\xi = \frac{p^2}{2m} \quad (1.67)$$

Où  $P$  est sa quantité de mouvement.

$$\text{Or } P = \hbar K \quad (1.68)$$

$$\text{Où : } P = mV \quad (1.69)$$

Des équations (1.67) et (1.68), on tire :

$$\nabla_K \xi = \frac{\hbar^2 K}{m} \quad (1.70)$$

Cette dernière peut encore s'écrire à l'aide de l'équation (1.69) sous la forme :

$$\nabla_K \xi = \hbar V \quad (1.71)$$

Et l'équation (1.66) devient :

$$\nabla_K F = \hbar V \frac{\delta F_0}{\delta \xi} \quad (1.72)$$

En introduisant les équations (1.56), (1.62) et (1.72) dans l'équation (1.54), nous obtenons :

$$\frac{\phi}{\tau} \frac{\delta F_0}{\delta \xi} = -\vec{V} \frac{\delta F_0}{\delta \xi} \left[ \frac{\xi - \xi_F}{T} \nabla_r T + \nabla_r \xi_F \right] + \vec{f} \vec{V} \frac{\delta F_0}{\delta \xi} + \frac{\vec{f}}{\hbar} \nabla_K F_1 \quad (1.73)$$

En présence d'un champ électrique  $\vec{E}$  et d'un champ magnétique  $\vec{B}$ , la résultante  $\vec{f}$  s'écrit :

$$\vec{f} = e(\vec{E} + \vec{V} \wedge \vec{B}) \quad (1.74)$$

Le produit  $\vec{f} \cdot \vec{V}$  se réduit à :

$$\vec{f} \cdot \vec{V} = e \vec{E} \cdot \vec{V} \quad (1.75)$$

Puisque :

$$(\vec{V} \wedge \vec{B}) \cdot \vec{B} = 0 \quad (1.76)$$

De plus :

$$\vec{f} \nabla_K F_1 = e(\vec{E} + \vec{V} \wedge \vec{B}) \nabla_K F_1 = e \vec{E} \nabla_K F_1 + e(\vec{V} \wedge \vec{B}) \nabla_K F_1 \quad (1.77)$$

$\vec{E} \nabla_K F_1$  : est un terme correspondant à la déviation de la loi d'ohm donc est sans intérêt dans notre calcul.

$$(\vec{V} \wedge \vec{B}) \nabla_K F_1 = -\vec{B} \left( \frac{1}{\hbar} \nabla_K \xi \wedge \nabla_K F_1 \right) \quad (1.78)$$

A partir de l'équation (1.56), nous obtenons :

$$\nabla_K F_1 = \nabla_K \phi \frac{\delta F_0}{\delta \xi} \quad (1.79)$$

Et l'équation (1.57) s'écrit :

$$\nabla_K F_1 = \nabla_K \phi \frac{\delta F_0}{\delta \xi} \quad (1.80)$$

L'équation (1.73) s'écrit alors :

$$\vec{f} \cdot \nabla_K F_1 = + \frac{e \vec{B}}{\hbar} (\nabla_K \xi \wedge \nabla_K \phi) \frac{\delta F_0}{\delta \xi} \quad (1.81)$$

$$\text{Où : } \nabla_r \text{ Log } T = \frac{1}{T} \nabla_r T$$

D'où la solution pour la fonction  $\phi$  :

$$\phi = \vec{V}\tau[e\vec{E} - (\xi - \xi_F)\nabla_r \text{Log } T] + \frac{e\vec{B}}{\hbar^2}[\nabla_K \xi \wedge \nabla_K \phi] \quad (1.82)$$

Cette solution sert de base pour caractériser les phénomènes de transport électronique dans un régime établi.

### 1.5.2 Solution générale

Dans le paragraphe précédent, nous avons déterminé l'équation générale en  $\phi$  donnée par l'équation (1.82) et qui en tenant compte du fait que :

$$V = \frac{\hbar K}{m} . \text{ Et } \nabla_K \xi = \hbar V \quad (1.83)$$

Peut s'écrire sous la forme :

$$\phi = \frac{\hbar K}{m}\tau[e\vec{E} - (\xi - \xi_F)\nabla_r \text{Log } T] + \frac{e\tau\vec{K}}{\hbar^2}(\vec{B} \wedge \nabla_K \phi) \quad (1.84)$$

En posant :

$$\phi = \vec{K} \cdot \vec{\phi}_1 \quad (1.85)$$

Où  $\vec{\phi}_1$  ne dépend pas de  $k$ , c'est à dire :

$$\vec{\phi} = \phi_1(E, B, \nabla T, \xi) \quad (1.86)$$

Nous obtenons une solution en  $\phi_1$  :

$$\vec{\phi} = \frac{\hbar\tau}{m}[e\vec{E} - (\xi - \xi_F)\nabla_r \text{Log } T] - \frac{e\tau}{m}(\vec{B} \wedge \vec{\phi}) \quad (1.87)$$

Si nous posons :

$$\vec{E}_1 = \vec{E} - \frac{\xi - \xi_F}{e}\nabla_r \text{Log } T \quad (1.88)$$

L'équation (1.66) s'écrira :

$$\vec{\phi} = \frac{e\tau}{m}[\hbar\vec{E}_1 - \vec{B} \wedge \vec{\phi}_1] \quad (1.89)$$

La solution de cette équation est de la forme :

$$\vec{\phi}_1 = \frac{e\tau\hbar\vec{E}_1 - \left(\frac{e\tau}{m}\right)^2\vec{B}(\vec{B}\cdot\vec{E}_1) - \frac{e\tau}{m}\vec{B}\wedge\vec{E}_1}{1 + \left(\frac{e\tau}{m}\right)^2 B^2} \quad (1.90)$$

En remplaçant  $\vec{E}$  par sa valeur, nous obtenons :

$$\vec{\phi}_1 = \frac{e\tau\hbar}{m(\vec{E}_1 + \frac{e\tau}{m} B^2)} \left[ \vec{E} - \frac{\xi - \xi_F}{e} \nabla_r \text{Log } T - \left( \frac{e\tau}{m} \right)^2 \vec{B} (\vec{B} \cdot \vec{E}_1) \right] - \left( \frac{e\tau}{m} \right)^2 \vec{B} \wedge \left( \frac{\xi - \xi_F}{e} \nabla_r \text{Log } T \right) \quad (1.91)$$

L'équation (1.91) est la solution générale de l'équation de Boltzmann dans l'approximation du temps de relaxation et avec l'hypothèse de surfaces de fermi sphériques.

Dans le cas particulier où le champ magnétique  $\vec{B}$  a même direction que le champ électrique  $\vec{E}$  et le gradient de température  $\Delta T$ , l'équation (1.91) s'écrit :

$$\vec{\phi}_1 = \frac{e\tau\hbar}{m} \left[ \vec{E} - \frac{\xi - \xi_F}{e} \nabla_r \text{Log } T \right] \quad (1.92)$$

Donc :

$$\phi = K\phi_1 = \frac{e\tau\hbar}{m} K \left[ \vec{E} - \frac{\xi - \xi_F}{e} \nabla_r \text{Log } T \right] \quad (1.93)$$

L'équation (1.75) est identique à l'équation (1.74) dans laquelle on a fait  $B=0$ .

A partir de la solution générale, nous pouvons calculer la densité de courant électrique et le flux thermique.

## I.6 Conductivité électrique

### I.6.1 Conductivité électrique dans l'approximation de l'électron libre

Il convient en général pour le calcul de la conductivité électrique d'utiliser la fonction de distribution  $F$  qui mesure le nombre  $N$  d'électrons dans l'état  $K$  à  $dK$  près dans un volume élémentaire.

$$dN_K = \left( \frac{1}{4\pi^3} \right) F_K(\vec{r}) dK dr \quad (1.94)$$

En l'absence de perturbation extérieure  $F_K$  est donnée par :

$$F_K^0 = \frac{1}{4\pi^3} \frac{1}{\exp\left(\frac{E-\mu}{KT}\right)+1} = \frac{1}{4\pi^3} f \quad (1.95)$$

$\mu$  : est le potentiel chimique du gaz d'électrons libres et  $f$  est la fonction de Fermi - Dirac.

Quand le métal est soumis à un champ électrique  $E$ ,  $F_K$  est solution de l'équation de

Boltzmann : qui pour un solide homogène se ramène à :

$$\frac{-2\pi e\epsilon}{h} \nabla_k F = \frac{F - F_0}{\tau} \quad (1.96)$$

$\tau$  : est le temps de relaxation. Il est lié au libre parcours moyen par la relation :  $\lambda = V\tau$

Où  $V$  est la vitesse de l'électron.

En l'absence d'un champ électrique la distribution  $F_0$  ne donne lieu à aucun courant. En revanche, à la distribution  $F$  correspond la densité de courant :

$$\vec{J} = -e \int \vec{V} F d\vec{K} \quad (1.97)$$

D'une façon générale, le calcul de la densité de courant  $J$  et donc de la conductivité électrique ( $\vec{J} = \sigma \vec{E}$ ) implique celui de la distribution  $F$  en passant par l'équation de Boltzmann. Dans le cas présent ce calcul est simple, en effet on peut remplacer au premier ordre  $F$  par  $F_0$  dans le membre gauche de l'équation (1.75), d'où :

$$F = F_0 + \frac{2\pi\tau e \varepsilon}{h} \nabla_k F_0 \quad (1.98)$$

En se rappelant que l'on a :  $V = \left(\frac{h}{2Pm}\right)K$  et  $E = \frac{h^2 K^2}{8\pi^2 m}$ . On aboutit finalement après calcul à la relation :

$$\sigma = \frac{ne^2\tau_F}{m} \quad (1.99)$$

$\tau_F$  : est le temps de relaxation à la surface de Fermi.

### 1.6.2 Conductivité électrique des électrons dits presque libres

En procédant de la même façon que pour les électrons libres, mais en utilisant la relation :

$$\vec{V} = \frac{2\pi}{h} \overrightarrow{grad}_k E \quad (1.100)$$

On aboutit à l'expression de la conductivité électrique des électrons dits presque libres. Elle est donnée sous forme tensorielle par la relation :

$$\sigma_{ij} = \frac{ne^2\tau_F}{m_{ij}} \quad (1.101)$$

Où :

$$\frac{1}{m_{ij}} = \frac{1}{4\pi^3 n} \left(\frac{2\pi}{h}\right)^2 \int \frac{\delta^2 E}{\delta K_i \delta K_j} dK \quad (1.102)$$

L'équation (1.102) n'est autre que la valeur moyenne, à l'intérieur de la surface de Fermi, de l'inverse des  $m_{ij}$  éléments du tenseur de masse effective.

La masse effective se réduit à un scalaire dans le cas d'une symétrie cubique et à fortiori pour le simple modèle de l'électron libre.

Il semble donc d'après les équations (1.99) et (1.101) que la conductivité électrique des métaux est proportionnelle au temps de relaxation et donc au libre parcours moyen effectué par les électrons dans le métal. Généralement ce dernier est la superposition de plusieurs libres parcours moyens qui sont dus eux aussi à plusieurs mécanismes d'interactions, (interaction électron-phonons, électrons-impureté, interaction électron-surfaces externes, ...).

Dans le travail de modélisation qui suit sera tenue en compte la limitation géométrique imposée par les surfaces externes du métal. On peut prévoir que l'effet des surfaces extérieures est imminent lorsque l'épaisseur de l'échantillon est inférieure ou du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen des électrons.[6]

### **Conclusion**

Malgré les améliorations qu'apportent, les modèles de Drude et Sommerfeld, ces derniers restent insuffisants et ne donnent pas une description satisfaisante des propriétés électroniques dans les métaux. Ces difficultés s'effacent en grande partie avec le modèle de l'électron libre dans un puits de potentiel. Mais ces théories ne sont pas achevées pour traiter le problème de conduction avec précision. Dans le chapitre qui suit, nous présenterons des modèles qui permettent d'établir des formules théoriques relatives aux phénomènes de transport électronique.

## Introduction

Dans ce chapitre nous présenterons les modèles décrivant la conductivité électrique dans les couches minces métalliques. A cet effet nous commençons d'abord par un rappel sur les notions de bases établies dans le cas des métaux massifs puis, nous aborderons la modélisation de la conductivité électrique dans les couches minces métalliques. Les premiers modèles ayant décrit les phénomènes de conduction électrique dans les couches minces métalliques ont été proposés par :

- Fuchs-Sondheimer ( 1938-1952),
- Cottey (1967),
- Mayadas-Shatzkes (1970),
- Tosser (1977).

Le formalisme mathématique de ces modèles est abordé avec certains détails, dans le but de rendre compte du transport électronique dans les couches minces métalliques, en tenant compte des différentes sources de diffusions.

### II.1 Modèle de Fuchs-Sondheimer

Dans le cas du métal massif les dimensions des échantillons sont grandes, comparées à la distance moyenne parcourue par un électron entre deux chocs consécutifs, la conductivité des électrons à la surface du conducteur revêt alors une importance secondaire.

Plusieurs mécanismes contribuant dans le calcul de la résistivité des couches minces ont été élaborés pour comprendre l'influence des paramètres physiques inclus en modélant ces mécanismes. Ce sont les collisions internes et les diffusions sur les joints de grains et sur les surfaces externes. L'un des plus anciens modèles analytiques, a été développé par Fuchs-Sondheimer[7](1936-1952). Le formalisme mathématique proposé dans ce modèle est abordé avec plus de détails, car il constitue le premier modèle pour la conductivité électrique dans le quel les effets des surfaces externes sont tenues en compte. Aucun autre modèle auparavant n'avait décrit les phénomènes de transport (résistivité électrique, pouvoir thermoélectrique effet Hall,...), dans le cadre des couches de faibles épaisseurs.

Il fournit une expression mathématique de la résistivité électrique caractérisant le comportement des couches minces métalliques soumises à un champ électrique  $E$ .

La variation de la résistivité électrique des couches minces métalliques a été traitée par le modèle de Fuchs- Sondheimer,[7] en introduisant les effets de surfaces externes. Ce modèle est basé sur la fonction de distribution de Boltzmann. De ce fait cette théorie est basée sur certaines hypothèses simplificatrices :

- On admet que le film est d'épaisseur uniforme et de structure équivalente au matériau massif et que sa température est constante.

- La probabilité qu'un électron d'être réfléchi séculairement par l'une des surfaces Lors de sa collision est  $P$ , alors que la fraction restante  $(1-P)$  est diffusée dans l'espace.

Etant donné qu'elle est d'un grand intérêt fondamental pour la compréhension de certains phénomènes particuliers de transport dans les couches minces. Phénoménologiquement, il est assez intuitif que plus l'épaisseur sera importante et plus le matériau aura un comportement proche du massif, et à l'inverse plus l'épaisseur sera réduite et plus le caractère bidimensionnel sera marqué, c'est à dire plus les surfaces limites interviendront dans les propriétés physiques [8].

### II.1.1 Le modèle de référence élaboré par F-S

Considérons un film mince soumis à un champ électrique  $E$  dans le sens de sa longueur (selon l'axe des  $x$ ). On admet que le film est d'épaisseur uniforme ( $d$ ) et de structure équivalente au matériau massif et que sa température est constante. (Figure 2.1)

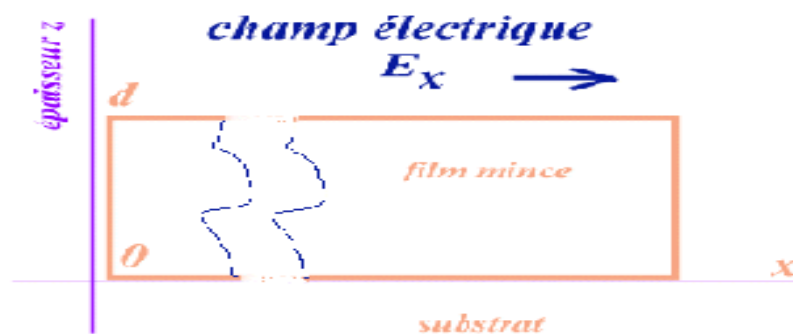


Figure 2.1 : Géométrie du modèle de Fuchs-Sondheimer.

Donc le problème est unidimensionnel et la fonction de distribution des électrons décrit par l'équation de Boltzmann qui s'exprime sous la forme :

$$\frac{(f - f_0)}{t} = \underbrace{-\left(\frac{eE}{m} \frac{df}{dv_x}\right)}_{\text{action du champ}} \underbrace{-V_z \frac{df}{dz}}_{\text{mouvement de l'électron}}$$

(2.1)

$f_0$  : est la fonction de Fermi-Dirac à l'équilibre (en absence du champ extérieur). Le premier terme du deuxième membre correspond à l'action du champ, le second fait intervenir le mouvement des électrons situés à une certaine altitude comprise entre  $z=0$  (substrat) et  $z=d$  (surface supérieure).

La fonction de distribution  $f$  étant donnée par l'expression :

$$f = f_0(v_x, v_y, v_z) + f_1(z, v_x, v_y, v_z) \quad (2.2)$$

Il en résulte :

$$\frac{df}{dv_x} = \frac{df_0}{dv_x} + \frac{df_1}{dv_x} \quad (2.3)$$

En première approximation le terme  $\frac{df_1}{dv_x}$  peut être négligé puisque le champ  $E$  est selon  $x$  (et donc  $v_x$ )

De même  $\frac{df}{dz} = \frac{df_0}{dz} + \frac{df_1}{dz}$  peut se simplifier puisque  $f_0$  ne dépend pas de  $z$ , ce qui donne :

$$\frac{df_1}{dz} + \frac{f_1}{tV_z} = -\frac{e \cdot E}{m \cdot V_z} \cdot \frac{df_0}{dv_x} \quad (2.4)$$

Cette équation différentielle s'intègre aisément et sa solution générale est du type:

$$f_1 = -\left(\frac{e \cdot E}{m \cdot V_z}\right) \frac{df_0}{dv_x} \left[1 + f(v_x, v_y, v_z) \exp^{-z/tV_z}\right] \quad (2.5)$$

Où la fonction arbitraire  $f(v)$  sera déterminée par les conditions de réflexion des électrons sur les surfaces de la couche mince. On retient l'hypothèse simplificatrice déjà énoncée, à savoir qu'une proportion  $p$  subit une réflexion spéculaire (élastique) tandis que  $(1-p)$  subit

une réflexion totalement diffuse. Supposons dans un premier temps, ainsi que l'on fait Fuchs et Sondheimer, que  $p = 0$ , c'est à dire que tous les électrons subissent une réflexion totalement diffuse ce qui revient à considérer que la surface comporte de nombreux défauts. [7]

### II.1.1.1 Réflexion diffuse

Si un électron est réfléchi de façon diffuse à la surface limite  $z = 0$  cela revient à dire que sa direction après le choc est indépendante de son angle d'incidence, elle peut être quelconque dans le  $1/2$  espace et donc la distribution de vitesse satisfait à  $f_0$ . Il en résulte que la perturbation  $f_1(v, 0)$  pour tous les électrons s'éloignant de la surface doit être nulle pour  $z=0$ .

Ce qui donne :

$$f_1(V, 0) = 0 \quad \text{pour tout } V_z > 0$$

Le même raisonnement peut être fait pour la surface limite  $z=d$

$$f_1(V, d) = 0 \quad \text{pour tout } V_z < 0$$

Si on revient à l'expression (2.1) de  $f_1$  cela conduit à :

$$\begin{cases} f(V) = -1 & \text{pour } V_z > 0 \\ f(V) = -e^{d/V_z} & \text{pour } V_z < 0 \end{cases}$$

(2.6)

Donc les fonctions de distribution perturbées des électrons sont respectivement  $f_{1+}$  pour ceux qui s'éloignent de la surface  $z = 0$  et  $f_{1-}$  pour ceux qui quittent la surface  $z = d$  :

$$\begin{cases} f_{1+} = -\left(\frac{e \cdot t \cdot E}{m \cdot V_z}\right) \frac{df_0}{dV_x} \left[1 - e^{d/V_z}\right] & \text{pour } V_z > 0 \\ f_{1-} = -\left(\frac{e \cdot t \cdot E}{m \cdot V_z}\right) \frac{df_0}{dV_x} \left[1 - e^{(d-z)/V_z}\right] & \text{pour } V_z < 0 \end{cases} \quad (2.7)$$

Connaissant la fonction de distribution en fonction de  $z$ , ce qui permet de calculer la densité de courant. La simplification de  $F_1$  permet d'aboutir à l'expression générale de la densité de

courant. En utilisant le changement de coordonnées classique on peut écrire ces expressions en coordonnées polaires, ainsi  $f_1^*$  devient :

$$f_1^* = -\left(\frac{e \cdot t \cdot E}{m \cdot V_z}\right) \frac{df_0}{dV} \left[1 - e^{-z/\lambda_0 \cos \theta}\right] \sin \theta \cos \psi \quad (2.8)$$

En utilisant la formule obtenue par Sondheimer [7], de plus à partir de la solution générale, on peut calculer la densité de courant pour traduire l'effet des surfaces externes d'une couche mince, ce qui simplifie notablement le calcul de la densité de courant J qui a pour expression :

$$J(d) = -2e \left(\frac{m}{h}\right)^3 \iiint V_x f_1^* dV_x \cdot dV_y \cdot dV_z \quad (2.9)$$

Après un calcul assez long, en introduisant les coordonnées polaires  $((r, \theta, \psi))$  dans l'espace des vitesses avec  $V_x = V \cdot \cos \theta$ . l'expression J(d) peut être exprimée par :

$$J(d) = -\frac{2e^2 m^2 E}{h^3} \int_0^\infty dV \int_0^{2\pi} \frac{\partial f_0}{\partial V} \tau_0 V^2 \cos^2 \varphi d\varphi \cdot \left[ \int_0^{\pi/2} \sin^3 \theta \left\{1 - \exp\left(-\frac{z}{\tau_0 V \cos \theta}\right)\right\} d\theta + \int_{\pi/2}^\pi \sin^3 \theta \left\{1 - \exp\left(-\frac{z}{\tau_0 V \cos \theta}\right)\right\} d\theta \right] \quad (2.10)$$

Dans un matériau massif on avait écrit  $J = \sigma \cdot E$ , il en est de même dans la couche mince. Le calcul de la conductivité électrique totale, doit être effectué pour toutes les valeurs de Z, donc de 0 à d. L'expression générale de la conductivité électrique totale :

$$\sigma_f = -\frac{1}{dE_x} \int_0^d J(z) dz = \sigma_0 \left[ 1 - \frac{3\lambda_0}{2d} \int_0^{\pi/2} \sin^3 \theta \cos \theta \left(1 - \exp\left(-d/\lambda_0 \cos \theta\right)\right) d\theta \right] \quad (2.11)$$

$\tau_0 = \frac{\lambda_0}{V}$  et  $\sigma_0$  est la conductivité du métal massif. Il est pratique de remplacer (2.8) par une formule plus simple :

$$\frac{\sigma_0}{\sigma_f} = \frac{\beta(K)}{K} \quad (2.12)$$

Où K représente l'épaisseur réduite donnée par :

$$K = \frac{d}{\lambda_0}$$

Avec :

$$\frac{1}{\beta(k)} = \frac{1}{K} - \frac{3}{8K^2} + \frac{3}{2K^2} \int_1^{\infty} \left( \frac{1}{t^2} - \frac{1}{t^3} \right) e^{-Kt} dt \quad (2.13)$$

Donc la conductivité du film est donnée par :

$$\frac{\sigma_f}{\sigma_0} = 1 - \frac{3}{8K} + \frac{3}{2K} \int_1^{\infty} \left( \frac{1}{t^2} - \frac{1}{t^3} \right) e^{-Kt} dt \quad (2.14)$$

Où  $t$  est la variable d'intégration qui est égale à  $[\cos \theta]^{-1}$  (ne pas confondre avec le coefficient de transmission).

L'équation (2.14) décrit le phénomène de conduction électronique, dans une couche mince métallique polycristalline à l'aide d'un modèle unidimensionnel. Ce modèle fait intervenir l'effet des réflexions des électrons sur les surfaces externes, en introduisant seulement un paramètre  $K$ . A cet effet deux cas limites peuvent être signalés :

- Cas des films très minces ( $K \ll 1$ ) :

$$\frac{\sigma_0}{\sigma_f} = \frac{4}{3K \ln \left( \frac{1}{K} \right)} \quad (2.15)$$

- Cas des films épais ( $K \gg 1$ ) :

$$\frac{\sigma_0}{\sigma_f} = 1 + \frac{3}{8K} \quad (2.16)$$

### II.1.1.2 Prise en compte de la réflexion spéculaire

On suppose qu'une fraction  $p$  des électrons subit une réflexion spéculaire (se disperse élastiquement) avec une vitesse inverse de  $V_z$  et le reste subit une réflexion diffuse avec une perte totale de leur vitesse de dérive. Il faut noter que le modèle Fuchs-Sondheimer proposait que le paramètre  $p$  soit indépendant de la direction des électrons arrivés aux surfaces.

La fonction de distribution des électrons quittant la surface est la somme des fonctions de distribution des électrons qui subissaient une réflexion spéculaire et une réflexion diffuse.

Donc pour  $z = 0$ , on a :

$$f_0 + f_1^+(V_z, z = 0) = p[f_0 + f_1^-(V_z, z = 0)] + (1 - p)f_0 \quad V_z > 0 \quad (2.17)$$

De la même façon pour  $z=d$  :

$$f_0 + f_1^-(V_z, z = d) = p[f_0 + f_1^+(V_z, z = d)] + (1 - p)f_0 \quad V_z > 0 \quad (2.18)$$

Ces équations sont suffisantes pour déterminer la fonction arbitraire  $f(v)$  et les fonctions de distributions résultantes sont :

$$f_1^+(V_z, z) = \frac{e\tau_0 E}{m} \frac{\partial f_0}{\partial V_x} \left[ 1 - \frac{1 - p}{1 - p \cdot \exp\left(\frac{-a}{\tau_0 V_z}\right)} \exp\left(\frac{-z}{\tau_0 V_z}\right) \right] \quad V_z > 0 \quad (2.19)$$

$$f_1^-(V_z, z) = \frac{e\tau_0 E}{m} \frac{\partial f_0}{\partial V_x} \left[ 1 - \frac{1 - p}{1 - p \cdot \exp\left(\frac{a}{\tau_0 V_z}\right)} \exp\left(\frac{d - z}{\tau_0 V_z}\right) \right] \quad V_z < 0 \quad (2.20)$$

Le calcul de la densité du courant  $J$  ( $d$ ) se détermine de façon similaire au calcul fait dans le cas de la réflexion totalement diffuse, et l'intégration sur  $z$  donne finalement :

$$\frac{\sigma_f}{\sigma_0} = \frac{\rho_f}{\rho_0} = \left[ 1 - \frac{3}{2K}(1 - p) \int_1^\infty \left( \frac{1}{t^3} - \frac{1}{t^5} \right) \frac{1 - \exp(-Kt)}{1 - p \cdot \exp(-Kt)} dt \right]^{-1} \quad (2.21)$$

La relation (2.27) donne la conductivité réduite en fonction des paramètres  $p$  et  $k$ . Dans ce cas encore, certains cas limites sont à considérer :

- Pour des films très minces ( $K \ll 1$ ) :

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} \approx \frac{4}{3} \frac{1 - p}{1 + pK \ln\left(\frac{1}{K}\right)} \quad (2.22)$$

- Pour des films épais ( $K \gg 1$ ) :

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} \approx 1 + \frac{3}{8K}(1 - p) \quad (2.23)$$

Ces formules théoriques déduites du modèle F-S permettent d'expliquer les phénomènes de transport électronique dans les couches minces métalliques : résistivités et conductivité électriques, étant d'un usage simple où les paramètres K et P apparaissent directement.

Dans la suite (chapitre 4) de ce travail nous pouvons facilement vérifier la validité de ces équations à partir des applications expérimentales sur des couches de cuivre.

## II.2 Modèle de COTTEY

La méthode proposée par Cottley[8], pour décrire les phénomènes de diffusion sur les surfaces consiste à remplacer une couche mince d'épaisseur  $d$  par une superposition de couches minces de même épaisseur (figure 2.1 (a) et (b)).

A la traversée de chaque couche élémentaire, le nombre d'électron contribuant au courant électrique est multiplié par un facteur P appelé coefficient de réflexion spéculaire et le libre parcours moyen  $\lambda_s(\theta)$  (figure 2.1(b)), correspondant à la diffusion sur les surfaces est :

$$\lambda_s(\theta) = \frac{d}{|\cos \theta| \ln P} \quad (2.24)$$

En admettant l'indépendance des phénomènes de diffusion, le libre parcours moyen total s'écrit :

$$\frac{1}{\lambda_c} = \frac{1}{\lambda_s(\theta)} + \frac{1}{\lambda_0} = \frac{1}{\lambda} \left( 1 + \frac{\lambda_0}{d} |\cos \theta| \ln \frac{1}{P} \right) \quad (2.25)$$

$\lambda_0$  : est le libre parcours moyen dans le métal massif.

L'expression de la conductivité électrique réduite obtenue par application d'un champ électrique est de la forme :

$$\frac{\sigma_f}{\sigma_0} = \frac{3}{4} \int_0^\pi \frac{\sin^3 \theta}{1 + \frac{\lambda_0}{d} |\cos \theta| \ln \frac{1}{P}} d\theta \quad (2.26)$$

Où  $\sigma_0$  est la conductivité électrique dans le métal massif, donnée par :

$$\sigma_0 = \frac{8}{3} \pi \left( \frac{m V_f}{h} \right)^3 \frac{e^2 \lambda_0}{m V_f} \quad (2.27)$$

$V_f$  : est la vitesse de Fermi et h est la constante de Planck.

En intégrant en  $\theta$ , l'équation (2.3) donne :

$$\frac{\sigma_f}{\sigma_0} = C(\mu^*) = \frac{3}{2}\mu^* \left[ \mu^* - \frac{1}{2} + (1 - \mu^{*2}) \text{Ln} \left( 1 + \frac{1}{\mu^*} \right) \right] \quad (2.28)$$

$\mu^*$  : est appelé paramètre dimensionnel du modèle de Cottey généralisé [8] ; il est défini

par : 
$$\mu^* = \frac{K}{\text{Ln} \left( \frac{1}{P} \right)} \quad (2.29)$$

K : représente l'épaisseur réduite donnée par : 
$$K = \frac{d}{\lambda_0}$$

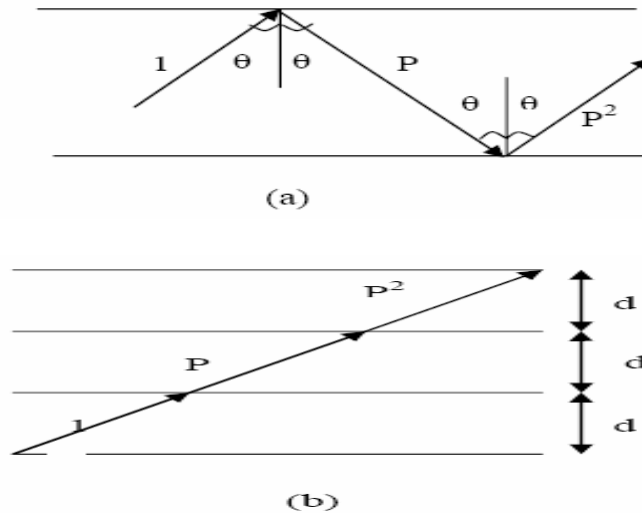


Figure 2.2 : Représentation géométrique du modèle de Cottey.

## II.3 Modèle MAYADAS SHATZKES

### II.3.1 Description mathématique du modèle.

C'est le premier modèle proposé en 1970, décrivant la conductivité électrique due aux diffusions par les joints de grains. Le modèle Mayadas-Shatzkes [9] permet de décrire la résistivité électrique dans les couches minces polycristallines ou monocristallines, il est basé sur l'écart  $F_1$  de la fonction de distribution des électrons par rapport à l'équilibre et supposé du aux effets superposés des collisions sur le réseau qui peut être représenté par l'équation :

$$F_1(\vec{k}, \vec{r}) = e \cdot \vec{E} \cdot \vec{V} \cdot \tau \frac{\partial F_0}{\partial \xi} \quad (2.30)$$

Et des collisions sur les joints de grains qui sont décrites sous la forme intégrale :

$$\int P(k, k') \cdot [F_1(k) - F_0(k')] dk$$

(2.31)

Où  $P(k, k')$  : est la probabilité qu'un état électrique  $k$  soit transformé en un état électrique  $k'$  sous l'effet de la collision sur les joints de grains.

Les joints de grains sont représentés par  $N$  plans parallèles orientés perpendiculairement à la direction du champ électrique  $\vec{E}$  avec un espacement régulier  $D_g$ , qui est évalué de manière statistique comme étant l'écart statique entre les plans réflecteurs. (Fig. :2.3)

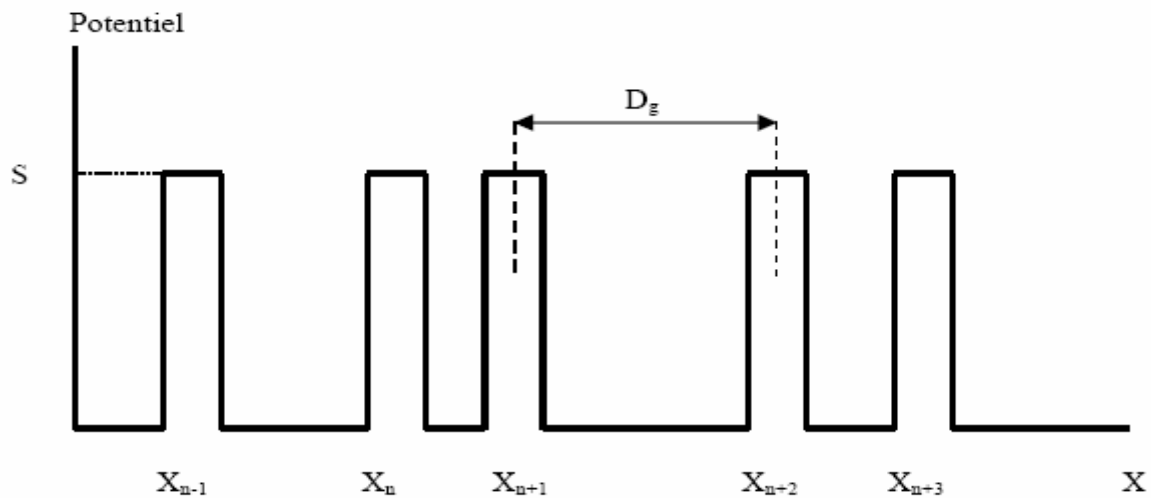


Figure 2.3 : La géométrie du modèle de Mayadas - Shatzkes.

Dans le cas d'une couche infiniment épaisse, l'équation de Boltzmann pour le transport électronique s'écrit sous la forme :

$$eE_x V_x \frac{\partial F_0(k)}{\partial \xi} = \int p(k, k') \cdot [F_1(k) - F_0(k')] dk + \frac{1}{\tau_0} F_1(k) \quad (2.32)$$

La probabilité  $p(k, k')$ , calculée dans le modèle M-S à partir de l'Hamiltonien de l'électron libre avec certaines hypothèses simplificatrices, ainsi ils ont supposés que seuls les joints de grains perpendiculaires au champ électrique donnent lieu à des collisions, l'ensemble des joints de grains perpendiculaire sont représentés par une distribution Gaussienne de plans

réflecteurs, enfin chaque plan réflecteur est représenté électriquement par un potentiel de Dirac  $V(x)$  :

$$V(x) = S\delta(X - X_n) \quad (2.33)$$

Où  $X_n$  : est la position du plan réflecteur n° n le long de l'axe Ox parallèle au champ électrique.

$V(x)$  : est considéré comme étant une perturbation de l'Hamiltonien et la probabilité  $p(k, k')$  est identifiée à la valeur du carré de l'élément de matrice :  $|\langle k|V(x)|k' \rangle|^2$ , moyenné sur l'ensemble de la distribution Gaussienne. [9]

Pour des raisons de commodité, le carré du paramètre S qui apparait dans le carré de l'élément matrice est écrit sous la forme :

$$S^2 = \frac{\hbar^2}{2m} \sim k \frac{R}{1-R} \quad (2.34)$$

Où R : est le coefficient de réflexion sur les joints de grains.

La solution de l'équation de Boltzmann est alors :

$$F_1(k) = \tau^* \cdot e \cdot E_x \cdot V_x \frac{\partial F_0(k)}{\partial \xi} \quad (2.35)$$

Où  $\tau^*$  est le temps de relaxation associé aux collisions sur le réseau et sur les joints de grains, son expression est :

$$\frac{1}{\tau^*} = \frac{1}{\tau_0} + 2F_1(|k_1|) \quad (2.36)$$

Avec :

$$F_1(|k_1|) = \frac{\alpha}{2\tau_0} \frac{k}{|k_x|} \frac{1 - \exp(-4k_x^2 S^2)}{1 + \exp(-4k_x^2 S^2) - 2\exp(-k_x^2 S^2) \cos 2k_x D_g} \quad (2.37)$$

Et

$$\alpha = \lambda_0 \mathbf{D}_g^{-1} \frac{\mathbf{R}}{1 - \mathbf{R}} \quad (2.38)$$

Où :  $\lambda_0$  est le libre parcours moyen de l'électron dans le métal massif.

$D_g$  : le diamètre de grain moyen qu'on identifie à l'écart statistique entre les plans réflecteurs. L'écart type S est obtenu en admettant que :  $k^2 S^2 \gg 1$  ; l'expression de  $F_1$  se simplifie à :

$$F(k_x) = \frac{\alpha k_F}{2\tau_0 |k_x|} \quad (2.39)$$

Et l'expression générale de la densité de courant :

$$J_x = -2e^2 \left(\frac{m}{h}\right)^3 \int \tau v_x^2 \frac{\partial F_0}{\partial \xi} E_x d^3V \quad (2.40)$$

Devient :

$$J_x = -\frac{4\pi e^2}{m} \left(\frac{m}{h}\right)^3 \left(\frac{2}{m}\right)^{3/2} E_x \int_0^\infty f(\alpha) \xi^{3/2} \frac{\partial F_0}{\partial \xi} d\xi \int_0^\pi \frac{\cos^2 \theta \sin \theta}{1 + \alpha |\cos \theta|} \quad (2.41)$$

En tenant compte du théorème d'expansion :

$$\int_0^\infty f(\xi) \frac{\partial F_0}{\partial \xi} d\xi = f(\xi_F) + \frac{1}{6} \left(\frac{\pi B T}{\xi_F}\right)^2 \frac{\partial^2 f(\xi)}{\partial \xi^2} \Big|_{\xi_F} + \frac{7}{360} \left(\frac{\pi B T}{\xi_F}\right)^4 \frac{\partial^4 f(\xi)}{\partial \xi^4} \Big|_{\xi_F} \quad (2.42)$$

Où : B : est la constante de Boltzmann.

Avec l'approximation  $\frac{\pi B T}{\xi_F} \ll 1$ , l'expression simplifiée de la densité de courant est :

$$J_x = \sigma_g E_x \quad (2.43)$$

Et

$$\sigma_g = \sigma_0 \cdot f(\alpha) \quad (2.44)$$

$$f(\alpha) = 1 - \frac{3}{2}\alpha + 3\alpha^2 - 3\alpha^3 \text{Log} \left(1 + \frac{1}{\alpha}\right) \quad (2.45)$$

Pour le calcul de la conductivité électrique lorsque la couche est mince, le modèle M-S reprend la méthode de calcul de Fuchs en remplaçant  $\tau_0$  (relatif à l'effet des phonons) par

$\tau^*$  qui, dans les conditions de validité de l'inéquation  $\frac{\pi BT}{\xi_F} \ll 1$ , s'écrit :

$$\frac{1}{\tau^*} = \frac{1}{\tau_0} \left( 1 + \alpha \frac{k_F}{k_{Fx}} \right) \quad (2.46)$$

L'expression de la conductivité de la couche est ensuite déduite des équations obtenues dans le modèle de Fuchs-Sondheimer :

$$\sigma_F = \sigma_0 - \sigma_0 A(k, p, \alpha) \quad (2.47)$$

Où

$$A(k, p, \alpha) = \frac{6(1-p)}{\pi k} \int_0^{\pi/2} d\phi \int_{-1}^1 \frac{\cos^2 \phi}{H^2(t, \phi)} \left( \frac{1}{t^2} - \frac{1}{t^3} \right) \times \frac{1 - \exp(-ktH(t, \phi))}{1 - \exp(-ktH(t, \phi))} dt \quad (2.48)$$

Avec :

$$H(t, \phi) = 1 + \alpha \cos \phi^{-1} \left( 1 - \frac{1}{t^2} \right)^{-1/2} \quad (2.49)$$

P : est le coefficient usuel de relaxation électronique spéculaire et k est l'épaisseur réduite,

c'est-à-dire  $k = \frac{d}{\lambda_0}$  où d : est l'épaisseur de la couche.

### II.3.2 Analyse critique du modèle MAYADAS-SHATZKES

Le modèle M-S [9] décrit une conduction isotropique car le choix de la direction du vecteur d'onde, ne joue aucun rôle pour la détermination de l'expression de la conductivité. Les principales propriétés de transport résultent du déplacement des électrons sous l'effet d'un champ électrique et la perturbation de ce déplacement par suite de nombreux chocs dus à la présence d'impuretés et/ou de défauts du réseau et tout particulièrement de joints de grains. Cependant ce modèle mathématiquement complexe va permettre une représentation macroscopique des couches minces et donc prévoir à partir des résultats de simulation quel serait le comportement d'une couche pour différentes épaisseurs. La grandeur qui semble bien caractériser cet effet est le libre parcours moyen des électrons de conduction. Le rapport de la conductivité (résistivité  $\rho_G$ )  $\sigma_G$  et la conductivité (résistivité  $\rho_0$ )  $\sigma_0$  peut être écrit sous la forme :

$$\frac{\sigma_g}{\sigma_0} = \left(1 + \frac{\lambda_0}{\lambda}\right)^{-1} \quad (2.50)$$

Il paraît naturel de supposer que  $\lambda$  est proportionnel à  $D$ , ce qui peut se traduire par :

$$\lambda_0 \lambda^{-1} = c_1 \alpha \quad (2.51)$$

$$\text{Avec } \alpha = \frac{\lambda_0}{D} \frac{R}{1-R} \quad (2.52)$$

En supposant que les joints de grains parallèles au champ électrique se comportent comme des réflecteurs parfaits, la couche mince peut être remplacé par un empilement de couches d'épaisseur  $D$  aux interfaces parfaitement réfléchissantes, c'est la raison pour laquelle le modèle M-S peut être considéré comme un modèle multicouche. De plus les valeurs du coefficient  $R$ , déterminées à partir des mesures, permettent simplement de représenter à une dimension des phénomènes multidimensionnels ; le modèle M-S est donc unidimensionnel.

En conséquence, il paraît peut certain de retenir une variation de  $R$  avec l'énergie ; cette variation énergétique joue un rôle plus important dans les études de conduction.

#### II.4 Le modèle statistique unidimensionnel

Les métaux à l'état solide, sont constitués de cristaux orientés de manière aléatoire et que les surfaces limites entre deux cristaux (joints de grains) représentent généralement une entrave au passage aisé des électrons de conduction d'un cristal à l'autre. Ce sont effectivement ces joints entre cristaux qui sont responsables d'une partie de la résistivité électrique. De ce fait la contribution des électrons au courant électrique se trouve alors réduite d'un facteur de transmission  $T$ , chaque fois qu'un joint de grain est franchi. La probabilité que des électrons franchissent une distance  $L$  sans être diffusés par un plan réflecteur dépend du nombre de plans réflecteurs et du coefficient de transmission  $T$ , qui décrit chaque joint de grain est de la forme :

$$P = T^N = \exp(-N \log T^{-1}) \quad (2.53)$$

En admettant que le coefficient de transmission est voisin de 1, on peut considérer que la probabilité  $P$  que des électrons franchissent une distance  $L$  sans être diffusés peut s'écrire sous la forme :

$$P = \exp\left(-\frac{L}{\lambda^*}\right) \quad (2.54)$$

Où  $\lambda^*$  : est le libre parcours moyen associé aux joints de grains.

Avec  $L = \sum_i d_i$  et  $\sum_i d_i = ND_g$ ,  $D_g$  : est l'espacement régulier entre les joints de grains.

L'expression du libre parcours moyen  $\lambda^*$ , associé aux collisions sur les joints de grains est obtenue en combinant entre les équations précédentes et peut être écrite sous la forme :

$$\lambda^* = D_g \left( \text{Log} \left( \frac{1}{P} \right) |\cos \theta| \right)^{-1} \quad (2.55)$$

Si un temps de relaxation unique peut être défini pour l'ensemble des processus de collisions, supposés superposables, un libre parcours moyen  $\lambda_g$  peut être défini par :

$$\frac{1}{\lambda_g} = \frac{1}{\lambda_0} + \frac{1}{\lambda^*} \quad (2.56)$$

$$\text{Soit } \lambda_g = \lambda_0 \left( 1 + \frac{\text{Log} \left( \frac{1}{P} \right) \lambda_0}{D} |\cos \theta| \right)^{-1} \quad (2.57)$$

Qui peut s'écrire :

$$\lambda_g = \lambda_0 \left( 1 + \frac{|\cos \theta|}{v} \right)^{-1} \quad (2.58)$$

$$\text{Avec } v = \frac{D}{\lambda_0 \text{Log} \left( \frac{1}{P} \right)} \quad (2.59)$$

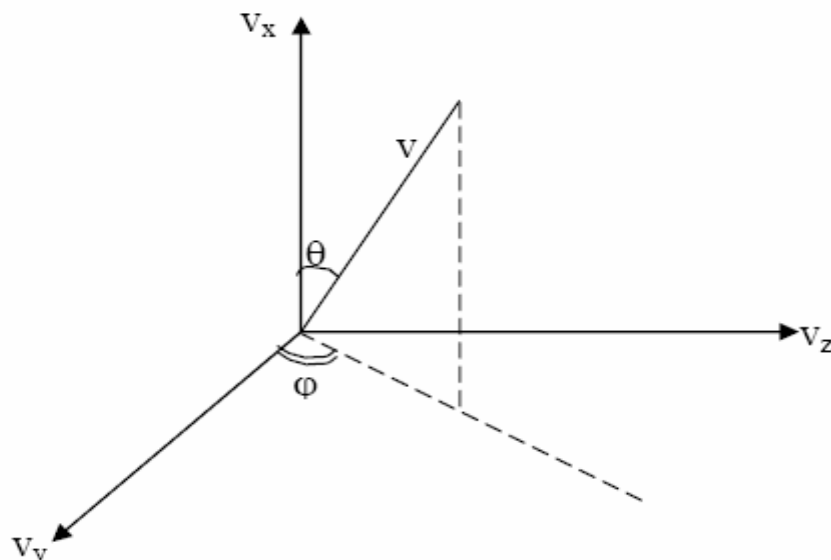


Figure 2.4 : La géométrie du modèle statistique unidimensionnel.

L'équation de Boltzmann est utilisée pour expliciter le comportement des électrons de conduction dans un métal supposé placé dans un champ uniforme. Les électrons subissent alors une accélération constante ce qui devrait conduire à une augmentation indéfinie de leur vitesse. En fait en raison des collisions qui ne manquent pas de se produire et dont le nombre par unité de temps croît avec la vitesse, on constate qu'un nouvel état d'équilibre va s'établir au bout d'un certain temps (d'ailleurs très court à notre échelle puisqu'on l'exprimera en nanosecondes) auquel correspond une nouvelle fonction de répartition  $f$  différente de la valeur  $f_0$  précisée au repos par Fermi et Dirac. Le calcul de la densité de courant  $J$  et donc de la conductivité électrique  $\vec{J} = \sigma \vec{E}$  implique celui de la distribution  $F$  en passant par l'équation de Boltzmann qui s'écrit alors :

$$-\frac{eE}{m} \text{grad}_v F_0(r) = -\frac{1}{\tau_g} F_1(K, r) - v \text{grad}_r F_1(K, r) \quad (2.60)$$

Soit :

$$\frac{e \cdot E \partial F_0}{m \partial v_x} = \frac{F_1}{\tau_g} + v_x \frac{\partial F_1}{\partial x} \quad (2.61)$$

Avec :

$$\tau_g v = \lambda_g \quad (2.62)$$

Comme le coefficient de transmission est supposé voisin de 1, l'équation définissant  $\lambda_g$  suggère que la fonction de distribution est indépendante de  $x$ . L'équation de Boltzmann se réduit alors à :

$$\frac{e \cdot E \partial F_0}{m \partial v_x} = \frac{F_1}{\tau_g} \quad (2.63)$$

La densité de courant  $J$  peut être calculée en introduisant les coordonnées polaires ( $\theta, \varphi, V$ ) dans l'équation :

$$J = -2e \left(\frac{m}{h}\right)^3 \iiint v_x F_1 dv_x dv_y dv_z \quad (2.64)$$

Avec :

$v_X = v \cos \theta$  , en utilisant les relations (2.58) et (2.63), la densité de courant s'écrit, après intégration en  $\varphi$  , sous la forme :

$$J = -\frac{4\pi e^2}{m} \left(\frac{m}{h}\right)^2 E \lambda_0 \int_0^{\infty} v^2 \frac{\partial F_0}{\partial v_X} dv \int_0^{\pi} \frac{\cos^2 \theta \sin \theta}{1 + \gamma^{-1} |\cos \theta|} d\theta \quad (2.65)$$

Puisque on a :

$$\int_0^{\infty} v^2 \frac{\partial F_0}{\partial v_X} dv = \bar{v}^2 \quad \text{et} \quad \sigma_0 = \frac{8\pi}{3} e^2 \frac{m^2 \bar{v}^2 \lambda_0}{h^3} \quad (2.66)$$

Où  $\sigma_0$  : est la conductivité du métal massif, l'expression de J devient :

$$J = \frac{3}{2} \sigma_0 E \int_0^{\pi} \frac{\cos^2 \theta \sin \theta}{1 + \gamma^{-1} |\cos \theta|} d\theta \quad (2.67)$$

La conductivité due aux joints de grains,  $\sigma_g$  est alors égale à :

$$\sigma_g = \frac{3}{2} \sigma_0 \int_0^{\pi} \frac{\cos^2 \theta \sin \theta}{1 + \gamma^{-1} |\cos \theta|} d\theta \quad (2.68)$$

D'où :

$$\frac{\sigma_g}{\sigma_0} = \frac{3}{2} - 3v^2 + 3v^2 \text{Log} \left(1 + \frac{1}{v}\right) \quad (2.69)$$

Cette expression de la conductivité électrique constitue bien un grand intérêt fondamental pour la compréhension de certains mécanismes particuliers de déplacement des électrons de conduction, cependant son caractère unidimensionnel, lui confère une application limitée. Puisque on s'intéresse aux couches très minces pour lesquelles le modèle unidimensionnel décrit est inadéquat. Phénoménologiquement, il est assez intuitif de penser, que plus

l'épaisseur sera importante et plus le matériau aura un comportement proche du massif, et à l'inverse plus l'épaisseur sera réduite et plus le caractère tridimensionnel sera marqué, c'est à dire plus les surfaces limites interviendront dans les propriétés physiques. [10]

## II.5 Le modèle tridimensionnel

Ce modèle [10] fait intervenir, d'un point de vue statistique, les effets moyens des réflexions des électrons sur trois séries de plans perpendiculaires aux axes X, Y et Z. Si un champ électrique E est appliqué suivant l'axe X, les contributions respectives des réflexions électroniques sur les plans parallèles et perpendiculaires à E, peuvent être déterminés sans hypothèse sur les contributions des joints de grains. En effets les joints de grain dans les couches minces métalliques polycristallines peuvent être représentés par trois séries de barrières de potentiel planes perpendiculaires respectivement aux axes X, Y, et Z.

Ces plans pourraient être définis géométriquement de façon statistique, par un espacement moyen D.

Le calcul du libre parcours moyen lié à la diffusion par les joints de grains peut être calculé de façon statistique à partir de la distance moyenne D qui sépare deux plans consécutifs.

### II.5.1 Présentation du modèle

La distance D séparant deux plans consécutifs, mesurée suivant les directions Ox, Oy et Oz a la même valeur quelque soit la direction considérée. Si on admet que le grain moyen est cubique en coordonnées sphériques  $(r, \theta, \psi)$ , la trajectoire de l'électron est déterminée par les angles  $\theta$  et  $\psi$ . Si  $l_x$ ,  $l_y$  et  $l_z$  sont les distances mesurées entre deux points successifs de la trajectoire de l'électron appartenant aux plans perpendiculaires respectivement aux axes X, Y, et Z (Figures : 3.5 (a),(b) et (c)). [10]

On peut écrire :

$$l_x = D|\cos \psi|^{-1}|\sin \theta|^{-1} \quad (2.70)$$

$$l_y = D|\sin \psi|^{-1}|\sin \theta|^{-1} \quad (2.71)$$

$$l_z = D|\cos \theta|^{-1} \quad (2.72)$$

Pour chaque direction définie par les angles  $\theta$  et  $\psi$ , on désigne par  $t$  la fraction d'électrons qui sont transmis avec conservation du vecteur d'onde  $k$  à travers les plans réflecteurs, et que la fraction  $(1-t)$  restante des électrons est diffusée uniformément dans tout l'espace, donc ne contribue plus au courant.

La probabilité totale qu'a un électron de parcourir une distance  $l$  sans être diffusé suit une loi exponentielle et peut s'écrire sous la forme :

$$P = \exp(-l\lambda_g^{-1}) \quad (2.73)$$

Où  $\lambda_g$  : est le libre parcours moyen relatif à l'effet de joint de grain.

$$\text{Soit } P = t^{N_x + N_y + N_z} \quad (2.74)$$

Où  $N_x$ ,  $N_y$  et  $N_z$  sont donnés par les relations :

$$\begin{cases} N_x = l.l_x^{-1} \\ N_y = l.l_y^{-1} \\ N_z = l.l_z^{-1} \end{cases} \quad (2.75)$$

La trajectoire de l'électron est définie par les angles  $\theta$  et  $\psi$ , celui-ci parcourt les distances  $l_x$ ,  $l_y$  et  $l_z$  entre chaque plan réflecteur perpendiculaire respectivement aux axes  $x$ ,  $y$  et  $z$ .

$$\text{D'où : } P = t^{[l.l_x^{-1} + l.l_y^{-1} + l.l_z^{-1}]} \quad (2.76)$$

En comparant les deux expressions de  $P$  et en remplaçant  $l_x$ ,  $l_y$  et  $l_z$  par leurs valeurs, on obtient l'expression :

$$\lambda_g^{-1} = D^{-1} \left( \frac{\log 1}{t} \right) [|\cos \psi| |\sin \theta| + |\sin \psi| |\sin \theta| + |\cos \theta|] \quad (2.77)$$

Avec l'approximation :  $|\cos \psi| + |\sin \psi| \approx c$ , où  $c$  : est une constante égale à  $\frac{4}{\pi} = 1,27$ , la relation (3.24) devient :

$$\lambda_g^{-1} \approx D^{-1} \left( \frac{\log 1}{t} \right) [c|\sin \theta| + |\cos \theta|] \quad (2.78)$$

Ce qui permet d'écrire  $\lambda_g^{-1}$  sous deux formes différentes :

$$\lambda_g^{-1} \approx D^{-1} \left( \frac{\log 1}{t} \right) [c^2 + (1 - c)|\cos \theta|] \quad (2.79)$$

$$\lambda_g^{-1} \approx D^{-1} \left( \frac{\log 1}{t} \right) [c + (1 - c)|\sin \theta|] \quad (2.80)$$

### II.5.2 Conductivité électrique des couches minces

La détermination de la résistivité (conductivité) due aux joints de grains proposée par le modèle M-S [9] est basée sur un traitement mathématiques à partir des équations traduisant les transitions des vecteurs d'onde, ce procédé de calcul exige une représentation géométrique, complexe du phénomène, en plus une représentation régulière des plans réflecteurs entraîne une résistance nulle a été démontrée par les auteurs du modèle. Plusieurs phénomènes peuvent intervenir lors du calcul de la résistivité d'une couche mince, chacun d'eux est traduit par un libre parcours moyen. À cet effet sont considérés les collisions internes (phonons), les diffusions sur les joints de grains et sur les surfaces externes. (Figure : 2.5)

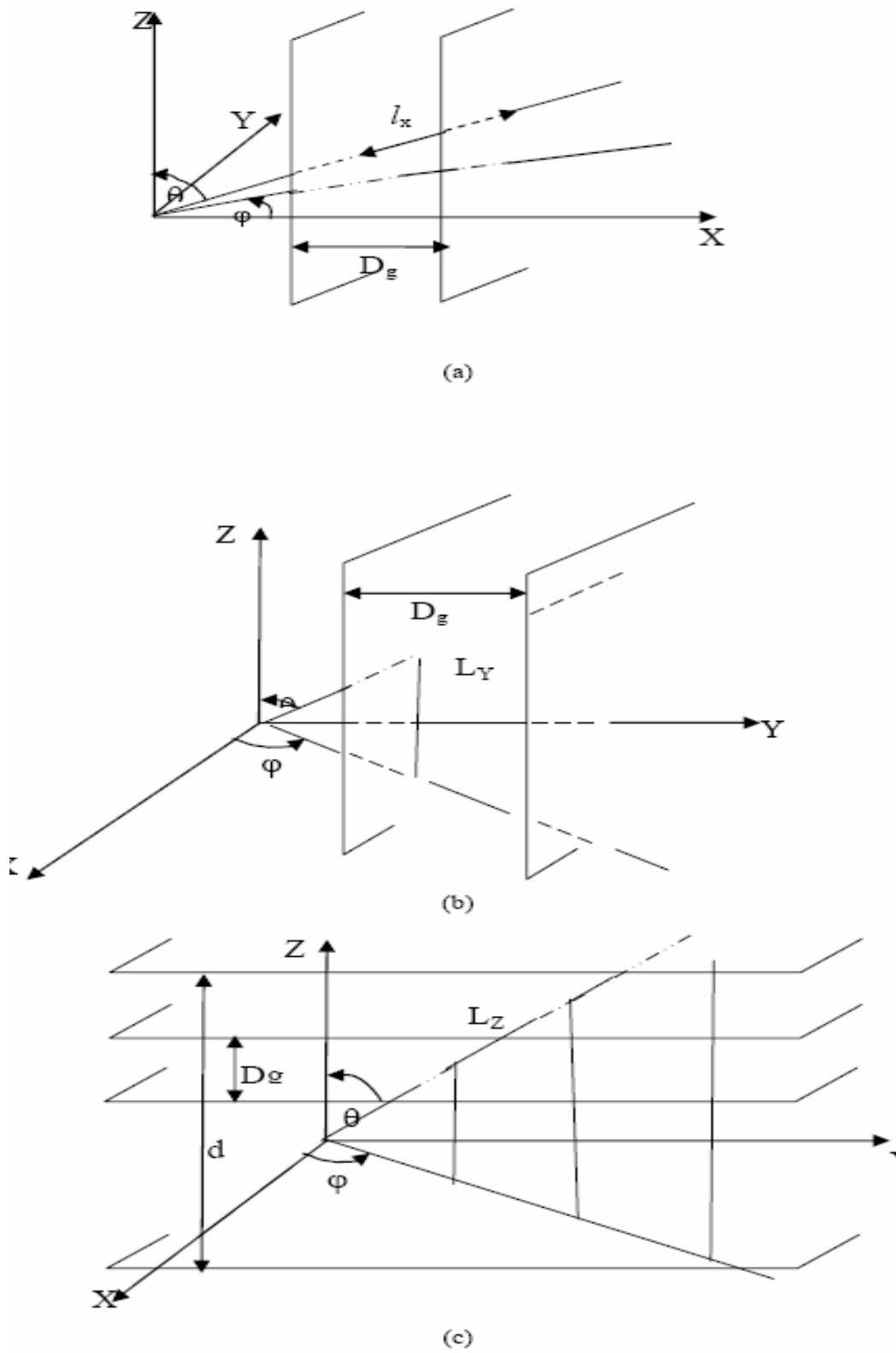


Figure 2.5 : La géométrie du modèle statistique tridimensionnel.

### II.5.2.1 Expression du libre parcours moyen

Pour déterminer le libre parcours moyen total des électrons, les trois phénomènes électroniques sont supposés donner des effets indépendants (règle de Matthiessen), le libre parcours moyen résultant ( $\lambda$ ) est donné par la relation :

$$\lambda^{-1} = \lambda_0^{-1} + \lambda_g^{-1} + \lambda_s^{-1} \quad (2.81)$$

Où  $\lambda_0$  est le l.p.m des électrons dans le métal massif,  $\lambda_g$  pour la diffusion sur les joints de grains et  $\lambda_s$  pour les surfaces externes. Le libre parcours moyen qui caractérise la diffusion sur les joints de grains est donné par l'expression suivante :

$$\lambda_g^{-1} \approx D^{-1} \left( \text{Log} \frac{1}{\tau} \right) [c^2 + (1 - c)|\cos \theta|] \quad (2.82)$$

Le libre parcours moyen relatif à la collision sur les surfaces externes peut s'écrire sous la forme :

$$\lambda_s^{-1} = d^{-1} \text{Log} \left( \frac{1}{p} \right) |\cos \theta| \quad (2.83)$$

Où  $p$  est la probabilité qu'a un électron de subir une diffusion et  $d$  est l'épaisseur de la couche selon la direction  $O_z$ .

En remplaçant  $\lambda_g$  et  $\lambda_s$  par leurs valeurs dans l'équation (2.81), on obtient :

$$\lambda^{-1} = \lambda_0^{-1} \left[ 1 + D^{-1} \lambda_0 \left( \text{Log} \frac{1}{\tau} \right) [c^2 + (1 - c)|\cos \theta|] + \lambda_0 d^{-1} \text{Log} \left( \frac{1}{p} \right) |\cos \theta| \right] \quad (2.84)$$

### II.5.2.2 Expression générale de la conductivité totale

L'équation de Boltzmann [8] décrivant les phénomènes de transport dans une couche mince métallique, soumise à un champ électrique  $E$  dirigé selon l'axe des  $X$  s'écrit :

$$\frac{eE_x}{m} \frac{\partial f}{\partial v_x} = \frac{f - f_0}{\tau} \quad (2.85)$$

Où  $\tau$  est le temps de relaxation qui s'exprime en fonction du libre parcours moyen  $\lambda$  et de la vitesse de l'électron  $V$  suivant la relation :

$$\tau = \frac{\lambda}{V} \quad (2.86)$$

En posant  $f = f_0 + f_1$ , où  $f_0$  est la fonction de Fermi-Dirac, l'équation (3.85) a pour solution :

$$f_1 = \frac{eE}{mV^2} V_x \lambda \quad (2.87)$$

La densité de courant électrique  $J$  est donnée par la relation :

$$J = -2e \left(\frac{m}{h}\right)^3 \iiint V_x f_1 dV_x dV_y dV_z \quad (2.88)$$

En coordonnées sphériques ( $V, \theta, \psi$ ) cette équation devient :

$$J = 2e \left(\frac{m}{h}\right)^3 V^2 \lambda_0 E \int_0^{2\pi} \cos^2 \psi d\psi \int_0^\pi \frac{\sin^3 \theta d\theta}{\lambda_0 \lambda^{-1}} \quad (2.89)$$

La conductivité électrique de la couche mince  $\sigma_F$  définie par la relation :  $\sigma_F = \frac{J}{E}$ , s'écrit donc :

$$\sigma_F = 2e \left(\frac{m}{h}\right)^3 V^2 \lambda_0 \int_0^{2\pi} \cos^2 \psi d\psi \int_0^\pi \frac{\sin^3 \theta d\theta}{\lambda_0 \lambda^{-1}} \quad (2.90)$$

Or la conductivité électrique du métal massif  $\sigma_0$  est égale à :

$$\sigma_0 = \frac{8\pi m^2 V^2 \lambda_0}{3 \lambda^3} \quad (2.91)$$

De plus  $\int_0^{2\pi} \cos^2 \psi d\psi = \pi$  ; ce qui entraîne :

$$\frac{\sigma_F}{\sigma_0} = \frac{3}{4} \int_0^{2\pi} \frac{\sin^3 \theta d\theta}{\lambda_0 \lambda^{-1}} \quad (2.92)$$

D'où :

$$\frac{\sigma_F}{\sigma_0} = \frac{3}{4} \int_0^\pi \frac{\sin^3 \theta d\theta}{1 + D^{-1} \lambda_0 \left(\text{Log} \frac{1}{r}\right) [c^2 + (1-c)|\cos \theta|] + d^{-1} \lambda_0 \left(\frac{\log 1}{p}\right) |\cos \theta|} \quad (2.93)$$

En posant  $\nu = D \lambda_0^{-1} \text{Log} \left(\frac{1}{r}\right)^{-1}$  et  $\mu = d \lambda_0^{-1} \text{Log} \left(\frac{1}{p}\right)^{-1}$ .

Deux paramètres phénoménologiques qui caractérisent le grain et l'effet dimensionnel respectivement de la couche.

L'expression de la conductivité [8] s'écrit sous la forme :

$$\frac{\sigma_F}{\sigma_0} = \frac{3}{4} \int_0^\pi \frac{\sin^3 \theta d\theta}{1 + \frac{c^2}{v} + \left(\frac{1-c}{v} + \frac{1}{\mu}\right) |\cos \theta|} \quad (2.94)$$

Après intégration, on obtient :

$$\frac{\sigma_F}{\sigma_0} = \frac{3}{2} b \left[ a - \frac{1}{2} + (1 - a^2) \text{Log} \left( 1 + \frac{1}{a} \right) \right] \quad (2.95)$$

$$\text{Où } a = \left( 1 + \frac{c^2}{v} \right) b \quad (3.95.a)$$

Et  
(3.95.b)

$$b = \left( \frac{1}{\mu} + \frac{1-c}{v} \right)^{-1}$$

Deux cas limites peuvent être notés, à savoir :

Si la couche est suffisamment épaisse, les réflexions sur les surfaces externes sont négligeables, alors :

$$\mu \gg 1 \text{ et } \frac{\sigma_F}{\sigma_0} \mapsto \frac{\sigma_g}{\sigma_0}$$

Où  $\sigma_g$  est la conductivité électrique due uniquement aux joints de grains.

$$\frac{\sigma_g}{\sigma_0} = \frac{3}{2} b_g \left[ a_g - \frac{1}{2} + (1 - a_g^2) \text{Log} \left( 1 + \frac{1}{a_g} \right) \right] \quad (2.96)$$

$$\text{Avec } a_g = \frac{v + c^2}{1 - c} \text{ et } b_g = \frac{v}{1 - c}$$

L'autre cas limite est le cas où  $\gamma \gg 1$ , la conductivité est due seulement aux effets de surface est s'écrit :

$$\frac{\sigma_s}{\sigma_0} = \frac{3}{2} \mu \left[ \mu - \frac{1}{2} + (1 - \mu) \text{Log} \left( 1 + \frac{1}{\mu} \right) \right] \quad (2.97)$$

Car  $a=b$  et  $b=\mu$ , quand les grains sont très épais ou très transparents.

## Conclusion

Le modèle tridimensionnel tenait compte à la fois de la réflexion sur les joints de grains et sur les surfaces externes. Dans la plus part des cas, les formules théoriques relatives aux

phénomènes de transport électronique dans les couches minces métalliques (conductivité et résistivité électriques), conduisent à la conclusion suivante :

Si la couche est suffisamment épaisse, les effets des réflexions sur les surfaces externes sont négligeables et la conductivité est due aux joints de grains.

Quand les grains sont très épais ou très transparent la conductivité est due uniquement aux effets de surfaces.

Sur le plan théorique on peut noter que les méthodes de modélisation proposées par chaque modèle conduisent à une formulation qui ne traite que des cas traduisent soit les collisions internes soit l'effet des diffusions sur les surfaces externes, soit l'effet des diffusions sur les joints de grains. En supposant que ces trois phénomènes électroniques donnent des effets indépendants pour la détermination de la résistivité électrique dans les couches minces métalliques.

Dans le chapitre qui suit nous allons présenter quelques éléments de base qui permettent de déduire le formalisme mathématique décrivant le coefficient de température de la résistivité (c. t. r.), dans les couches minces métalliques.

## Introduction

Dans ce chapitre nous allons présenter quelques éléments de base qui permettent d'aborder l'étude théorique des modèles les plus utilisés permettant de déduire le formalisme mathématique décrivant le coefficient de température de la résistivité (c. t. r.), dans les couches minces métalliques.

A cet effet, nous avons utilisé les expressions mathématiques relatives aux différents modèles présentés dans les chapitres précédents permettant de déduire celles du coefficient de température de la résistivité.

Une étude comparative ainsi que l'interprétation de certains résultats expérimentaux sera donnée dans le quatrième chapitre de ce mémoire consacré aux applications expérimentales et analyse numérique du c. t. r.

### III.1 Hypothèses et définitions

Le coefficient de température de la résistance de valeur  $R_f$  est par définition [10,11], donné par l'équation :

$$\beta_f = \frac{1}{R_f} \frac{dR_f}{dT} \quad (3.1)$$

Où  $R_f$  s'exprime en fonction de la résistivité  $\rho_f$  de l'épaisseur  $d$ , de la longueur  $L$  et de la largeur  $w$  de la couche mince métallique à l'aide de la relation :

$$R_f = \frac{\rho_f L}{wd} \quad (3.2)$$

De nombreux auteurs [12,13] ont établi des formules dans lesquelles on tient compte des dilatations linéaires de la couche mince en épaisseur, en longueur et en largeur et aussi celles du substrat.

Lorsque le coefficient de dilatation linéaire du substrat (support de la couche) est différent de celui de la couche mince, il y'a lieu d'introduire des termes supplémentaires afin de prendre en considération les différences de dilatation entre la couche et le substrat et qui conduisent à des contraintes mécaniques. Les corrections dues aux dilatations géométriques sont en général inférieures à  $10^{-4}K^{-1}$  et le terme dû aux contraintes thermiques est environ 100 fois plus faible que le terme  $\beta_f$  ; aussi le plus souvent on assimile le coefficient de température de la résistance au coefficient de température de la résistivité, lorsque celui-ci n'a pas de très faibles valeurs, on écrit dans ce cas :

$$\beta_f = \frac{1}{\rho_f} \frac{d\rho_f}{dT} \quad (3.3)$$

### III.2 Différentiation logarithmique :

Les hypothèses nécessaires pour le calcul du coefficient de la température de la résistivité dans les couches minces métalliques doivent être clairement définies. Le calcul est effectué pour des températures  $T$  suffisamment hautes, de sorte que le libre parcours moyen associé devienne une fonction linéaire de la température [10].

- **C. t. r. dans le métal massif**

Généralement on suppose que la théorie des bandes dans les métaux est valable et que le nombre d'électrons de conduction est indépendant de la température, on obtient alors:

$$\rho_0 \lambda_0 = \text{constante} \quad (3.4)$$

Par conséquent:

$$\frac{d\rho_0}{\rho_0} = - \frac{d\lambda_0}{\lambda_0} \quad (3.5)$$

En supposant que le nombre d'électrons par unité de volume est indépendant de la température, dans le domaine de température considéré (autour de la température ambiante), les variations thermiques du libre parcours moyen sont alors très voisines de la conductivité électrique et le coefficient de température de la résistivité (c. t. r.) du métal massif s'écrit :

$$\frac{1}{\beta_0} = - \frac{1}{\sigma_0} \frac{d\sigma_0}{dT} = - \frac{1}{\lambda_0} \frac{d\lambda_0}{dT} \quad (3.6)$$

$$\beta_0 = - \frac{d \text{Log} \sigma_0}{dT} = - \frac{d \text{Log} \lambda_0}{dT} \quad (3.7)$$

$$\text{Où } \beta_0 = - \frac{1}{\lambda_0} \frac{d\lambda_0}{dT} \quad (3.8)$$

Il convient alors dans la limite des hautes températures de définir le coefficient de température de la résistivité relatif au métal massif, qui s'écrit sous la forme :

$$\frac{1}{\rho_0(T_0)} \frac{d\rho_0}{dT} = \beta_0(T_0)$$

(3.9)

Pour une température de référence  $T_0$ , habituellement prise en tant que  $T = 273^\circ\text{K}$ .

- **Le c. t. r. dans les couches minces métalliques**

Le coefficient de température de la résistivité de la couche mince métallique est représenté par l'expression :

$$\beta_F = \frac{1}{\rho_F} \frac{d\rho_F}{dT} = \frac{d\text{Log}\rho_F}{dT} \quad (3.10)$$

Or  $\rho_F = \frac{1}{\sigma_F}$  ,

$$\text{Donc : } \beta_F = -\frac{d\text{Log}\rho_F}{dT} \quad (3.11)$$

- **Le c. t. r. réduit**

On appelle coefficient de température de la résistivité électrique réduit  $\frac{\beta_f}{\beta_0}$  le rapport entre le c. t. r. dans la couche mince métallique ( $\beta_f$ ) et celui du métal massif ( $\beta_0$ ).

Les effets dimensionnels qui apparaissent dans les calculs de résistivité électrique tel que montré dans les chapitres précédents vont influencer aussi les calculs du c. t. r.

Nous essayerons dans ce chapitre de montrer l'essentiel du formalisme mathématique obtenu dans le cadre des modèles théoriques précédemment cités.

Il convient de noter ici que le c. t. r. dans les couches minces métalliques sera influencé par les effets dimensionnels de manière similaire à celle observée dans le cas des couches minces métalliques. Ces effets seront examinés à partir des différents modèles présentés dans les chapitres précédents.

### III.3 Le c. t. r. dans le modèle F-S effectif

Les expressions du coefficient de température de la résistivité dans les couches minces métalliques peuvent être obtenues en tenant compte des hypothèses citées auparavant et en utilisant les expressions mathématiques présentées dans les chapitres précédents.

Dans ce paragraphes nous allons examiner les expressions mathématiques du c .t. r. déduites du modèles de Fuchs-Sondheimer ; en utilisant le modèle F-S basé sur le temps de relaxation effectif.

- **Rappel du modèle de Mayadsa-Shatzkes effectif**

Mayadas et Shatzkes [9] avaient introduit de manière empirique pour la première fois la notion de libre parcours moyen effectif décrivant les effets de diffusions par les phonons et les joints de grains dans les structures polycristallines. Bien que les bases théoriques de ce modèle ne fussent pas clairement établies les résultats expérimentaux avaient montré la validité du modèle.

Ce modèle est basé sur l'utilisation d'un libre parcours moyen noté  $\lambda_g$ , appelé libre parcours moyen effectif, défini par :

$$\lambda_g = \lambda f(\alpha) \quad (3.12)$$

L'utilisation d'un libre parcours moyen effectif  $\lambda_g$ , conduit au remplacement du temps de relaxation  $\tau_0$ , par un temps de relaxation effectif  $\tau_0 f(\alpha)$ , en conséquence l'expression de la conductivité électrique réduite est aussi remplacée par  $\frac{\rho_f}{\rho_g}$ , donnée par :

$$\rho_f / (\rho_0 f(\alpha)) = 1 / [1 - A(K, P)] \quad (3.13)$$

Le terme  $[1 - A(K, P)]$  représente les effets dimensionnels selon la fonction de Fuchs-Sondheimer.

L'épaisseur réduite  $K_g$ , dans ce cas est définie par :

$$K_g = \frac{K}{f(\alpha)} \quad (3.14)$$

En utilisant la méthode de différentiation logarithmique, nous pouvons déduire une expression mathématique pour le c. t. r. en utilisant la formule de la conductivité électrique donnée par le modèle de F-S effectif, on écrit :

$$\frac{d\sigma_f}{\sigma_f} - \frac{d\sigma_0}{\sigma_0} = \frac{1}{f(\alpha)} \frac{df(\alpha)}{d\alpha} \frac{d\alpha}{d\lambda_0} d\lambda_0 + \frac{1}{1-A(k_g)} \frac{d(1-A(k_g))}{dk_g} \frac{dk_g}{d\lambda_0} d\lambda_0$$

(3.15)

Avec

$$\frac{dk_g}{k_g} = \frac{dk}{k} - \frac{df(\alpha)}{f(\alpha)}$$

(3.16)

Conformément aux hypothèses émises au début de ce chapitre c'est-à-dire en négligeant les dilatations thermiques de l'épaisseur de la couche mince métallique  $d$  et celles du diamètre

de grains  $D_g$  ; nous pouvons déduire le rapport  $\frac{\beta_f}{\beta_0}$  du c. t. r. qui s'écrit [14] :

$$\frac{\beta_f}{\beta_0} = \left[ 1 + \frac{g(\alpha)}{f(\alpha)} \right] \left[ 1 + \frac{-A(k_g) + -B(k_g)}{1 - A(k_g)} \right]$$

(3.17)

Où  $A(k_g)$  et  $B(k_g)$  sont identiques aux équations habituelles du modèle F-S données par les relations :

$$A(K) = \frac{3}{2K} (1-P) \int_1^{\infty} \left( \frac{1}{t^3} - \frac{1}{t^5} \right) \frac{1 - e^{-Kt}}{(1 - P e^{-Kt})^2} dt$$

(3.18)

$$B(K) = \frac{3}{2} (1-P)^2 \int_1^{\infty} \left( \frac{1}{t^2} - \frac{1}{t^4} \right) \frac{e^{-Kt}}{(1 - P e^{-Kt})^2} dt$$

(3.19)

#### III.4 Le c. t. r. dans le modèle M-S

L'étude du coefficient de température de la résistivité dans le cadre du modèle de Mayadas-Shatzkes est obtenue en utilisant l'équation (2-18) du deuxième chapitre. Il est clair qu'étant donné la complexité de l'expression de la conductivité électrique obtenue dans le cadre de ce modèle; les résultats obtenus pour les expressions du c. t. r. seront complexes et par conséquent difficilement exploitables du point de vue expérimental. A cet effet, nous montrerons dans ce cas que des expressions approchées peuvent être obtenues à partir des

expressions exactes. Nous présenterons dans ce paragraphe le formalisme mathématique établi par les auteurs Tosser et al [14] d'une part Molas et al d'autre part [15].

Dans le modèle M-S la conductivité électrique totale  $\sigma_F$  de la couche s'écrit sous la forme :

$$\sigma_F = \sigma_0 [f(\alpha) - A(k, p, \alpha)] \quad (3.20)$$

L'équation précédente montre que la fonction  $f(\alpha)$  est aussi une fonction dérivable, du fait que  $k$  et  $\alpha$ , dépendent du libre parcours moyen.

Il est important de souligner qu'en omettant de calculer la dérivée de la fonction  $f(\alpha)$  ; les résultats obtenus par Molas et al [15], appliqués aux cas particulier des couches minces métalliques polycristallines avec un diamètre de grain constant à une température donnée, s'étaient révélés incorrectes.

Le traitement approprié a été obtenu [10], par différentiation logarithmique de l'équation (3.20), qui se présente comme suit :

$$(\beta_f - \beta_0) dT = \frac{df - dA_{M-S}}{f - A_{M-S}} \quad (3.21)$$

Pour des raisons de la simplicité on pose:

$$A_{M-S} = A(k, p, \alpha)$$

Et

$$dA_{M-S} = \frac{\partial A_{M-S}}{\partial k} dk + \frac{\partial A_{M-S}}{\partial H} \cdot \frac{\partial H}{\partial \alpha} d\alpha \quad (3.22)$$

Dans laquelle:

$$d\alpha = \alpha \left[ \frac{d\lambda_0}{\lambda_0} - \frac{dD_g}{D_g} \right]$$

$$dk = k \left[ \frac{d(d)}{d} - \frac{d\lambda_0}{\lambda_0} \right] \quad (3.23)$$

$$(3.24)$$

En supposant qu'il n'y a pas de variation du coefficient de dilatation thermique entre la couche et le substrat d'une part et que la variation du coefficient de réflexion  $R$  avec la température est négligeable ; Molas et al [15] avaient proposé de nouvelles équations décrivant le c. t. r. en introduisant des fonctions normalisées  $B_{M,S}$ ,  $C_{M,S}$  et  $D_{M,S}$  données par :

$$B_1(M,S) = \frac{6}{\pi} (1-p)^2 \int_0^{\pi/2} \cos^2 \theta / (H^2(u, \theta)) \left[ \frac{d\theta}{1 + \cos^2 \theta} - \frac{1}{u^2} - \frac{1}{u^4} \right] \exp(-kuH(u, \theta)) \quad (3.25)$$

$$C_1(M.S) = 12\alpha/\pi k (1-p) \int_0^{\pi/2} \cos^2 \theta \, d\theta \int_0^{\infty} \frac{1}{u^2} \left[ \frac{1}{u^2} - \frac{1}{u^4} \right] \exp(-kuH(u, \theta)) \, du \quad (3.26)$$

$$D_1(M.S) = 6/\pi (1-p)^2 \int_0^{\pi/2} \cos^2 \theta \, d\theta \int_0^{\infty} \frac{1}{u^2} \left[ \frac{1}{u^2} - \frac{1}{u^4} \right] \exp(-kuH(u, \theta)) \, du \quad (3.27)$$

Après calcul, l'équation (3.21) qui est valable aussi bien pour des couches monocristallines qu'aux couches polycristallines, se met sous la forme suivante:

$$\beta_{fp,m} - \beta_0 = [f(\alpha) - A_{M-S}]^{-1} \left[ (g(\alpha) - A_{M-S} + B_{M.S} + C_{M.S}) \left( -\frac{d\lambda_0}{\lambda_0 dT} \right) + (g(\alpha) + B_{M-S} + C_{M.S} - D_{M.S}) \left( \frac{d\chi_D}{\chi_D} \right) \right] \quad (3.28)$$

En supposant que les effets des dilatations thermiques du grain (représenté par le coefficient  $\chi_D$ ) et de l'épaisseur de la couche (représenté par le coefficient  $\chi_d$ ) sont négligeables; une expression approchée du c. t. r. pour les couches polycristallines a été proposée par Tellier et al [14], cette dernière est différente de celle proposée antérieurement par Molas et al [15], et s'écrit sous la forme :

$$\frac{\beta_{fp}}{\beta_0} = 1 + \frac{(g(\alpha) - A_{M-S} + B_{M.S} + C_{M.S})}{f(\alpha) - A_{M-S}} \quad (3.29)$$

En se limitant uniquement aux effets dimensionnels dus aux joints de grain et à ceux de l'épaisseur des couches minces polycristallines, l'expression complète déduite de l'équation (3.29) se met sous de la forme :

$$\frac{\beta_{fp}}{\beta_0} = 1 + \frac{(g(\alpha) - A_{M-S} + B_{M.S} + C_{M.S})}{f(\alpha) - A_{M-S}} + \left( \frac{D_{M.S} - A_{M-S}}{f(\alpha) - A_{M-S}} \right) \frac{\chi_d}{\beta_0} + \left( \frac{g(\alpha) + B_{M-S} + C_{M.S} - D_{M.S}}{f(\alpha) - A_{M-S}} \right) \frac{\chi_D}{\beta_0} \quad (3.30)$$

Où les termes  $\chi_d$  et  $g(\alpha)$  sont donnés par :

$$\chi_d = -\frac{dLnd}{dT} \quad (3.31)$$

$$g(\alpha) = \alpha \frac{df(\alpha)}{d\alpha} \quad (3.32)$$

En Supposant que la dilatation thermique de l'épaisseur et celle du diamètre de grain sont négligeables, le t. c. r. réduit pour des couches polycristallines  $\frac{\beta_{fp}}{\beta_0}$  s'écrit :

$$\frac{\beta_{fp}}{\beta_0} \approx \left(1 + \frac{(g(\alpha) - A_{M-S} + B_{M,S} + C_{M,S})}{f(\alpha) - A_{M-S}}\right) \left(1 + \frac{g(\alpha)}{f(\alpha)}\right)^{-1}$$

(3.33)

### III.5 Expressions du c.t.r. dans le cadre des modèles statistiques.

#### III.5.1 Hypothèses

Le formalisme mathématique décrivant le comportement du coefficient de température de la résistivité dans le cadre des modèles de conduction statistique est abordé dans ce travail en examinant séparément l'effet de chacune des différentes sources de diffusion.

A cet effet nous allons examiner les équations mathématiques décrivant le c. t. r. permettant d'étudier simultanément les effets des phonons, des surfaces externes et des joints de grains. En se basant sur les définitions et hypothèses présentés au début de ce chapitre et en utilisant le formalisme mathématique de la conductivité électrique présenté dans le deuxième chapitre.

Dans tout le formalisme mathématique qui utilisera des expressions approximatives, nous supposerons que les dilatations thermiques des grains et de l'épaisseur sont négligeables, les variations thermiques de la conductivité totale sont dues essentiellement à celle du libre parcours moyen.

Dans le cas général où les effets des trois types de diffusion sont tenus en compte simultanément ; la résistivité électrique dans le métal massif à une température donnée sera une fonction analytique de la forme :

$$\rho_f = \rho_0 f(d, D_g, \lambda_0) \quad (3.34)$$

Rappelons que seulement les paramètres physiques  $d, D_g$  et  $\lambda_0$ , qui représentent respectivement l'épaisseur de la couche mince métallique, le diamètre moyen de grains qui sera supposé constant et le libre parcours moyen dans le métal massif varient avec la température. Ces paramètres traduisent les effets dimensionnels dans les couches minces métalliques.

L'essentiel de l'utilisation des modèles statistiques consiste à établir un formalisme mathématique complet permettant de trouver des équations relativement simples qui tiennent en compte simultanément de l'effet des diffusions par les phonons, par les surfaces externes et par les joints de grains d'une part et d'autre part qui permettent des

interprétations adéquates des résultats expérimentaux. A cet effet nous nous intéresserons de façon particulière aux équations asymptotiques qui seront déduites à partir de certains modèles en général assez complexes [7,9].

### III. 5.2 Effet des surfaces externes

Avant d'aborder le calcul numérique, il nous semble intéressant de discuter la validité de l'hypothèse qui consiste à supposer que le coefficient de réflexion spéculaire  $P$  est indépendant de la température. Cette supposition peut tout simplement être expliquée par le fait que  $P$  est défini à partir des considérations géométriques statistiques se rapportant à la surface de la couche mince métallique, tel que donné dans le modèle de Cottley [8]. Bien que Namba[16] a proposé des expressions de la conductivité électrique en tenant compte de l'état mécanique de la couche mince par introduction de la rugosité de la surface, mais le modèle proposé par extension du modèle de F-S reste unidimensionnel, complexe et rend difficilement compte des résultats expérimentaux.

La conductivité électrique réduite est donnée par le rapport entre la conductivité d'une couche mince métallique  $\sigma_f$  et celle du massif  $\sigma_0$  donnée par le modèle de F-S (équation 2.14), et qui est de la forme :

$$\frac{\sigma_f}{\sigma_0} = 1 - A[k], \quad k = \frac{d}{\lambda_0} \quad (3.35)$$

Avec :

$$A(k) = \frac{3}{2k} (1-p) \int_1^{\infty} \left( \frac{1}{t^3} - \frac{1}{t^5} \right) \frac{1 - e^{-kt}}{1 - pe^{-kt}} dt \quad (3.36)$$

Par dérivation logarithmique de l'équation (3.35) , nous obtenons :

$$\frac{d \ln \sigma_f}{dT} - \frac{d \ln \sigma_0}{dT} = - \frac{k}{1 - A(k)} \frac{dA(k)}{dk} \frac{k}{dT} \quad (3.37)$$

Avec

$$\frac{dk}{k} = \frac{d(d)}{d} - \frac{d\lambda_0}{\lambda_0} \quad (3.38)$$

En introduisant le coefficient de dilatation thermique de l'épaisseur  $\alpha_d$  de la couche mince métallique donné par :

$$\chi_d = -\frac{dLnd}{dT} \quad (3.39)$$

L'expression générale du c. t. r. de la couche mince s'écrit:

$$\frac{\beta_f}{\beta_0} = 1 + \left[ \frac{-A(k) + B(k)}{1 - A(k)} \right] \left[ 1 + \frac{\chi_d}{\beta_0} \right] \quad (3.40)$$

En tenant en compte des réflexions par les surfaces externes de la couche, qui se traduisent (voir chapitre 2) par un coefficient de réflexion spéculaire P, les fonctions A(k) et B(k) s'expriment par:

$$A(k) = \frac{3}{2k} (1-p) \int_1^{\infty} (u^{-2} - u^{-4}) \frac{1 - e^{-ku}}{1 - pe^{-ku}} du \quad (3.41)$$

Et

$$B(k) = \frac{3}{2} (1-p)^2 \int_1^{\infty} (u^{-2} - u^{-4}) \frac{e^{-ku}}{1 - pe^{-ku}} du \quad (3.42)$$

L'évaluation du t. c. r. dans cas de la réflexion totalement diffuse est obtenue en prenant P égal à zéro dans les équations (3.41) et (3.42).

Les formes mathématiques de l'équation (3.39), (3.40) et (3.41) ne permettent pas des calculs faciles du c. t. r. dans les couches minces métalliques et par conséquent il est plus pratique d'examiner les cas limites et chercher des formules asymptotiques de l'équation (3.40).

- **Cas des couches épaisses:**

Le c. t. r. réduit cas des couches épaisses devient :

$$\frac{\beta_f}{\beta_0} \approx \left( 1 - \frac{3(1-p)}{8k} \right) \left( 1 + \frac{\chi_d}{\beta_0} \right), \quad k \gg 1 \quad (3.43)$$

- **Cas des couches très minces:**

Le c. t. r. réduit dans le cas des couches très minces peut être représenté par la formule approximative suivante :

$$\frac{\beta_f}{\beta_0} \approx [Lnk^{-1} + 0,4228]^{-1} \cdot \left[ 1 + \frac{\chi_d}{\beta_0} \right], \quad k \ll 1 \quad (3.44)$$

Il est aussi intéressant de déduire l'expression du c. t. r. réduit à partir du modèle de Cottey [8], ce qui permet d'aboutir à des équations mathématiques relativement simples. Les

manipulations mathématiques sont tout à fait semblables à celles utilisées dans le cadre de la théorie de Fuchs - Sondheimer.

Il a été établi dans le chapitre précédent, que le paramètre dimensionnel  $\mu$  est proportionnel à l'épaisseur réduite  $k$  ; ce qui peut permettre de déduire une expression générale pour le

c. t. r. de la forme:

$$\frac{\beta_f}{\beta_0} = 1 - \frac{G(\mu)}{C(\mu)} \cdot \left[ 1 + \frac{\chi_d}{\beta_0} \right] \quad (3.45)$$

Où le  $G(\mu)$  définie une fonction de la forme :

$$G(\mu) = \frac{3}{2}\mu \left( 3\mu - \frac{3}{2} + (1 - 3\mu^2)Ln(1 + \mu^{-1}) \right) \quad (3.46)$$

Et nous rappelons que la fonction de Cottey est donnée par :

$$\frac{\sigma_f}{\sigma_0} = C(\mu^*) = \frac{3}{2}\mu^* \left[ \mu^* - \frac{1}{2} + (1 - \mu^{*2})Ln \left( 1 + \frac{1}{\mu^*} \right) \right] \quad (3.47)$$

Quand l'épaisseur de la couche est grande comparativement au libre parcours moyen du métal massif, l'équation (3.45) se réduit à une forme semblable à l'équation (3.43).

### III.5.3 Effet des joints de grains

#### III.5.3.1 Expression du c. t. r. en l'absence des dilations thermiques

En fonction de la température  $T$ , le comportement de la conductivité dans la couche mince métallique  $\sigma_f(T)$ , peut être représentée par la relation :

$$\sigma_f(T) = \sigma_0(T) \cdot F(\lambda_g(T)) \quad (3.48)$$

Tel que nous l'avons montré dans le deuxième chapitre, l'effet des surfaces externes et des joints de grains peuvent être respectivement représentés par des libres parcours moyens  $\lambda_s$  et  $\lambda_g$  qui dépendent de la température. De manière similaire à celle utilisée auparavant nous pouvons définir un c. t. r. dû aux effets des joints de grains. Ce dernier noté  $\beta_g$  sera par analogie avec l'équation (3.9), donné par  $\beta_g$  :

$$\beta_g = \frac{1}{\rho_g} \cdot \frac{d\rho_g}{dt} \quad (3.49)$$

$\rho_g$  : est la conductivité électrique due essentiellement aux effets des joints de grains.

La différentiation logarithmique de l'équation (3.46) donne alors le c. t. r. dans la couche mince métallique traduisant les effets simultanés des phonons et des joints de grains, qui donne :

$$\beta_f = \beta_0 \left[ 1 + \frac{\lambda_0}{F(\lambda_0)} \cdot \frac{dF(\lambda_0)}{d\lambda_0} \right] \quad (3.50)$$

L'équation (3.50) constitue une formulation générale du c. t. r. dans la couche mince métallique. Les effets des diffusions par les phonons et par les joints de grain, sont supposés avoir lieu de manière indépendante, alors la différentiation de la fonction  $F(\lambda_0)$  est de la forme:

$$\frac{dF}{d\lambda_0} = \frac{dG}{dv} \cdot \frac{dv}{d\lambda_0} = -\frac{v}{\lambda_0} \cdot \frac{dG}{dv} \quad (3.51)$$

La substitution dans l'équation (3.50) donne pour le modèle tridimensionnel (chapitre2) :

$$\beta_g \Big|_{3-dim} = \beta_0 \left[ 1 - \frac{v}{G(v)} \frac{dG(v)}{dv} \right] \quad (3.52)$$

Où le  $G(v)$  est la fonction habituelle du modèle tridimensionnel donnée par :

$$\sigma_g / \sigma_0 = G(v) = 3 / (2b_1^3) \{ \alpha_1^3 - 1/2 + (1 - \alpha_1^3)^{1/2} \} \ln(1 + 1/3) \quad (3.53)$$

Avec :

$$b_2 = \frac{(1 - C)}{v} \quad (3.54)$$

$$\alpha_2 = \frac{1 + \frac{C^2}{v}}{b_2} \quad (3.55)$$

### III.5.3.2 Expression du c. t. r. en présence des dilations thermiques

Pour étudier l'effet des joints de grains sur le c. t. r. en tenant compte des dilations thermiques des joints de grains dans les couches minces métalliques, on considère que le coefficient de dilatation thermique du diamètre,  $\chi_D$  du grain défini par :

$$\chi_D = - \frac{d \ln D_g}{dT} \quad (3.56)$$

$\alpha_D$  : est en général différent du coefficient  $\alpha_a$  relatif à la dilatation de l'épaisseur de la couche. De plus ; on supposera que le coefficient de réflexion R du modèle M-S ou du coefficient de transmission t défini dans les modèles statistiques ne varient pas avec la température.

- Le fait de supposer que le coefficient de transmission est indépendant de la température peut être expliqué de manière analogue à celle admise pour le coefficient de réflexion P ; à savoir que ces coefficients ont été définis à partir d'hypothèses géométriques (basées sur des modèles similaires au modèle de Cottley), et par conséquent les variations thermiques de t peuvent également être négligés.

- Pour le coefficient de réflexion R, tel que défini dans le modèle de Mayadas-Shatzkes, le problème est plus compliqué et l'hypothèse précédente est sujette à caution du fait que le rapport (le rapport  $R/(1-R)$  s'avère théoriquement dépendre de l'énergie de Fermi ; en conséquence le coefficient de réflexion possède une dérivée par rapport à l'énergie, et on peut ainsi postuler que R dépend également de la température . Cependant, des travaux antérieurs [18], avaient montré que l'effet de la température sur le coefficient R reste négligeable.

Pour des raisons simplificatrices, on admettra dans la plupart des cas que les coefficients R et t restent constants sous l'effet de la température.

En utilisant les expressions obtenues dans le cadre du modèle statistique tridimensionnel, on peut montrer que la différenciation de l'équation (3.53) donne:

$$\frac{d\sigma_g}{\sigma_g} - \frac{d\sigma_0}{\sigma_0} = \frac{v}{G(v)} \frac{dG(v)}{dv} \frac{dv}{v}$$

(3.57)

Avec :

$$\frac{dG(v)}{dv} = \frac{G(v)}{v} + \frac{3v}{2(1-c)^2} \cdot H(v)$$

(3.58)

Et

$$H(v) = 2 - \alpha_2^{-1} - 2\alpha_2 \ln(1 + \alpha_2^{-1})$$

(3.59)

Partant de la définition du paramètre  $\nu$  (équation (3.55)) et en tenant compte des variations de  $D_g$  et de  $\lambda_0$  avec la température on peut écrire :

$$\frac{dv}{v} = \frac{dD_g}{D_g} - \frac{d\lambda_0}{\lambda_0} \quad (3.60)$$

En combinant l'équation (3.57) et (3.60), puis en divisant par  $dT$  et après réarrangement on obtient :

$$\frac{\beta_g}{\beta_0} = -\frac{\chi_D}{\beta_0} - \frac{3v}{2(1-c)} \cdot \frac{H(v)}{G(v)} \left[ 1 + \frac{v}{1-c} \frac{\chi_D}{\beta_0} \right] \quad (3.61)$$

### III.5.3.3 Expression approximative

En tenant compte plus des résultats expérimentaux que de la rigueur mathématique liée aux phénomènes physiques mis en jeu, on peut aboutir à des équations relativement simplifiée. En effet en négligeant la contribution de  $\chi_D$  sur le c. t. r. l'équation (3.61) se réduit à la forme approximative suivante [10],:

$$\frac{\beta_g}{\beta_0} = -\frac{3}{2} \frac{v}{(1-c)} \cdot \frac{H(v)}{G(v)} , \quad \chi_D \ll \beta_0 \quad (3.62)$$

Cette approximation reste valable, si la condition suivante est satisfaite:

$$\frac{\chi_D}{\beta_0} \left[ 1 + \frac{3}{2} \left( \frac{v}{1-c} \right)^2 \cdot \frac{H(v)}{G(v)} \right] < 10^{-2} \quad (3.63)$$

Quand le paramètre  $v$  augmente de 0,01 à 40, le terme  $\frac{3}{2} \left( \frac{v}{1-c} \right)^2 \cdot \frac{H(v)}{G(v)}$  augmente de  $2 \cdot 10^{-5}$  à environ à 10 et par conséquent la condition (3.63), peut se réduire à l'expression approximative suivante:

$$\chi_D \cdot \beta_0^{-1} < 10^{-2} \quad (3.64)$$

D'un autre coté, on peut s'attendre aussi (du point de vue expérimental) à ce que  $\chi_D$  soit du même ordre de grandeur que  $\chi_d$ .

### III.6 Expression générale du c. t. r. dans le cadre des modèles statistiques

En tenant compte des effets des phonons, des surfaces externes et des joints de grains, en supposant que ces effets sont indépendant et en appliquant la règle de Mathiessen; la conductivité  $\sigma_F$  d'une couche mince peut se mettre sous la forme :

$$\frac{\sigma_F}{\sigma_0} = \frac{3}{2} bU(\alpha) \quad (3.65)$$

$$\text{Avec } U(a) = a - \frac{1}{2} + (1 - a^2) \text{Log} \left( 1 + \frac{1}{a} \right) \quad (3.66)$$

$$\text{Où et } b = \left( \frac{1}{\mu} + \frac{1 - \epsilon^2}{\nu} \right)^{-1} \quad (3.67)$$

Une dérivation logarithmique de l'équation (3.65) et avec les arrangements mathématiques nécessaires qui suivent on a:

$$\frac{\sigma_0 d\sigma_F - \sigma_F d\sigma_0}{\sigma_0^2} = \frac{3}{2} db U(a) + \frac{3}{2} b dU(a) \quad (3.68)$$

$$\frac{\sigma_0 d\sigma_F}{\sigma_0^2} - \frac{\sigma_F d\sigma_0}{\sigma_0^2} = \frac{3}{2} [db U(a) + b dU(a)]$$

En simplifiant l'écriture on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{\sigma_F d\sigma_F}{\sigma_0 \sigma_F} - \frac{\sigma_F d\sigma_0}{\sigma_0 \sigma_0} &= \frac{3}{2} \left[ b \frac{db}{b} \cdot U(a) + b \cdot U(a) \cdot \frac{dU(a)}{U(a)} \right] \\ \frac{\sigma_F}{\sigma_0} \left[ \frac{d\sigma_F}{\sigma_F} - \frac{d\sigma_0}{\sigma_0} \right] &= \frac{3}{2} b \cdot U(a) \left[ \frac{db}{b} + \frac{dU(a)}{U(a)} \right] \end{aligned} \quad (3.69)$$

Après simplification en remplaçant le rapport  $\frac{\sigma_F}{\sigma_0}$  par  $\frac{3}{2} b \cdot U(a)$  dans le premier membre on aura :

$$\frac{d\sigma_F}{\sigma_F} - \frac{d\sigma_0}{\sigma_0} = \frac{db}{b} + \frac{dU(a)}{U(a)} \quad (3.70)$$

Avec les hypothèses du paragraphe précédent, on a:

$$\frac{db}{b} = -\frac{d\lambda_0}{\lambda_0} \quad (3.53)$$

(3.71)

$$\frac{da}{a} = -\frac{d\lambda_0}{\lambda_0} \left( 1 + \frac{\epsilon^2}{\nu} \right)^{-1} \quad (3.72)$$

Ce qui entraîne :

$$\frac{d\sigma_F}{\sigma_F} = \frac{d\sigma_0}{\sigma_0} - \frac{d\lambda_0}{\lambda_0} + \frac{a}{U(a)} \cdot \frac{dU(a)}{da} - \frac{1}{1 + \frac{\epsilon^2}{\nu}} \left( -\frac{d\lambda_0}{\lambda_0} \right)$$

(3.73)

Tous calculs faits, le rapport  $\frac{\beta_F}{\beta_0}$  du coefficient de température de la résistivité totale réduit de la couche se traduit par l'expression suivante :

$$\frac{\beta_F}{\beta_0} = b \frac{a^{-1} - 2 + 2a \text{Log}(1 + a^{-1})}{a - \frac{1}{2} + (1 - a^2) \text{Log}(1 + a^{-1})} \quad (3.74)$$

L'expression (3.74) représente le modèle mathématique simplifié, qui permet de représenter de manière générale le comportement du c. t. r. réduit de la couche mince métallique.

- **Cas particuliers**

Il est utile de rappeler ici que dans le cas particulier où la conductivité électrique est essentiellement due aux effets des joints de grains, c'est-à-dire dans le cas où les diffusions par les surfaces externes sont négligées; le coefficient de température de la résistivité

électrique réduit que l'on note  $\frac{\beta_g}{\beta_0}$  se déduit de l'équation précédente du c. t. r. total réduit et en tenant compte que :

$$\left. \begin{aligned} a_g &= \frac{v + c^2}{1 - c} \\ &\text{et} \\ b_g &= \frac{v}{1 - c} \end{aligned} \right\} \quad (3.75)$$

Alors le rapport  $\frac{\beta_F}{\beta_0}$  s'écrit sous la forme :

$$\frac{\beta_g}{\beta_0} = \frac{v}{1 - c} \frac{a_g^{-1} - 2 + 2a_g \text{Log}(1 + a_g^{-1})}{a_g - \frac{1}{2} + (1 - a_g^2) \text{Log}(1 + a_g^{-1})} \quad (3.76)$$

On peut aussi à partir de la relation :

$$\beta_g = - \frac{d \text{Log} \sigma_0}{dT} \quad (3.77)$$

Et en suivant les mêmes méthodes de calcul que pour  $\frac{\beta_F}{\beta_0}$ , on obtient l'expression de  $\frac{\beta_g}{\beta_0}$ , avec,  $a_g$  et  $b_g$  définis par la relation (3.77).

$$\sigma_g = \frac{3}{2} b_g \left( a_g - \frac{1}{2} + (1 - a_g^2) \text{Log}(1 + a_g^{-1}) \right) \quad (3.78)$$

Si au contraire, seules les réflexions sur les surfaces externes interviennent dans la conductivité, le passage du rapport  $\frac{\beta_F}{\beta_0}$  vers  $\frac{\beta_S}{\beta_0}$  est obtenu à partir de l'équation (3.56) en posant  $a=b$  et  $b=\mu$ , donc :

$$\frac{\beta_S}{\beta_0} \mu \frac{\mu^{-1} - 2 + 2\mu \text{Log}(1 + \mu^{-1})}{\mu - \frac{1}{2} + (1 - \mu^2) \text{Log}(1 + \mu^{-1})} \quad (3.79)$$

$\beta_S$  : étant le coefficient de température de la résistivité due aux réflexions sur les surfaces externes.

Les expressions analytiques  $\frac{\beta_F}{\beta_0}$ ,  $\frac{\beta_g}{\beta_0}$  et  $\frac{\beta_S}{\beta_0}$  sont relativement simples, c'est pourquoi leur traduction en valeurs numériques pour différentes valeurs de  $\mu$ ,  $v$  et  $p$  est possible par simples méthodes numériques. De nombreux résultats expérimentaux ont été interprétés à partir de ces expressions.

## Conclusion

Les expressions analytiques établies dans les différents modèles traduisant le cas général du comportement de la conductivité électrique des couches minces et de leur coefficient de température où l'on considère les effets des trois sortes de diffusions (phonons, joints de grains et effets de surfaces externes). Cependant des cas limites peuvent être examinés.

- Le premier cas ( $v \rightarrow \infty$ ), ceci se produit quand les dimensions des grains deviennent très grandes devant le libre parcours moyen dans le métal massif soit quand la transmission d'un joint de grain à l'autre est parfaite, ( $t$  : coefficient de transmission égal à l'unité) seuls les effets des surfaces externes seront considérés.

- Le deuxième cas ( $\mu \rightarrow \infty$ ), les effets de surfaces externes peuvent être négligés : ou alors la couche est infiniment épaisse, la réflexion sur les surfaces externes est totalement diffuse. ( $\rho$  : coefficient spéculaire est égal à l'unité).
- Un autre cas peut être envisagé, qui est aussi intéressant à considérer, c'est le cas où les effets de joints de grains et ceux des surfaces s'équilibrent.

Dans le chapitre suivant nous aborderons une étude comparative par une réinterprétation de certaines données expérimentales de Cuivre relatives à la variation de la conductivité électrique en fonction de l'épaisseur, de l'effet de la température sur la conductivité électrique des couches minces métalliques de cuivre et d'une autre part une analyse de l'effet dimensionnel sur le c. t. r.

## Introduction

L'objectif du travail prévu dans le cadre de ce mémoire, consistait à étudier la conductivité électrique et son coefficient de température dans les couches minces métalliques en utilisant les modèles statistiques. Dans les chapitres précédents, nous avons présenté un travail bibliographique contenant les modèles les plus utilisées. Ce chapitre consacré aux applications expérimentales et à une analyse numérique du c. t. r. Ce chapitre est composé de trois parties, à savoir :

- Dans le premier paragraphe nous examinons la réinterprétation de certaines données expérimentales de Cuivre relatives à la variation de la conductivité électrique en fonction de l'épaisseur de la couche mince métallique.
- Dans le 2<sup>ème</sup> paragraphe, nous étudions l'effet de la température sur la conductivité électrique des couches minces métalliques de cuivre, toujours à partir du formalisme des modèles statistiques, en utilisant les coefficients de réflexion spéculaire effectifs.
- Le dernier paragraphe est consacré à l'étude de la variation du c. t. r. avec les paramètres dimensionnels.

A cet effet commençons par rappeler, tel que mentionné dans les chapitres précédents que les expressions obtenues à partir des différents modèles théoriques, qui sont généralement sous forme d'équations mathématiques complexes, ce qui rend les interprétations des résultats expérimentaux souvent difficile. C'est pourquoi nous utilisons les expressions asymptotiques déduites dans les différents cas et qui permettent dans beaucoup de cas de rendre compte de manière satisfaisante de la réalité physique.

### IV.1 Expressions asymptotiques de la conductivité électrique

L'examen des expressions linéarisées obtenues dans le cadre des modèles de conduction auparavant présentés et les résultats expérimentaux donnés dans la littérature permettent d'aboutir aux faits suivants :

- Les expressions approximatives donnant la variation de la conductivité électrique en fonction de l'inverse de l'épaisseur aboutissent à des variations linéaires.

• Les résultats expérimentaux relatifs à l'étude de la variation de la résistivité électrique en fonction de l'inverse de l'épaisseur donnés dans la littérature pour différents processus d'élaboration sont en bon accord avec les expressions asymptotiques établies antérieurement [10,17].

A cet effet commençons d'abord Par rappeler les expressions asymptotiques obtenues dans les différents cas.

#### IV.1. 1 Formules asymptotiques déduites du Modèle F-S:

Les formules asymptotiques déduites du modèle F-S, dans les deux cas couches très épaisses ( $K \gg 1$ ) et couches très minces ( $K \ll 1$ ) [17] sont données par :

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} \approx 1 + \frac{3}{8K}(1-p) \quad \text{Pour } (K \gg 1)$$

(4.1)

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} \approx \frac{4}{3} \frac{1-p}{1+p} \frac{1}{k \ln\left(\frac{1}{K}\right)} \quad \text{Pour } (K \ll 1)$$

(4.2)

Ce qui permet d'aboutir à une équation linéaire de la résistivité électrique en fonction de l'inverse de l'épaisseur permettant la détermination du coefficient de réflexion spéculaire P:

$$\rho_f = \rho_{00} + \left(\frac{3}{8d}\right) \rho_0 \lambda_0 (1-p) \quad (4.3)$$

#### IV.1.2 Formules asymptotiques déduites du Modèle M-S

L'équation de la résistivité électrique réduite qui représente l'influence des joints de grains dans le modèle de Mayadas-Shatzkes est donnée par (Chapitre 2) :

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} = \left[ 1 - \frac{3}{2}\alpha + 3\alpha^2 - 3\alpha^3 \ln\left(1 + \frac{1}{\alpha}\right) \right]^{-1} \quad (4.4)$$

Deux expressions asymptotiques peuvent être déduites, pour,  $\alpha \ll 1$  et  $\alpha \gg 1$  :

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} \approx 1 + \frac{3}{2}\alpha \quad \text{Pour } (\alpha \ll 1) \quad (4.5)$$

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} \approx \frac{4}{3}\alpha \quad \text{Pour } (\alpha \gg 1) \quad (4.6)$$

Il est à rappeler que  $\alpha$  représente le paramètre de grain dans le modèle M-S, donné par :

$$\alpha = \frac{\lambda_0}{D_g} \frac{R}{1-R} \quad (4.7)$$

L'équation asymptotique est de la forme :

$$\rho_f = \rho_\infty + \left( \frac{3}{2} \lambda_\infty \rho_\infty \frac{R}{1-R} \right) \frac{1}{nd} \quad (4.8)$$

D'après les formules précédentes on obtient l'expression ci-dessous qui nous permet de calculer le coefficient dit de réflexion sur les joints de grains R [9]:

$$\rho_f \cdot d = \rho_\infty \cdot d + \left( \frac{3}{2} \lambda_\infty \rho_\infty \frac{R}{1-R} \right) \frac{1}{n} \quad (4.9)$$

#### IV 1.3 Formules asymptotiques déduites des modèles statistiques

Rappelons ici que le rapport  $\frac{\sigma_f}{\sigma_0}$  de la conductivité électrique réduite d'une couche mince métallique (chapitre 3) est de la forme :

$$\frac{\sigma_f}{\sigma_0} = \frac{\rho_f}{\rho_0} = C(\mu, \gamma) \quad (4.10)$$

a et b sont fonctions des paramètres dimensionnels  $\mu$  et de grains  $\nu$  sont définis dans le chapitre 2, par :

$$a = \frac{1}{b} \left( 1 + \frac{c_2}{\gamma} \right) \quad \text{et} \quad b = \frac{1}{\mu} + \frac{c_1}{\gamma} \quad (4.11)$$

C,  $C_1$  et  $C_2$ , sont des constantes précédemment définies et les expressions asymptotiques de la conductivité électrique réduite, [19,20] se présentent comme suit :

$$\frac{\sigma_f}{\sigma_0} \approx \frac{2}{3b} \left( \ln \frac{1}{a} - \frac{1}{2} \right) \quad \text{Pour } a \ll 1 \quad (4.12)$$

$$\frac{\sigma_f}{\sigma_0} \approx (ba + c_2 b)^{-1} \quad \text{Pour } a \gg 1 \quad (4.13)$$

On obtient :

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} = 1 + \frac{c^2}{\gamma} + c_2 \left( \frac{1}{\mu} + \frac{c_1}{\gamma} \right) \quad (4.14)$$

La résistivité  $\rho_{\infty}$ , d'une couche métallique infiniment épaisse est :

$$\rho_{\infty} = \rho_0 \left( 1 + \frac{c^2 + c_1 c_2}{\gamma} \right) \quad (4.15)$$

La résistivité  $\rho_f$ , d'une couche mince métallique devient :

$$\rho_f = \rho_{\infty} + \rho_0 \frac{c_2}{\mu} \quad (4.16)$$

- **Détermination du coefficient de réflexion spéculaire P :**

En introduisant l'équation donnant  $\mu$ , on obtient :

$$\rho_f = \rho_{\infty} + 2\rho_0 c_2 \lambda_0 \frac{(1-p)1}{(1-p)d} \quad (4.19)$$

La comparaison avec les variations expérimentales donnant les variations de  $\rho_f$  en fonction de  $1/d$  nous permettent de calculer P.

- **Détermination du coefficient de transmission t :**

L'introduction de l'équation donnant  $\nu$  en fonction de t, donne :

$$\frac{\rho_{\infty}}{\rho_0} = 1 + 2 \frac{\lambda_0}{D_g} (c^2 + c_1 c_2) \frac{1-t}{1+t} \quad (4.18)$$

La pente de la droite donnant le produit  $\rho_f \cdot d$  en fonction de l'épaisseur d permet le calcul de  $\rho_{\infty}$ , donc on déduit t connaissant le diamètre moyen de grain  $D_g$  en utilisant l'équation :

$$\frac{\lambda_0}{D_g} (c^2 + c_1 c_2) \frac{1-t}{1+t} = 1 + 2 \frac{\rho_{\infty}}{\rho_0} \quad (4.19)$$

## IV.2 Application aux couches de cuivre

Dans ce paragraphe, nous examinons deux points essentiels, à savoir :

- Influence de la température sur la conductivité électrique des couches minces de cuivre.

- Comparaison des résultats obtenus avec ceux déduits des modèles statistiques.

Les résultats expérimentaux que nous avons réexaminés ont été récemment publiés par :

G. Steinlesberger et al [21] et Sean X. et al [22].

Les couches minces métalliques de cuivre objet de cette étude ont été élaborées par :

- Couches obtenues par les méthodes chimiques '(electrochemical deposition)[21].

Notons en premier lieu que G. Steinlesberger et al [21], ont étudié l'effet de la température sur les couches minces de cuivre pour différentes températures. Nous examinons dans cette partie de ce mémoire les résultats effectués à température ambiante que nous comparons à ceux donnés par Sean X. et al [22].

Nous avons tracé les courbes donnant les variations de la résistivité électrique en fonction de l'épaisseur figures (4.1 a) et (4.2a), données dans la littérature [21, 22].

Sur les figures (4.1b) et (4.2b), sont données les variations de la conductivité électrique en fonction de l'inverse de l'épaisseur, et les figures (4.1c) et (4.2c), représentent les variations du produit de la résistivité par l'épaisseur  $\rho_f \cdot d$  en fonction de l'épaisseur d. Les courbes obtenues sont des droites parfaitement linéaires, ce qui nous permet d'appliquer les expressions linéarisées précédemment présentées.

Les résultats obtenus sont donnés dans le tableau (4.1), qui suit :

Tableau (4.1) : Les résultats pour les séries [21] et [22] à température ambiante

	$\rho_f$ ( $10^{-7}\Omega\text{cm}$ )	$\lambda_0$ (nm)	$\rho_\infty$ ( $10^{-7}\Omega\text{cm}$ )	P calculé	P donné
				(coefficient de réflexion spéculaire)	(coefficient de réflexion spéculaire)
Cu [21]	1.9	40	0.5	0.48	0.5
Cu [22]	2.22	46	1.5	0.3689	0.432

Ce travail a montré que :

1. En examinant le tableau (4.1) ; il apparaît très clair que les valeurs du coefficient de réflexion spéculaire obtenues à partir des modèles statistiques sont en excellent accord

avec celles données par G.Steinlesberger et al [21] ; et par conséquent nous n'avons même pas cherché à effectuer un calcul d'erreur dans ce cas tellement l'écart est très faible.

2. La comparaison des résultats obtenus pour les valeurs du coefficient de réflexion spéculaire avec celle donnée par Sean. X et al [22], montre que l'erreur relative est de l'ordre de 6%, ce qui nous fait dire que les modèles statistiques appliqués dans ce cas sont très valables et décrivent de façon très satisfaisante les phénomènes de conduction dans ce cas.

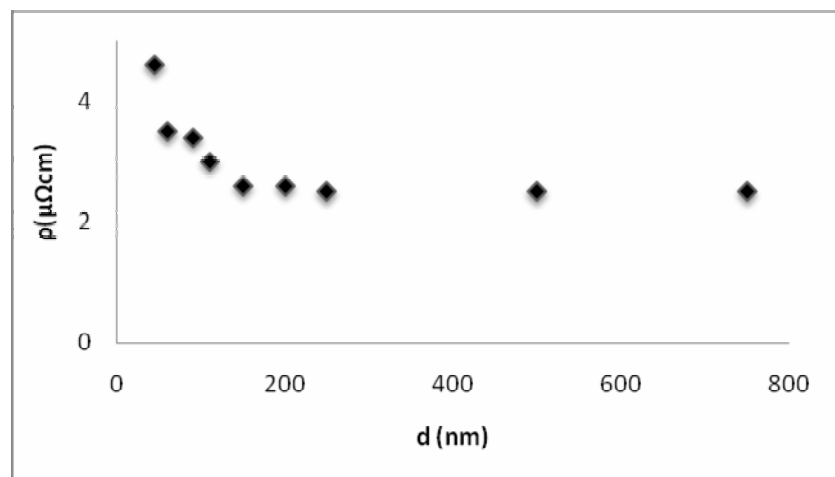


Fig.4. 1 (a): Variations de la résistivité «  $\rho_f$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  », selon [21].

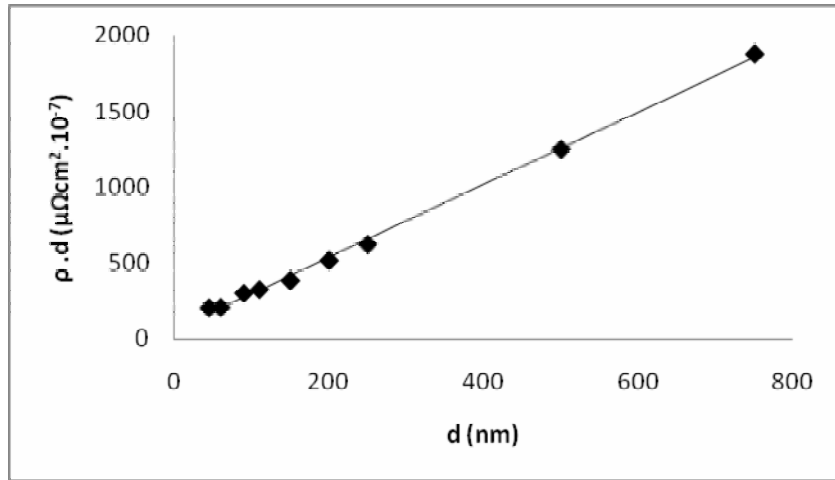


Fig. 4.1 (b): Variations du produit «  $\rho_f \cdot d$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  » selon [21].

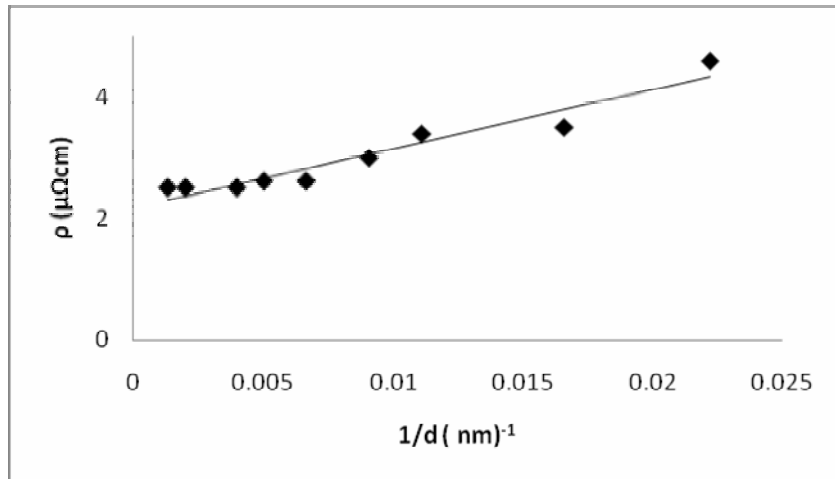


Fig. 4.1 (c): Variations de la résistivité «  $\rho_f$  » en fonction de «  $1/d$  », selon [21].

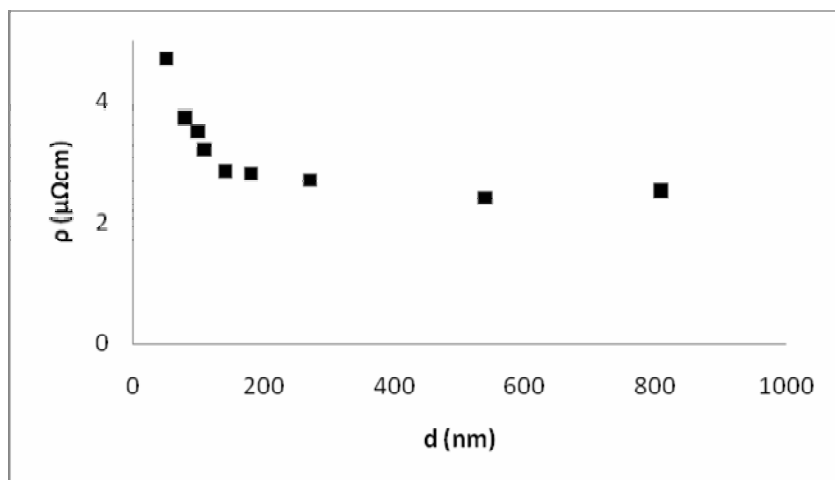


Fig. 4.2 (a): Variations de la résistivité «  $\rho_f$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  », selon [22].

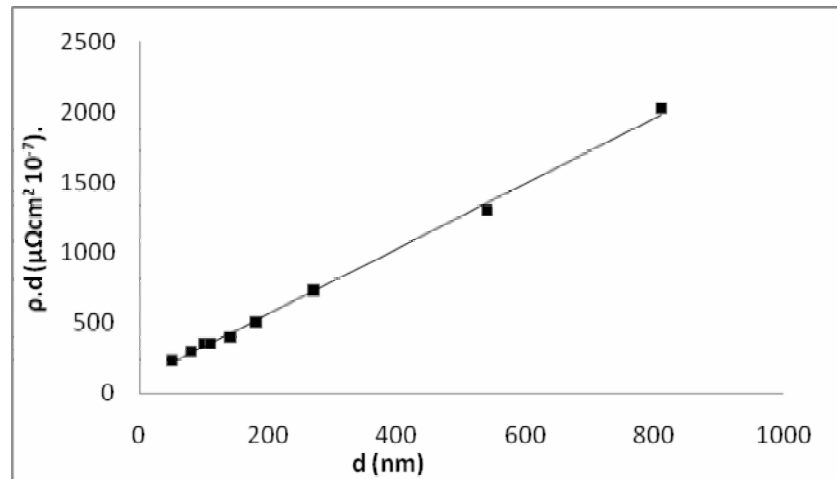


Fig. 4.2 (b): Variations du produit «  $\rho_f \cdot d$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  », selon [22].

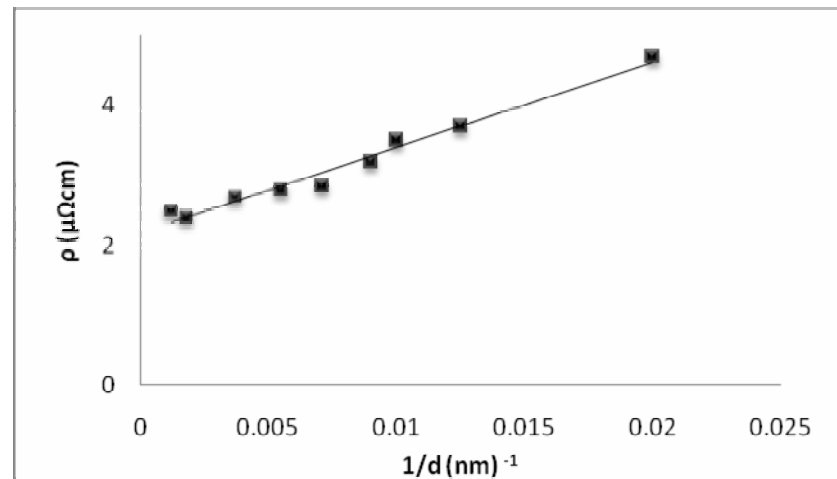


Fig. 4.2 (c): Variations de la résistivité «  $\rho_f$  » en fonction de «  $1/d$  », selon [22].

### IV.3 Effet de la température et du recuit sur la conductivité électrique

Le travail présenté dans ce paragraphe est réparti en deux parties :

- Dans la 1<sup>ère</sup> partie nous étudions l'effet de la température sur la conductivité électrique des couches minces de cuivre.
- La 2<sup>ème</sup> partie est réservée à l'étude de l'effet du recuit sur les couches minces de cuivre.

#### IV.3.1 Variation de la conductivité électrique avec la température

Pour étudier l'effet de la température sur la conductivité électrique, nous avons utilisé les données expérimentales des couches de cuivre données par G.Steinlesberger [21].

L'auteur [21], a examiné l'effet de la température sur les couches de cuivre en considérant les quatre températures suivantes : « 80°K, 300°K, 423°K et 573°K ».

En procédant de manière similaire à celle utilisé dans le précédent paragraphe, nous avons :

- Tracé les courbes donnant les variations de la résistivité électrique en fonction de l'épaisseur ( $d$ ) figures (4.3 a), (4.4a), (4.5a) et (4. 6a).
- Représenté les variations du produit de la résistivité par l'épaisseur  $\rho_f \cdot d$  en fonction de l'épaisseur  $d$  sur les figures (4.3 b), (4.4b), (4.5b) et (4.6b).
- Sur les figures (4.3c), (4.4c), (4.5c) et (4.6c), sont données les variations de la résistivité électrique  $\rho_f$  en fonction de l'inverse de l'épaisseur ( $1/d$ ). Les courbes obtenues sont des droites linéaires.
- Calculé les paramètres physiques déduits des modèles statistiques et présenté une comparaison avec ceux donnés par l'auteur. Les résultats de ce travail sont résumés dans le tableau (4.2) ci-dessous :

Tableau 4.2 Valeurs du coefficient spéculaire pour différentes températures [21].

T (température °K)	$\rho_0$ ( $\mu\Omega\text{cm}$ )	$\lambda_0$ (nm)	$\rho_\infty$ ( $10^{-7}\Omega\text{cm}$ )	P (coefficient de réflexion spéculaire)
80	0.2	330	0.666	0.966
300	1.9	40	0.82	0.982
423	2.83	26.5	0.611	0.986
573	3.97	19	0.869	0.982

Les résultats obtenus, montrent de manière très claire que le coefficient de réflexion spéculaire P, n'est pas modifié sous l'effet de la température et que sa valeur moyenne est de l'ordre de 0.97, pour toutes les températures Supérieure à 80°K.

Ces résultats sont en bon accord avec l'auteur qui confirme que les effets dimensionnels dans les couches minces ne sont pas influencés par l'effet de la température.

En examinant la valeur de P, obtenue à température ambiante tableau (4.1), nous remarquons que P a augmenté à partir de la température ambiante ; ce phénomène sera également observé sous l'effet des traitements thermiques du recuit des couches minces de cuivre. Un modèle théorique permettant le traitement des données de la conductivité électrique sous l'effet du recuit sera examiné dans le prochain paragraphe.

Pour  $T=80^{\circ}\text{K}$

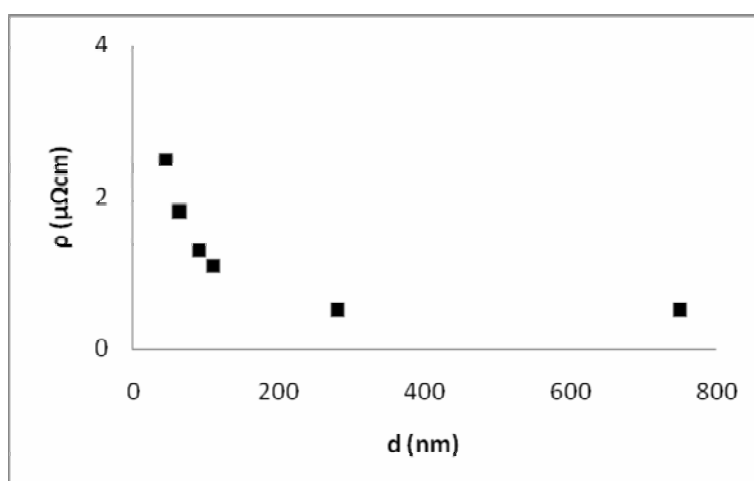


Fig. 4.3a : Variations de la résistivité «  $\rho_r$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  ».

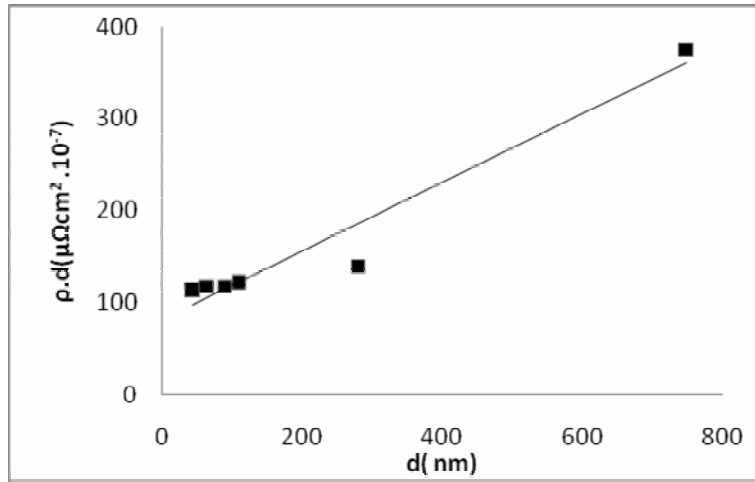


Fig. 4.3 (b): Variations du produit «  $\rho_f \cdot d$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  ».

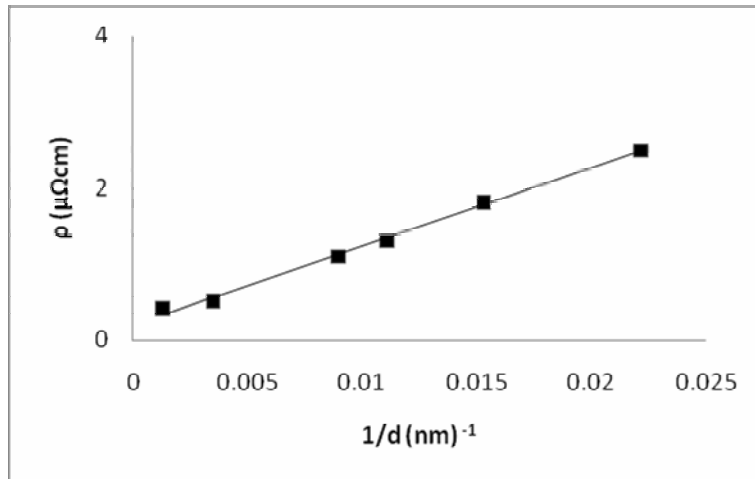


Fig. 4.3 (c): Variations de la résistivité «  $\rho_f$  » en fonction «  $1/d$  ».

Pour T= 300°K

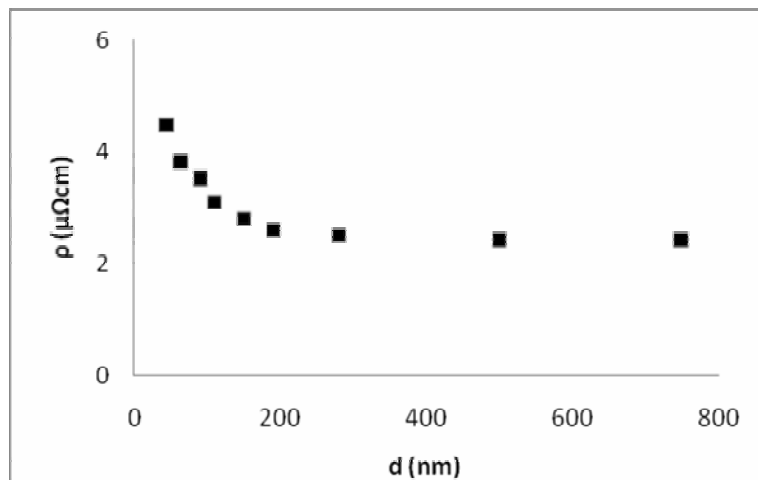


Fig. 4.4 (a): Variations de la résistivité «  $\rho_f$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  ».

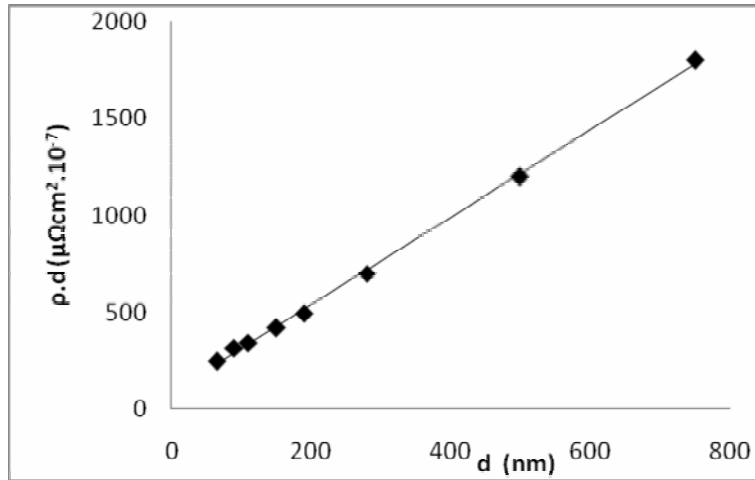


Fig. 4.4 (b) : Variations du produit «  $\rho_f \cdot d$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  ».

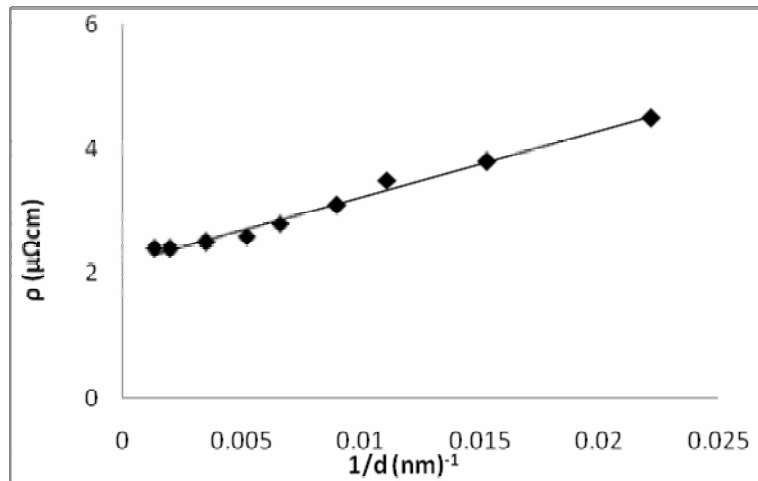


Fig. 4.4 (c) : Variations de la résistivité «  $\rho_f$  » en fonction «  $1/d$  ».

Pour  $T= 423^\circ\text{K}$

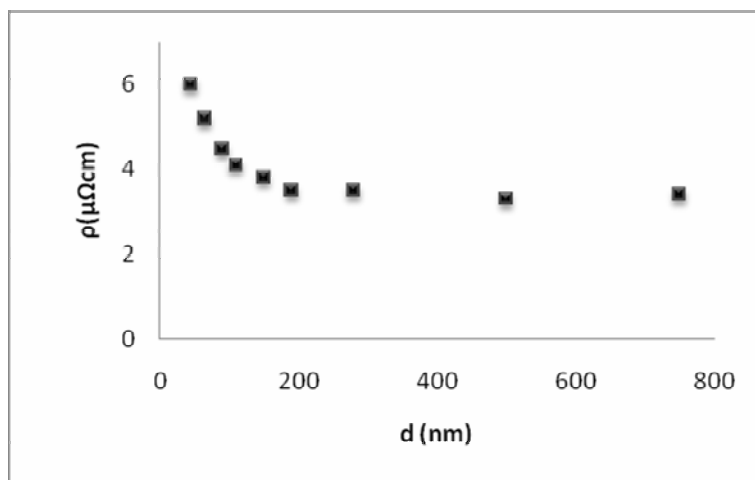


Fig. 4.5 (a) : Variations de la résistivité «  $\rho_f$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  ».

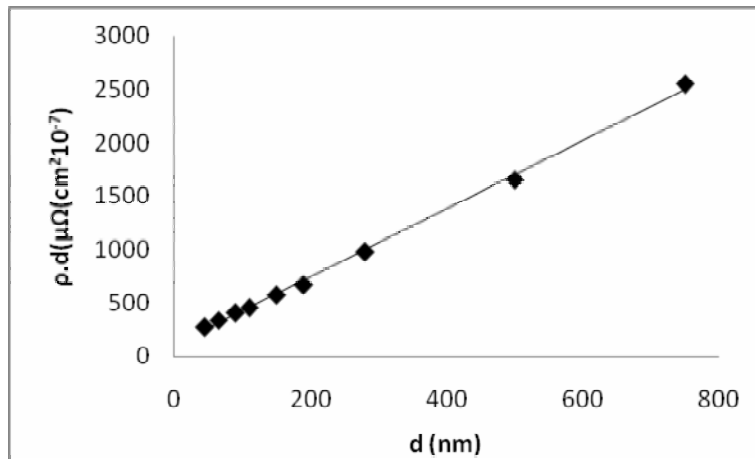


Fig. 4.5 (b): Variations du produit «  $\rho_r \cdot d$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  ».

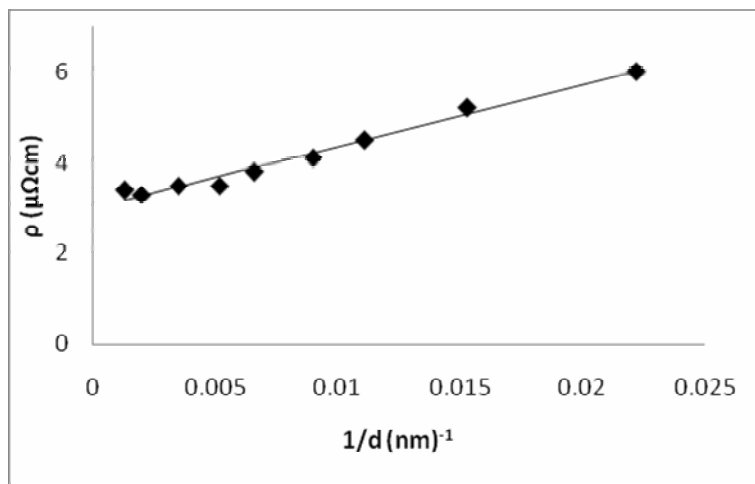


Fig. 4.5 (c): Variations de la résistivité «  $\rho_r$  » en fonction «  $1/d$  ».

pour T=573°K

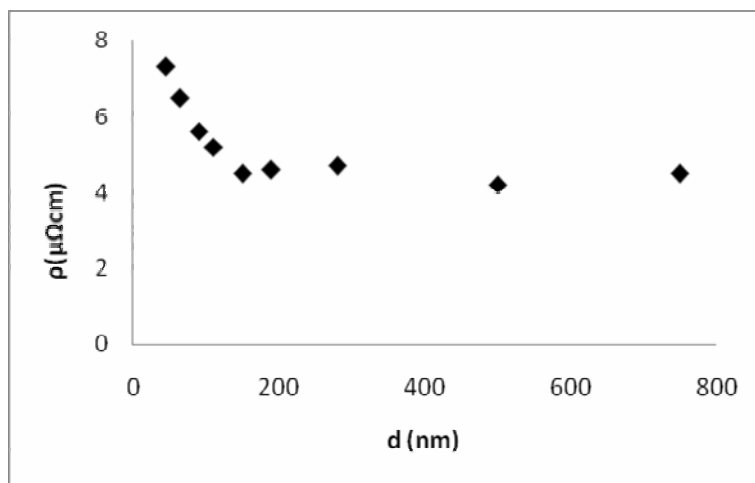


Fig. 4.6 (a): Variations de la résistivité «  $\rho_r$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  ».

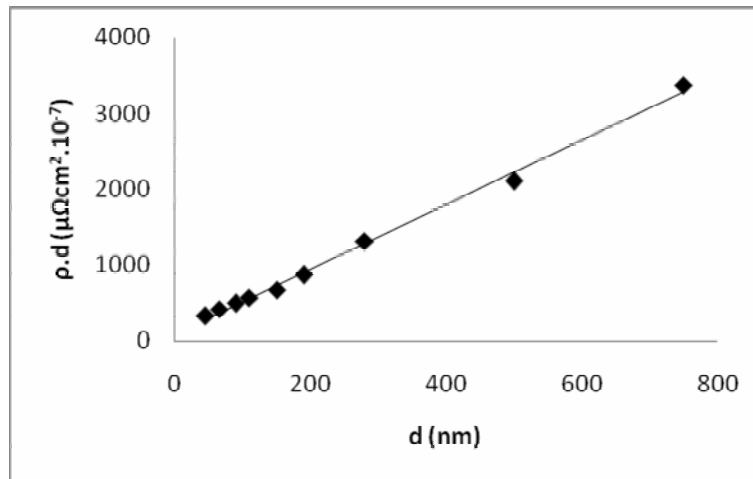


Fig. 4.6 (b): Variations du produit «  $\rho_f \cdot d$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  ».

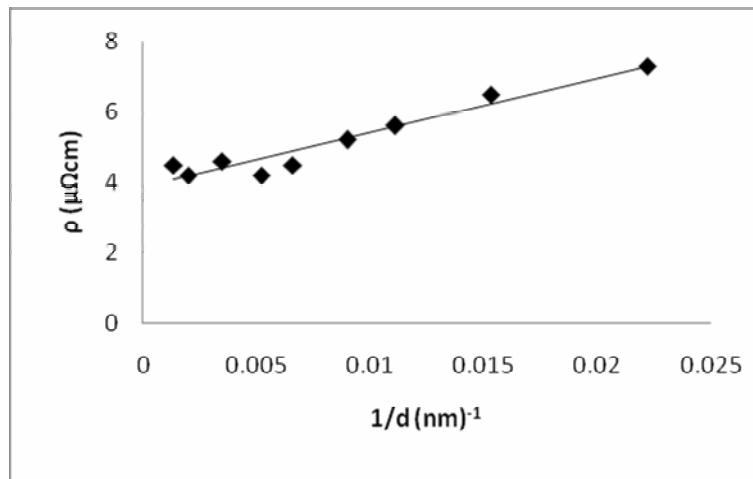


Fig. 4.6 (c): Variations de la résistivité «  $\rho_f$  » en fonction «  $1/d$  ».

### IV.3.2 Variation de la conductivité électrique sous l'effet du recuit

Rappelons en premier lieu que les traitements thermiques jouent un rôle important dans l'amélioration des propriétés physiques (électrique, magnétique, optique et mécanique). Le recuit qui permet la cristallisation des alliages amorphes métalliques à partir d'une certaine température est le traitement thermique le plus convenable dans le cas des couches minces.

Etant donné qu'une couche mince métallique est déposée sur un support appelé « substrat », l'effet du recuit induira à fortiori une modification différente de l'état des deux surfaces de la couche mince; du fait que l'une est solidaire du substrat alors que l'autre est exposée de manière directe à l'effet de la température. Ce phénomène a été examiné auparavant et un formalisme a été développé dans le cadre des modèles statistiques [19], en

utilisant un coefficient de réflexion spéculaire effectif. Pour ne pas alourdir ce mémoire, nous nous contentons de donner (sans les démontrer), les formules mathématiques essentielles permettant d'étudier l'effet du recuit sur les couches minces métalliques.

- **Coefficient de réflexion spéculaire effectif**

L'influence du recuit sur des le coefficient de réflexion spéculaire  $p$  des couches minces de sera présenté dans ce paragraphe. Cette étude est basée sur les expressions de la conductivité électrique des couches minces métalliques présentant des propriétés de sur faces [19] non identiques.

En procédant de manière similaire à celle décrite dans le 2<sup>ème</sup> chapitre et en supposant que les surfaces de la couche mince ont des coefficients de réflexion spéculaire différents  $P_1$  et  $P_2$ , respectivement sur la première et la deuxième surface de la couche mince, les auteurs [19], avaient utilisé un procédé similaire à celui de Cottley [8], où la représentation habituelle, avait été remplacée par un empilement de deux couches minces métalliques fictives chacune d'épaisseur  $2d$ , avec l'un des coefficients de réflexion spéculaire prennent la valeur  $P_1$  à la première couche et  $P_2$ , à la deuxième.

Il a été établi, qu'un coefficient de réflexion spéculaire effectif notée  $P_{eff}$ , peut être défini sous la forme :

$$P_{eff} = \sqrt{P_1 P_2} \quad (4.20)$$

En attribuant un libre parcours moyen pour chacune des couches fictives considérées, et en supposant que l'inverse du libre parcours moyen relatif à la couche réelle est la somme des inverses des libres parcours moyens relatifs aux deux couches fictives, le libre parcours moyen décrivant les effets des surfaces externes s'écrit :

$$\frac{1}{\lambda_s} = \frac{|\cos \theta| (1 + P_1)}{2d} + \frac{|\cos \theta| (1 + P_2)}{2d} = \frac{|\cos \theta| (1 + P_{eff})}{2d} \quad (4.21)$$

Le paramètre dimensionnel de la couche mince polycristalline se met alors sous la forme :

$$\mu = \frac{1}{\frac{\lambda_0}{d} \left[ \frac{2(1 - P_1)}{(1 + P_1)} + \frac{2(1 - P_2)}{(1 + P_2)} \right]} = \frac{d}{\lambda_0} \frac{(1 + P_1)(1 + P_2)}{2(1 - P_1 P_2)} \quad (4.22)$$

Pour des couches minces recuites ou non recuites présentant des propriétés de surface non identiques, le coefficient P soit remplacé par  $P_{eff}$ , donné par :

$$P_{eff} = \frac{(1 + p_1)(1 + p_2) - (1 - p_1 p_2)}{(1 + p_1)(1 + p_2) + (1 - p_1 p_2)} \quad (4.23)$$

- **Hypothèses de base :**

Les auteurs [17,19], avaient émis les hypothèses suivantes, que nous avons aussi tenues en compte dans notre travail.

- Les variations de  $\rho_f$  en fonction de  $1/d$ , sont donc linéaires jusqu'à la limite de l'épaisseur critique et par conséquent la valeur de  $P_2$  est indépendante de l'épaisseur de la couche dans le domaine expérimental ou  $d$  est supérieure à l'épaisseur critique.
- Comme la résistivité électrique est grande, pour les épaisseurs inférieures à l'épaisseur critique, nous supposons que celle-ci ne joue pas un rôle important dans la conductivité électrique et que  $P_1$  n'est pas modifié par le recuit.
- Le fait de supposer que la deuxième couche est homogène, nous permet de supposer que cette dernière est parfaitement réfléchissante à partir de la valeur critique de l'épaisseur, et par conséquent nous pouvons supposer que  $P_1$  est égal à l'unité.

Nous obtenons l'expression de la valeur du coefficient de réflexion spéculaire des couches non recuites noté  $P_{ad}$ , en prenant  $P_1=1$ , tel que :

$$P_{ad} = \frac{1 + 3P_{20}}{3 + P_{20}} \quad (4.24)$$

$P_{20}$  : est le coefficient de réflexion spéculaire de la surface externe non recuite.

Il est très facile de démontrer alors que l'une des formes asymptotique de l'équation donnant  $P_{ad}$ , est :

$$P_{ad} = \frac{1}{3} \left( 1 + \frac{8}{3} P_{20} \right) \quad , \quad P_{20} \ll 1 \quad (4.25)$$

En procédant de manière similaire la valeur de  $P_2$  relative aux couches recuites, notée  $P_{2A}$ , (annealed) et en prenant  $P_1=1$  dans ce cas :

$$P'_{eff} = \frac{1 + 3P_{2A}}{3 + P_{2A}} \quad (4.26)$$

En procédant de manière similaire à celle présentée dans le paragraphe précédent nous avons étudié dans le cadre de ce modèle, certains résultats expérimentaux donnés dans la littérature [23,24]. A cet effet nous avons :

- Tracé les courbes donnant les variations de la résistivité électrique en fonction de l'épaisseur avant et après recuit figures (4.8a) et (4.9a).
- Représenté les variations du produit de la résistivité par l'épaisseur  $\rho_f \cdot d$  en fonction de l'épaisseur d, avant et après recuit sur les figures (4.8 b) et (4.9b).

Sur les figures (4.8c) et (4.9c), sont données les variations de la résistivité électrique  $\rho_f$  en fonction de l'inverse de l'épaisseur ( $1/d$ ), avant et après recuit. Les courbes obtenues sont des droites linéaires.

A partir des pentes des courbes donnant les variations de  $\frac{\rho_f}{\rho_\infty}$ , en fonction de  $1/d$ , nous avons calculé les valeurs des coefficient de réflexion spéculaire  $P_{\text{eff}}$ , avant et après recuit, pour les couches de cuivre. En utilisant les données expérimentales de T. S.Kuan et al [23] et de Sylvain Maitrejean et al [24]. En utilisant les équations du modèle mathématique précédemment présenté, nous avons Calculé les paramètres physiques déduits des modèles statistiques et présenté une comparaison avec ceux donnés par les auteurs. Les résultats de ce travail sont résumés dans le tableau (4.3a) et (4.3b) ci-dessous.

Tableau (4.3a) : Valeurs du coefficient spéculaire «  $P_{\text{eff}}$  », avant et après traitements thermiques [24].

T (°C)	Avant recuit	Après recuit
$\rho_0$ ( $\mu\Omega\text{cm}$ )	1.82	1.82
$\rho_\infty$ ( $\mu\Omega\text{cm}$ )	0.3	2.6
$\lambda_0$ (nm)	200	200
$P_{\text{eff}}$ (coefficient de réflexion spéculaire)	0.07	0.55
$P_2$	0,67	0,8

Tableau (4.3b) : Valeurs du coefficient spéculaire «  $P_{\text{eff}}$  », avant et après traitements thermiques [25].

T (°C)	Avant recuit	Après recuit
$\rho_0$ ( $\mu\Omega\text{cm}$ )	1.82	1.82
$\rho_\infty$ ( $\mu\Omega\text{cm}$ )	2.5	1.6
$\lambda_0$ (nm)	180	250
$P_{\text{eff}}$ (coefficient de réflexion spéculaire)	0.98	0.99
$P_2$	0.96	0.98

Les résultats indiqués dans les tableaux ci-dessus, montrent que le coefficient de réflexion spéculaire P augmente après avoir effectué un traitement de recuit sur une couche mince. Ce résultat est prévisible et conforme aux travaux antérieurs mentionnés dans la littérature [17, 18,19].

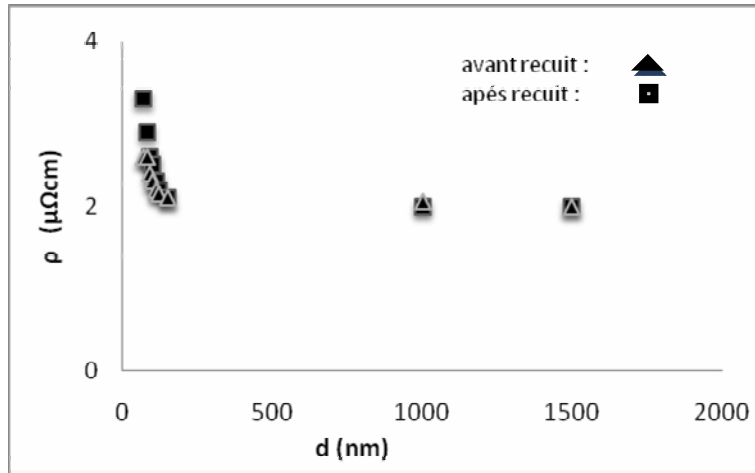


Fig. 4.8 (a): Variations de «  $\rho_f$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  » avant et après recuit selon [24].

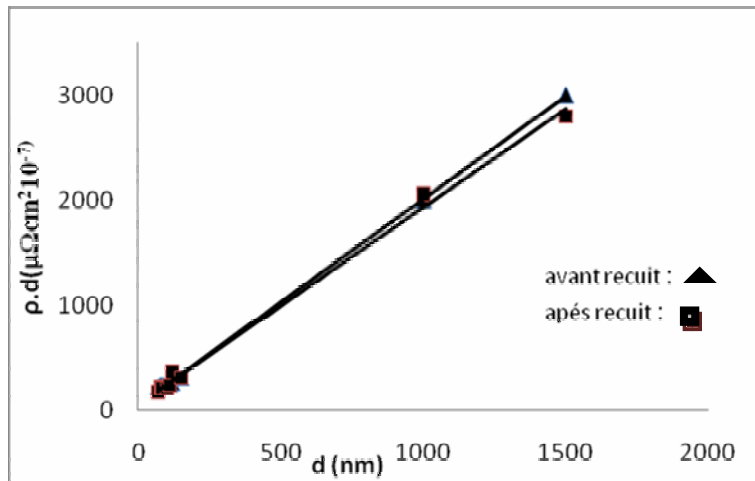


Fig. 4.8 (b): Variations de «  $\rho_f \cdot d$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  » avant et après recuit selon [24].

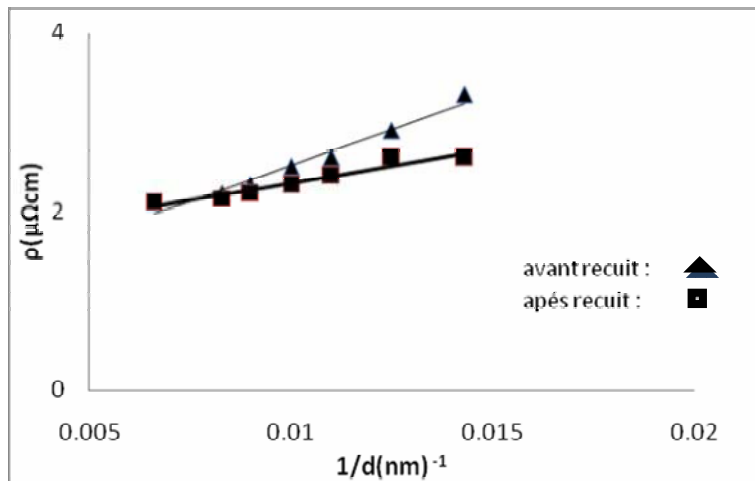


Fig. 4.8 (c): Variations de «  $\rho_f$  » en fonction de «  $1/d$  » avant et après recuit selon [24].

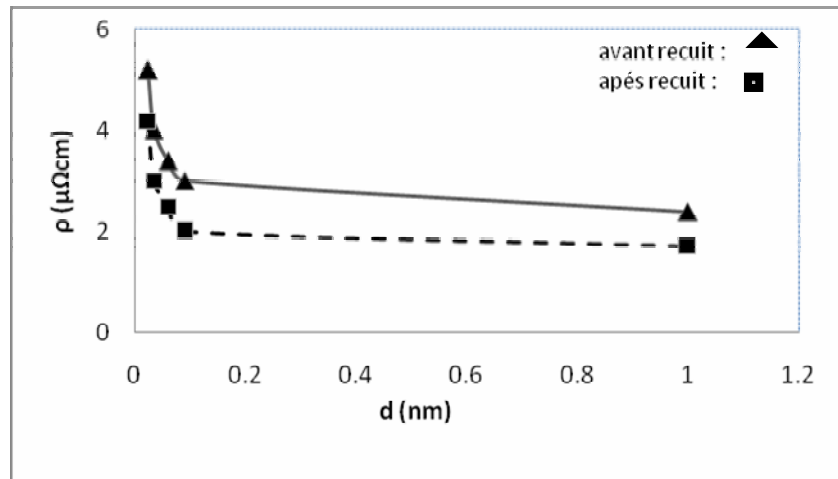


Fig. 4.9 (a): Variations de «  $\rho_f$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  » avant et après recuit selon [25].

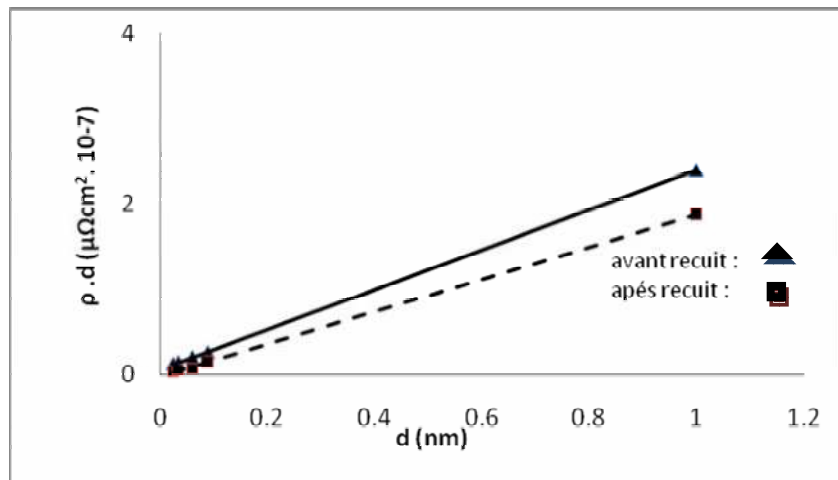


Fig. 4.9 (b): Variations de «  $\rho_f d$  » en fonction de l'épaisseur «  $d$  » avant et après recuit selon [25].

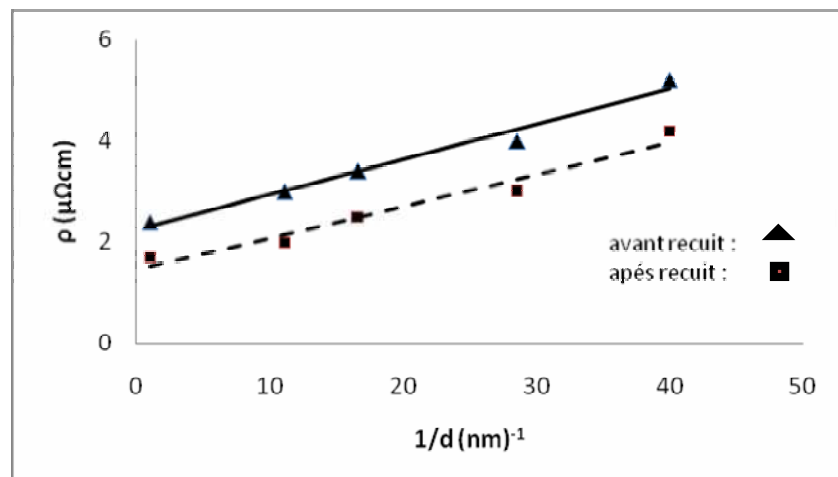


Fig. 4.9 (c): Variations de «  $\rho_f$  » en fonction de «  $1/d$  » avant et après recuit selon [25].

#### IV.4 Variation du c. t. r. avec les paramètres dimensionnels

Etant donné le caractère aléatoire des événements qui sont à l'origine des phénomènes de transport ; des calculs numériques approfondis nécessitent des logiciels performants.

Ce travail a été initié ces quelques dernières années dans certains laboratoires de recherche qui s'intéressent à l'effet de taille sur la conduction dans les couches minces métalliques.

Dans notre cas, nous avons montré que l'utilisation des expressions asymptotiques proposées dans la littérature peut rendre compte de manière acceptable sur les interprétations des résultats expérimentaux. Dans ce paragraphe, nous avons examiné les effets dimensionnels sur le c. t. r. en utilisant Matlab (simulink), à partir des équations asymptotiques présentés dans le 3<sup>ème</sup> chapitre d'une part et donnons d'autre part certains résultats expérimentaux décrivant le c. t. r. dans les couches minces métalliques des doubles fils fins métalliques coaxiaux.

Le but de ce travail consiste à examiner l'évolution des courbes utilisées en fonction des différents paramètres. Il ne s'agit pas ici pour nous de déterminer des valeurs exactes mais plutôt d'avoir une idée sur l'allure que peut prendre la forme générale des courbes utilisée. Une approche avec des résultats expérimentaux est donnée à la fin de ce paragraphe.

Pour examiner les variations du c. t. r. réduit en fonction du paramètre dimensionnel  $\mu$  et  $\nu$ , nous avons utilisé les équations approximatives obtenues dans les différents modèles.

Où le  $G(\nu)$  est la fonction habituelle du modèle tridimensionnel donnée par :

$$\sigma_{lg}/\sigma_{l0} = G(\nu) = 3/(2b_1^3) \{a_1^3 - 1/2 + (1 - a_1^3)^{1/2} \ln(1 + 1/3)\}$$

(4.27)

Avec :  $b_2 = \frac{(1 - C)}{\nu}$

$$a_2 = \frac{1 + \frac{C^2}{\nu}}{b_2}$$

Les résultats obtenus représentant les variations de  $\beta_f/\beta_0$  en fonction de  $\gamma$  pour des valeurs constantes de  $\mu$  ( $\mu = 0.2; 0.4; 0.6; 0.8$ ) sur la figures (4.12), et celles de  $\beta_f/\beta_0$  en fonction de  $\mu$  pour des valeurs constantes de  $\gamma$  ( $\gamma = 0.04; 0.01; 0.4; 0.5; 1$ ) sur la figure 4.13.

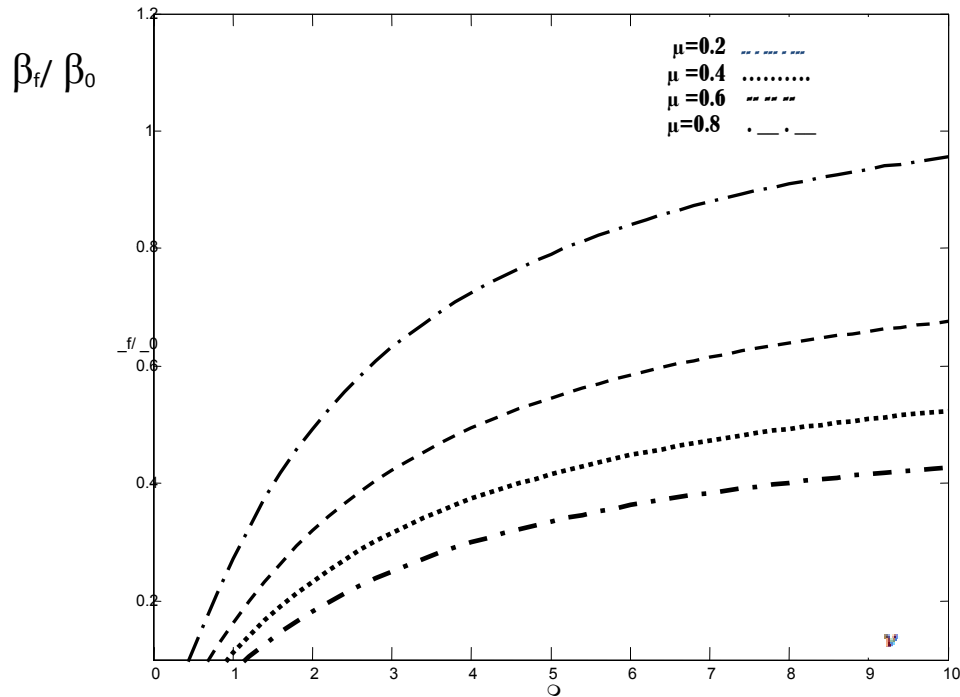


Fig. 4.12 Variations du coefficient de température de la résistivité réduit  $\frac{\beta_f}{\beta_0}$  en fonction de  $\gamma$ .

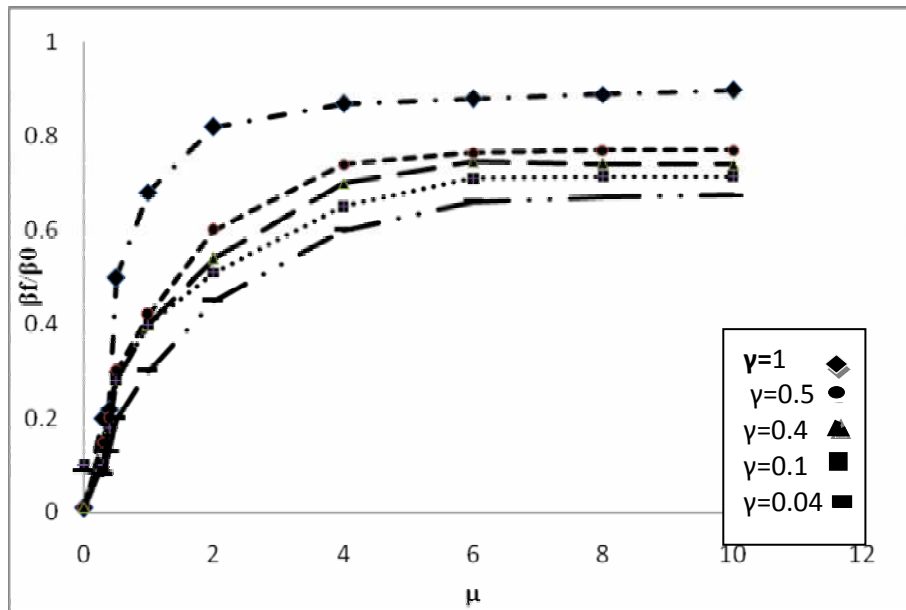


Fig. 4.13 Variations du coefficient de température de la résistivité réduite  $\frac{\beta_f}{\beta_0}$  en fonction de  $\mu$ .

Pour terminer nous avons jugé utile de donner des applications expérimentales, permettant de confirmer les résultats numériques présentés au début de ce paragraphe.

1. A cet effet nous représentons sur la figure (4.14) les résultats donnés Kumar et al [25], qui traite de la Variation du c. t. r en fonction de l'épaisseur d'une double couche mince métallique planes.
2. sur la figure (4.15) les résultats donnés Saci Messaadi et al [26], qui traite de la Variation du c. t. r en fonction de l'épaisseur pour deux fils fins métalliques coaxiaux d'or et d'argent  $\beta_{01}, \beta_{02}, \lambda_{01}$  et  $\lambda_{02}$  sont respectivement les coefficients de température de la résistivité et les libres parcours moyens des métaux massifs constituant respectivement le fil intérieur et le fil extérieur. En désignant le rapport des diamètres des deux fils coaxiaux ( $a_1$  et  $a_2$ ), par  $m$ , et les épaisseurs réduites par :  $K_1$  et  $K_2$  tel que :

$$m = \frac{\alpha_2}{\alpha_1}, \quad K_2 = \frac{2\alpha_2}{\lambda_{02}}, \quad K_1 = \frac{2\alpha_1}{\lambda_{01}}$$

Les valeurs numériques obtenues du c. t. r. pour différentes valeurs de  $P_1$ ,  $m$ , et  $S$  en prenant les valeurs numériques des coefficients de température de la résistivité des métaux massifs d'or et d'argent, données par Elhiti et al [27].

Les valeurs prises dans ces calculs correspondent à :

Pour l'argent, on a:  $\beta_{01} = 41.10^{-4}K^{-1}$

Pour l'or, on a:  $\beta_{02} = 34.10^{-4}K^{-1}$

Les variations du coefficient de température de la résistivité réduit  $\frac{\beta_f}{\beta_{01}}$  en fonction de  $K_1$  sont données sur les figures (4.14) et (4.15) suivantes. Il apparait clair que ces résultats sont en très bon accord avec les prédictions représentées sur les figures (4.12) et (4.13).

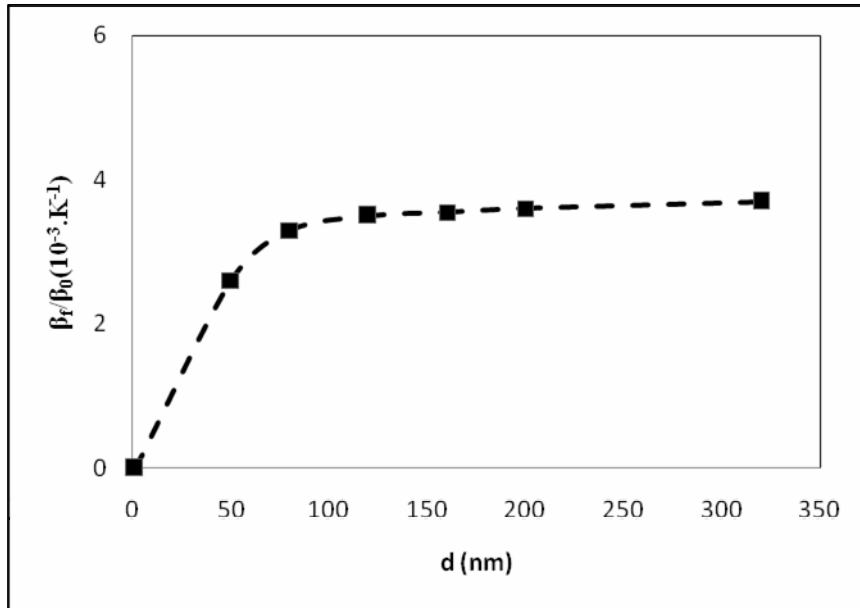


Figure 4.14 Variations du coefficient de température de la résistivité réduite  $\frac{\beta_f}{\beta_0}$  en fonction de « d »

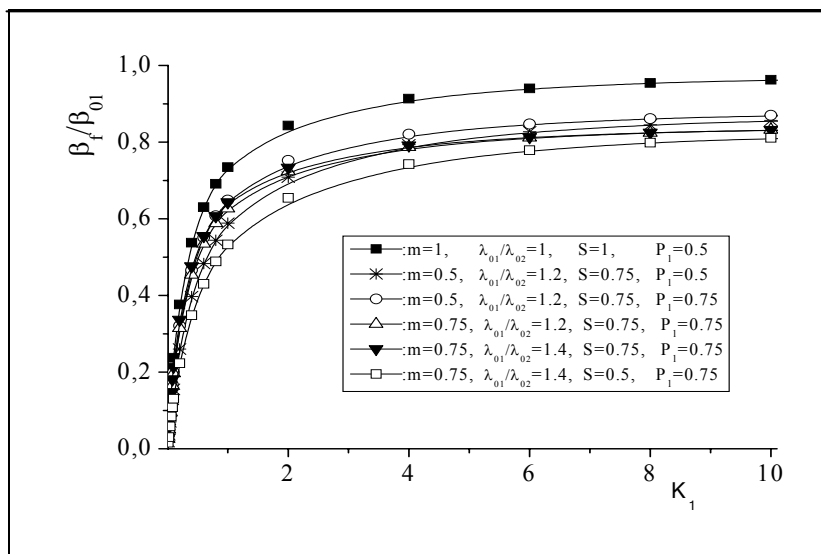


Figure. 4.15 Variations du coefficient de température de la résistivité réduite  $\frac{\beta_f}{\beta_{01}}$  en fonction de l'épaisseur réduite «  $K_1$  »

Conclusion

Les effets dimensionnels dans les couches minces métalliques planes aussi bien que dans les fils fins métalliques peuvent être interprétés de manière satisfaisante en utilisant les modèles statistiques.

En effet l'examen de l'effet de la température sur la résistivité électrique et aussi celui du coefficient de la température de la résistivité ont bien été interprétés à partir des expressions asymptotiques déduites des modèles statistiques. Les résultats obtenus sont en bon accord avec ceux de la littérature.

L'approche numérique du c. t. r. gagnerait à être revue en utilisant des logiciels de calcul plus performants.

Une couche mince d'un matériau donné est un élément de ce matériau dont l'une des dimensions, qu'on appelle l'épaisseur, a été fortement réduite, de telle sorte qu'elle s'exprimera habituellement en nanomètres. Cette très faible distance entre les deux surfaces limites entraîne une perturbation de la majorité des propriétés physiques. La différence essentielle entre le matériau à l'état massif et à l'état de couche mince est en effet liée au fait que, dans l'état massif, on néglige, généralement avec raison, le rôle des limites dans les propriétés, tandis que, dans une couche mince, ce sont au contraire les effets liés aux surfaces limites qui peuvent être prépondérants. Quel que soit le procédé utilisé, il est intuitif qu'en deçà d'une certaine épaisseur une couche mince ne sera pas continue. Il convient de noter que l'épaisseur pour laquelle la couche mince est continue, comme les propriétés physiques en général dépendent à la fois du matériau et du procédé de fabrication. L'étude de la conductivité électrique dans les couches minces métalliques est influencée par les différents phénomènes de diffusion qui sont dus essentiellement aux effets des diffusions par les phonons, les surfaces externes et des joints de grains.

Ce mémoire est structuré comme suit :

1. Le 1<sup>er</sup> chapitre contient un rappel des théories anciennes de la conductivité électrique dans les métaux (théorie de Drude et de celle de Sommerfeld). Ces théories n'abordent que les phénomènes de la conduction dans le métal massif.
2. Le 2<sup>ème</sup> chapitre décrit certaines théories de la conduction dans les couches minces métalliques. En effet les théories les plus utilisées dans ce domaine sont celles du modèle unidimensionnel introduit par Fuchs-Sondheimer en 1938, et celui de Mayadas-Shatzkes, élaboré en 1970, pour tenir compte des effets des joints de grain ; néanmoins ce modèle est aussi unidimensionnel. Les modèles statistiques sont les plus récents, du fait qu'ils n'aient été introduits qu'à partir de 1977. Ils sont basés sur la procédure de calcul de Cottey (modèle élaboré en 1968), pour les libres parcours moyens, tiennent compte des effets simultanés dus aux surfaces externes et des joints de grains et permettent des représentations tridimensionnelles ; donc plus proches de la réalité physique ; ils sont à notre

avis de bons candidats pour décrire la conduction électrique dans les couches minces métalliques.

3. Dans le 3<sup>ème</sup>, nous avons étudié les expressions mathématiques du coefficient de température de la résistivité à partir des modèles présentés auparavant.

4. Le 4<sup>ème</sup> chapitre est consacré à certaines applications expérimentales, dans le cadre des modèles statistiques. L'étude de la conductivité des couches minces de cuivre a été l'objet du 1<sup>er</sup> paragraphe de ce chapitre, l'effet de la température et du recuit sur la conductivité électrique des couches de cuivre a été examiné dans le 2<sup>ème</sup> paragraphe et le 3<sup>ème</sup> paragraphe est consacré à l'étude de l'influence des paramètres dimensionnels sur le c. t. r. d'une part et à l'examen des résultats expérimentaux d'autre part.

Pour conclure, nous pouvons affirmer que le travail présenté dans ce mémoire a montré que l'influence des effets de surfaces et des joints de grain sur la conductivité électrique et son coefficient de température ayant été examinées à partir des modèles de conceptions statistiques sont en bon accord avec les résultats donnés dans la littérature. Cependant notons que Si la description de la conductivité électrique peut être obtenue à partir de modèles unidimensionnels ; d'autres phénomènes physiques tel que l'effet Hall, exigent une représentation multidimensionnelle; ce que les modèles utilisées par les auteurs ne permettent pas.

## ***Bibliographie***

- [1] N. W. Ashcroft et N. D. Mermin, "solid State Physics", Saunders college, Philadelphia, 1988.
- [2] Quéré Y. "Physique des matériaux", Ecole Polytechnique - ellipse, Paris, 1988.
- [3] Kittel C. "Physique de l'état solide" - 7<sup>ème</sup> édition, Dunod, Paris, 1998.
- [4] Loys J. "Physique quantique et structure de la matière", cours ENSM-SE, 2000.
- [5] Philippe Robert, "Traité d'électricité, Matériaux de l'électrotechnique", 3<sup>ème</sup> édition, 1987-1989, Lausanne.
- [6] Basdevant J., "Mécanique Quantique", Ecole Polytechnique - ellipse, Paris, 1986.
- [7] K.Fuchs, "The conductivity of thin metallic films according to the electron theory of metals," *Proc Cambridge Philosophical Society*, (1938), pp. 100-108.
- [8] A. A.Cottey, "The electrical conductivity of thin metal films with very smooth surfaces", School of mathematics and physics, University of East Anglia Norwich.(Gt.Britain). *Thin Solid Films*, 1(1967)297.
- [9] A. F. Mayadas, M. Shatzkes, "Electrical-resistivity model for polycrystalline films: the case of arbitrary reflection at external surfaces". *Phys.Rev. B* 1(1970)1382.
- [10] Christiane Pichard, "Analyse des propriétés électriques de couches métalliques à l'aide de libre parcours moyens" thèse de docteur-es-sciences Université de Nancy, (1985).
- [11] C. R.Tellier and A. J.Tosser, "Size effects in thin films", Elsevier Scientific publishing Company, New York N.I. 10017, 61(1979) 349-354.
- [12] J.M.Ziman, "Electrons and phonons", Oxford University Press, London (1962).
- [13] F. Warkusz, *Act. Phys. Polon.*, A 54 (1978) 31-38
- [14] C.R.Tellier and A.J.Tosser, "The Mayadas-Shatzkes conduction model treated as a Fuchs-Sondheimer" *Thin solid films*, 44(1977)53-61
- [15] E. E. Molas and J. M. Heras, *Electro. comp. Science and Technology*, (1974), Vol. 1, pp. 77—80.
- [16] Y.Nomba, *Jpn .J.Appl.phys.* 9(1970)1326.
- [17] Saci Messaadi, "Modélisation des phénomènes de transport dans les couches minces métalliques-Effets d'interfaces couches amorphes", thèse de doctorat, Université de Nancy, 1987.

- [18] C.R.Tellier and A.J.Tosser, "Short communication Size effects in the thermal variation of the hall coefficient" *Thin Solid Films*, 60(1979)91-95.
- [19] C.R.Pichard, S.Messaadi, et A.J.Tosser and C.R.Tellier, "analytical expression of electrical resistivity of double layer metal films" *J.mat.sci .letters*, 23(1988)189-193.
- [20] M.Bedda, S.Messaadi, C.R.Pichard et A.J.Tosser, *J.Mater.Sci*, "analytical expression for the total conductivity of annealed and unannealed metal films", 21(1986)2643.
- [21] G. Steinlesberger, M. Engelhardt, G. Schindler, W. Steinhogel, A. von Glasow, K. "Electrical assessment of copper damascene interconnects down to sub-50 nm feature sizes" *Microelectronic Engineering* 64 (2002) 409–416
- [22] Sean X. Shi and David Z. Pan, Department of Electrical and Computer Engineering University of Texas at Austin, Austin, TX 78712, USA, Wire Sizing with Scattering Effect for Nanoscale Interconnection,
- [23] T. S. Kuan, C. K. Inodi, Oherlein, K. Rose, P. Zhao, C. Wang, S. M. Rosenthal and C. Cabral, "Fabrication and performance limits of sub -0.1  $\mu\text{m}$  Cu Interconnects" *Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 612 (2000) D1. 1.7- D1. 1.-8.*
- [24] Sylvain Maitrejean, Roland Gers, Thierry Mourier, Alain Toffoli, and Gérard Passemar, "Cu Resistivity in Narrow lines: Dedicated Experiments for Model Optimization", *Mater. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 914 © 2006 Materials Research Society, 0914-F09-07.*
- [25] A. Kumar, G. Chandra, O. P. Katyal, "The study of temperature coefficient of resistivity of polycrystalline metal films", *J. Mat. Sc.* 23 (1988) 2361-2364
- [26] Saci. Messaadi, Linda Bennour and Hadria Medouer, "expression for the total conductivity and the temperature coefficient of resistivity of two thin coaxial metallic wires", *Physica E* 40, 4 (2008), 886 889.
- [27] M.A.El HITI, G.Chondro, O.P.Katyal, *J.mat sci.*23 (1988)2361-2364.

## **Résumé :**

Le travail présenté dans ce mémoire de magister est consacré à l'étude de la conductivité électrique et son coefficient de température de la résistivité (c. t. r.). Nous avons présenté d'abord un bref rappel sur la théorie élémentaire de la conductivité électrique dans les métaux massifs, puis certaines théories de base décrivant la conduction électrique dans les couches minces métalliques (modèles de Fuchs-Sondheimer, Mayadas-Shatzkes, Cottey et statistiques). Dans tous les modèles considérés, les phénomènes de diffusions par les phonons, les surfaces externes et par les joints de grain sont supposés avoir lieu de manière indépendante et donc obéissent à la règle de Mentthiessen. Les expressions du c. t. r. peuvent dérivées de ces modèles, et des expressions approximatives relativement simples ont été utilisées pour rendre compte de la réalité physique lors de l'étude des données expérimentales. D'une part, nous avons réexaminé, à partir des modèles statistiques des travaux très récemment publiés relatifs à la conductivité électrique, à l'influence de la température sur les effets dimensionnels et celui du recuit dans les couches minces de cuivre, et d'autre part étudié les variations du c. t. r. avec les paramètres dimensionnels. Nos résultats sont en excellent accord avec ceux donnés dans la littérature.

## **Abstract:**

The work presented in this memory of magister is devoted to the study of electrical conductivity and its temperature coefficient of the resistivity (c. t. r.). We initially presented a short recall on the elementary theory of electrical conductivity in bulk materials, then certain basic theories describing electronic conduction in the metallic films (model of Fuchs-Sondheimer, Mayadas-Shatzkes, Cottey and statistical models). In all the models considered, the phenomena of diffusions by phonons, the external surfaces and by the grain boundaries are supposed to act independently and thus obey the rule of Mentthiessen. The expressions of c. t. r. can be derived from these models, and the relatively simple approximate expressions were used to account for physical reality at the time of the study of the experimental data. On the one hand, we re-examined, starting from the statistical models of work very recently published relating to electric conductivity, the influence of the temperature on the dimensional effects and that of annealing in the thin layers of copper, and on the other hand studied the variations of c. t. r. with the dimensional parameters. Our results are in excellent agreement with those given in the literature.

## **ملخص:**

العمل المقدم في هذه الأطروحة مقسم إلى أربعة أجزاء وهو مخصص لدراسة الناقلية الكهربائية و معامل درجة الحرارة للمقاومية. حيث قمنا بتقديم ملخص حول المفاهيم الأولية للناقلية الكهربائية في المعادن وبعض المفاهيم الأساسية التي تنطبق للتعريف بالناقلية الكهربائية في الصفائح الرقيقة المعدنية، من خلال بعض النماذج التي تطرقت لذلك (نماذج فوكس-سند يمر، مياداس-شتسكس، كوطي والنماذج الإحصائية). في كل هذه النماذج يفترض ان المسارات الوسطية الحرة الناتجة عن مختلف العوامل الفيزيائية مستقلة و منه يمكن استعمال قاعدة ماتيسون . كما ان عبارات معامل الحرارة للمقاومية يمكن استنتاجها من النماذج السابقة كما استعملت علاقات مقارنة و بسيطة لتوضيح الظواهر الفيزيائية من خلال دراسة معطيات بعض التجارب المنشورة حديثا ، وكاتت النتائج جد متوافقة مع ما تم تقديمه في الأدبيات.