

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
Université Ibn Khaldoun - Tiaret



Faculté des Sciences de la Matière
Département de Physique

Mémoire

*Pour obtenir le diplôme de
Master II*

*Filière Physique
Spécialité : Nano - physique*

Etudiant :

MADANI Mohamed Alaa edine

Thème :

*Etude et simulation de la conduction électrique dans une
couche mince métallique*

Date de Soutenance : 13 Septembre 2021

Lieu : Amphi A

Heure de soutenance : 9h

Devant le jury :

Mr. BAGHDAD Rachid	Président
Mr. SENOUCI Djamel Eddine	Examineur
Mr. HADJ-ZOUBIR Nasreddine	Encadrant

ANNEE UNIVERSITAIRE:2020/2021

REMERCIEMENTS

« Louange à Allah qui nous a guidés à ceci. Nous n'aurions pas été guidés, si Allah ne nous avait pas guidés » [Sourate 7. Al Araf verset 43]

*Je voudrais tout d'abord adresser toute ma gratitude à mon directeur de mémoire, le Professeur **Nasreddine HADJ-ZOUBIR** pour son engagement, son aide, ses précieux conseils et pour le temps qu'il a consacré à m'apporter les outils méthodologiques indispensables à la conduite de cette recherche. Je tiens à le remercier tout particulièrement pour son soutien tout au long de ce projet, je souhaite lui témoigner toute ma reconnaissance.*

*Je tiens à exprimer mes plus vifs remerciements à Monsieur **BAGHDAD Rachid** pour avoir accepté de présider le jury. Je tiens à remercier également Monsieur **SENOUCI Djamel Eddine** pour avoir accepté d'examiner mon travail.*

J'adresse mes sincères remerciements à tous les professeurs et toutes les personnes qui par leurs paroles, leurs écrits, leurs conseils et leurs critiques m'ont permis de mener à bien mon travail.

Je souhaite témoigner de la richesse de cette année au travers d'un corps professoral passionné, déterminé et qui a toujours su manifester son soutien. Je remercie toutes ces personnes qui ont contribué au renforcement de mes connaissances et qui m'ont donné les outils indispensables à la poursuite de mes études.

*Je souhaite particulièrement remercier mon ami de toujours, **BENGARNA Naserddine** pour son accompagnement, son soutien et son amitié durant toutes ces années et pour l'ensemble de mes projets.*

Enfin, je souhaite à tous les lecteurs de ce mémoire de découvrir avec intérêt cette modeste contribution dans le champ de la nano-physique.

DEDICACE

Table des matières

Remerciements	2
Dédicace	3
Liste des figures	6
Liste des tableaux	10
Introduction	13
Chapitre I : Généralités sur les couches minces	17
I.1. Définition d'une couche mince	17
I.2. Propriétés spéciales des couches minces	18
I.3. Principales techniques d'élaboration des couches minces.....	18
I.4. Applications des couches minces.....	19
I.5. Etapes de formation d'une couche mince	20
I.6. Classification des modes de croissance des couches minces.	22
Chapitre II : Théories de la conduction électrique dans un métal	25
II.1. Règle de Matthiessen.....	26
II.2. Le modèle de Drude	28
II.3. Le modèle de Drude/Sommerfeld	31
Description du modèle.....	32
A. Approximation des électrons libres	32
B. Distribution de Fermi-Dirac.....	34
II.4. Equation de Boltzmann.....	36
II.I Conductivité électrique dans un métal et fonction de distribution	45
Chapitre III : La conductivité électrique dans une couche mince	51
III.1. Le modèle de Fuchs-Sondheimer.....	51
Cas où p n'est pas le même pour les deux surfaces.	56
III.2. Effet de la rugosité de surface dans le modèle FS	57
III.3. Le modèle de Mayadas-Shatzkes (MS)	58
Cas d'une couche d'épaisseur « infinie ».....	60

III.4. Influence des impuretés et des pores sur la résistivité	63
III.5. L'approximation de Tellier, Tosser et Pichard	63
Chapitre IV : Résultats & commentaires	67
IV.1. Le modèle de Fuchs-Sondheimer	67
Cas où le paramètre spéculaire p est unique.....	67
Cas où le paramètre spéculaire est différent pour les deux surfaces : $p_1 \neq p_2$	74
1 Effet de la rugosité de surface dans le modèle FS	83
2 Le modèle de Mayadas - Shatzkes	101
Influence des joints de grain (seuls) sur la résistivité	101
Influence du coefficient de réflexion R	103
Influence du diamètre des grains	104
Influence conjuguée des joints de grain et des surfaces sur la résistivité.....	106
Conclusion	118
Annexe A : Quelques exemples d'application des modèles	120
1 Diffusion de surface dans les couches minces monocristallines	120
2 Diffusion combinée sur les surfaces et les joints de grain de couches minces polycristallines	121
Annexe B : Définition de la rugosité d'une surface	125
Annexe C : Exemples de scripts Python.....	129
1 Script relatif au modèle de Fuchs-Sondheimer.....	129
2 Script relatif au modèle de Mayadas-Shatzkes.....	130
Bibliographie	132

Liste des figures

Figure I. 1: Géométrie d'une couche mince	17
Figure I. 2: Différents processus ayant lieu lors du début de croissance d'une couche mince	21
Figure I. 3: Représentation schématique des étapes de formation d'une couche mince	21
Figure I. 4 : Les modèles de croissance.....	23
Figure II. 1: Mouvement aléatoire de l'électron dans le solide en l'absence et en présence d'un champ électrique.....	29
Figure II. 2: Élément de volume représentatif et conditions aux limites périodiques en 2D	32
Figure II. 3: Illustration en 2D des niveaux d'énergie et du nombre N d'états possibles associés ..	34
Figure II. 4: Fonction de distribution de Fermi-Dirac à différentes températures, pour une température de Fermi $T_F = \mu_F / k_B = 50000K$	36
Figure II. 5: Effet de l'application d'un champ électrique suivant l'axe x (E_x).....	43
Figure II. 6: Processus de diffusion dans l'espace des $k \rightarrow$ (commentaires dans le texte). (D'après [21]).....	44
Figure II. 7: Représentation de $f_0 E$ en fonction de $E k_B$ pour différentes valeurs de T, montrant sa variation rapide autour de T_F (ou E_F).	47
Figure III. 1 : Représentation schématique de la trajectoire d'un électron dans une couche métallique d'épaisseur d sous l'influence d'un champ électrique appliqué suivant la direction x. ...	52
Figure III. 2 : Variation de g^+ et de g^- en fonction de la distance z, pour une valeur fixée de la vitesse	55
Figure III. 3: Variation de $\rho_{FS} \rho_i$ en fonction de $d\lambda$ pour différentes valeurs de p dans le cas du composé métallique $CoSi_2$ (D'après [32]).	56
Figure III. 4 : Géométrie adoptée dans le modèle de Mayadas-Shatzkes	59
Figure III. 5: Configuration de la couche mince et du champ électrique appliqué	60
Figure III. 6: Variation de la résistivité totale résultat de la combinaison de deux modèles de diffusion sur les joints de grain et les surfaces d'une couche mince de cuivre : modèle (FS + MS) (équation 23) et modèle MSS (équation 21). (D'après [40])	62
Figure Rés 1 : Variation du rapport des résistivités $\rho_{FS} \rho_i$ en fonction de $d\lambda$ (épaisseur de la couche mince rapportée à la valeur du libre parcours), pour 5 valeurs du paramètre spéculaire p.....	68
Figure Rés 2 : Représentation de la variation relative de résistivité $\Delta \rho_{FS} \rho_i$ en fonction de $d\lambda$ pour les mêmes cinq valeurs de p de la Figure Rés 1. La droite verticale correspond à la valeur $d\lambda = 1,5$	68

Figure Rés 3 : Représentation de la variation de l'épaisseur minimale d_{min} en fonction du paramètre spéculaire pour 4 couches métalliques différentes.	71
Figure Rés 4 : Comparaison entre les variations de $\rho_{FS\rho_i} = fd/\lambda$ pour $d/\lambda \ll 1$, obtenues par le calcul de l'intégrale de l'équation (11) après développement limité (courbe noire), par l'équation approximative (13) (couleur rouge) et par l'équation générale FS (11) (courbe verte). Cas où $p = 0,5$	72
Figure Rés 5 : Courbes de la Figure Rés 4 tracées en mode log-log.....	73
Figure Rés 6 : Variation du rapport des résistivités $\rho_{FS\rho_i}$ en fonction de $d/\lambda \ll 1$. Cas où $p = 0,9$	73
Figure Rés 7 : Courbes de la Figure Rés 6 tracées en mode log-log.....	74
Figure Rés 8 : Apparition d'une singularité en $d\lambda = 2,04$ dans le tracé du rapport des résistivités pour les valeurs indiquées de p_1 et de p_2	75
Figure Rés 9 : Apparition d'une singularité en $d\lambda = 1,9$ dans le tracé du rapport des résistivités pour les valeurs indiquées de p_1 et de p_2	76
Figure Rés 10 : Apparition d'une singularité en $d\lambda = 1,43$ dans le tracé du rapport des résistivités pour les valeurs indiquées de p_1 et de p_2	76
Figure Rés 11 : Apparition d'une singularité en $d\lambda = 1,36$ dans le tracé du rapport des résistivités pour les valeurs indiquées de p_1 et de p_2	77
Figure Rés 12 : Apparition d'une singularité en $d\lambda = 1,127$ dans le tracé du rapport des résistivités pour les valeurs indiquées de p_1 et de p_2	78
Figure Rés 13 : Allure de la courbe représentant l'épaisseur d_{prob} en fonction du paramètre moyen $p = p_1 + p_2^2$ pour 4 couches minces métalliques différentes.....	81
Figure Rés 14 : Représentation de la fonction $\rho_{FS\rho_i} = fd\lambda$ dans le cas général ($d\lambda$ quelconque, courbe '---') et dans le cas $d\lambda \gg 1$ (courbe '---') pour des valeurs différentes de p_1 et de p_2	82
Figure Rés 15 : Variation de $\rho_{Soffer\rho_i}$ en fonction de $d\lambda$ pour différentes valeurs des rugosités des deux surfaces de la couche mince.	84
Figure Rés 16 : Tracé des courbes de la Figure Rés 15 en mode log-log.	84
Figure Rés 17.....	86
Figure Rés 18.....	87
Figure Rés 19 :Variation de l'incertitude relative ΔRR en fonction de $\log d\lambda$	89
Figure Rés 20 : Variation de R_2 en fonction de R_1 pour $0,01 \leq d\lambda \leq 10$, et 4 valeurs du couple r_1, r_2	90

Figure Rés 21 :Variation de $\Delta\rho_{\text{Soffer}}$ en fonction de $d\lambda$ pour 4 couches métalliques différentes en représentation linéaire (a) et log-log (b). Cas où $r_1, r_2 = 0,5; 0,01$.	91
Figure Rés 22 :Variation de $\Delta\rho_{\text{Soffer}}$ en fonction de $d\lambda$ pour 4 couches métalliques différentes en représentation linéaire (a) et log-log (b). Cas où $r_1, r_2 = 0,5; 10$.	92
Figure Rés 23 :Variation de $\Delta\rho_{\text{Soffer}}$ en fonction de $d\lambda$ pour 4 couches métalliques différentes en représentation linéaire (a) et log-log (b). Cas où $r_1, r_2 = 1; 0,01$.	93
Figure Rés 24: Variation de $\Delta\rho_{\text{Soffer}}$ en fonction de $d\lambda$ pour 4 couches métalliques différentes en représentation linéaire (a) et log-log (b). Cas où $r_1, r_2 = 1; 2$.	93
Figure Rés 25: Variation de $\Delta\rho_{\text{Soffer}}$ en fonction de $d\lambda$ pour 4 couches métalliques différentes en représentation linéaire (a) et log-log (b). Cas où $r_1, r_2 = 10; 0,01$.	94
Figure Rés 26: Variation de $\Delta\rho_{\text{Soffer}}$ en fonction de $d\lambda$ pour 4 couches métalliques différentes en représentation linéaire (a) et log-log (b). Cas où $r_1, r_2 = 10; 10$.	94
Figure Rés 27 :Variation de la résistivité de Soffer avec la rugosité de la 2 ^{ème} surface de deux couches minces (Ag et Al), pour $d\lambda = 0,1$ et $r_1 = 0,5$.	98
Figure Rés 28: Variation de la résistivité de Soffer avec la rugosité de la 2 ^{ème} surface de deux couches minces (Ag et Al), pour $d\lambda = 0,1$ et $r_1 = 1$.	98
Figure Rés 29 : Variation de la résistivité de Soffer avec la rugosité de la 2 ^{ème} surface de deux couches minces (Ag et Al), pour $d\lambda = 0,1$ et $r_1 = 10$.	99
Figure Rés 30 :Variation de la résistivité de Soffer avec la rugosité de la 2 ^{ème} surface de deux couches minces (Ag et Al), pour $d\lambda = 1$ et $r_1 = 0,5$.	99
Figure Rés 31 :Variation de la résistivité de Soffer avec la rugosité de la 2 ^{ème} surface de deux couches minces (Ag et Al), pour $d\lambda = 10$ et $r_1 = 1$.	100
Figure Rés 32 : Variation du rapport des résistivités ρ_{MSpi} avec α	102
Figure Rés 33 : Comparaison entre les courbes relatives à α quelconque, et les formes approximatives de l'équation 19, $\alpha \ll 1$ et $\alpha \gg 1$ du modèle MS.	102
Figure Rés 34 :Variation de ρ_{MSpi} avec l'inverse du diamètre moyen des grains pour deux valeurs du coefficient de réflexion R.	103
Figure Rés 36 : Variation de la résistivité d'une couche mince Cu rapportée à la résistivité de volume en fonction de R et pour 4 diamètres de grain différents.	104
Figure Rés 37 : Variation de la résistivité d'une couche mince Al rapportée à la résistivité de volume en fonction de R et pour 4 diamètres de grain différents.	105
Figure Rés 38 : Variation de ρ_{MSpi} en fonction du diamètre des grains pour les couches Cu et Al. Cas où $R = 0,5$.	106

Figure Rés 39 : Variation de $\rho_{MSS\rho_i}$ en fonction de $d\lambda$ pour 6 valeurs différentes du coefficient R. Cas où $p = 0,9$ et $\lambda_D = 1$. A droite, sont représentées les 6 courbes dans l'intervalle $0,05 \leq d\lambda \leq 0,5$	107
Figure Rés 40 : Variation de $\rho_{MSS\rho_i}$ en fonction de $d\lambda$ pour 6 valeurs différentes du coefficient R. Cas où $p = 0,3$ et $\lambda_D = 1$. A droite, sont représentées les 6 courbes dans l'intervalle $0,05 \leq d\lambda \leq 0,5$	108
Figure Rés 41 : Variation de $\rho_{MSS\rho_i}$ en fonction de $d\lambda$ pour 6 valeurs différentes du coefficient R. Cas où $p = 0,9$ et $\lambda_D = 0,5$. A droite, sont représentées les 6 courbes dans l'intervalle $0,05 \leq d\lambda \leq 0,5$	110
Figure Rés 42 : Variation de $\rho_{MSS\rho_i}$ en fonction de $d\lambda$ pour 6 valeurs différentes du coefficient R. Cas où $p = 0,3$ et $\lambda_D = 0,5$. A droite, sont représentées les 6 courbes dans l'intervalle $0,05 \leq d\lambda \leq 0,5$	112
Figure Rés 43 : Variation de la résistivité ρ_{MSSmin} avec le coefficient de réflexion R aux joints de grain dans les cas $p = 0,3$, $\lambda_D = 1$ (a) et $\lambda_D = 0,5$ (b), pour 4 couches minces métalliques polycristallines différentes.....	115
Figure Rés 44 : Variation de la résistivité ρ_{MSSmin} avec le coefficient de réflexion R aux joints de grain dans les cas $p = 0,9$, $\lambda_D = 1$ (a) et $\lambda_D = 0,5$ (b), pour 4 couches minces métalliques polycristallines différentes.....	115
Figure Annexe A. 1 : Représentation de la résistivité normalisée ($\rho_0\rho_\infty$) en fonction de l'épaisseur d'une CM de $CoSi_2$ normalisée (dle). L'épaisseur est notée d , le libre parcours moyen le , la résistivité de la CM ρ_0 et celle d'une couche d'épaisseur infinie ρ_∞ . Les ronds représentent les valeurs expérimentales (D'après [53]).	120
Figure Annexe B. 1 : Profil de surface caractérisé par : longueur d'évaluation L , 5 longueurs de base (cut-off) l . Les pics et les vallées sont définis par rapport à la ligne moyenne	125

Liste des tableaux

Tableau Rés . 1 : Détermination de la valeur d pour 4 couches métalliques différentes .	71
Tableau Rés . 2 : Détermination d'autres singularités	78
Tableau Rés . 3 : Paramètres spécifiques d'une couche mince métallique en fonction du rapport $p = p + p$	79
Tableau Rés . 4 : Détermination des limites d'une couche mince dont le rapport p obéit à l'équation (2) de Chawla. λ est le libre parcours moyen à température ambiante (298 K).....	80
Tableau Rés . 5 : Variation relative du rapport des résistivités pour différentes valeurs de p et de p et pour $d\lambda = 2$	83
Tableau Rés . 6 : Valeurs de l pour différentes valeurs de l $d\lambda$. Les rugosités sont telles que $r = 1 = c$ et r variable.	86
Tableau Rés . 7 : Valeurs de l pour différentes valeurs de l $d\lambda$. Les rugosités sont telles que $r = 1 = c$ et r variable.	89
Tableau Rés . 8 : Valeur de la pente C de la droite $R = f$ pour différentes valeurs du couple r, r et pour $0, 0 \leq d\lambda \leq 1$	90
Tableau Rés . 9 : Valeur de la résistivité de volume de métaux purs à $T = 298 K$ (D'après [51]).	95
Tableau Rés . 10 : Différence Δ entre la résistivité de Soffer d'une couche mince Al et d'une couche mince Ag	100
Tableau Rés . 11 : Valeurs du diamètre moyen D et valeurs correspondantes du rapport des résistivités p	106
Tableau Rés . 12 : Evaluation de l'écart Δ entre les rapports p à saturation et valeurs de p pour 4 couches métalliques de différente nature. Cas où $p = 0, 3$ et R variable.	109
Tableau Rés . 13: Evaluation de l'écart Δ entre les rapports p à saturation et valeurs de p pour 4 couches métalliques de différente nature. Cas où $p = 0, 9$ et R variable... ..	109
Tableau Rés . 14: Valeur du rapport des écarts pour les 4 couches métalliques.	110
Tableau Rés . 15 : Evaluation de l'écart Δ entre les rapports p m et les valeurs de p pour 4 couches métalliques de différente nature. Cas où $p = 0, 3 / \lambda = 0, 5$ et R variable.	112
Tableau Rés . 16 : Valeur du rapport des écarts pour les 4 couches métalliques.	113
Tableau Rés . 17 : Valeur du rapport des écarts pour les 4 couches métalliques.....	113

Tableau Rés . 18 : Evaluation de l'écart Δ entre les rapports ρ m et les valeurs de ρ pour 4 couches métalliques de différente nature. Cas où $p = 0,9/\lambda = 0,5$ et R variable..... 113

Tableau Rés . 19 : Valeur du rapport des écarts pour les 4 couches métalliques.114

Tableau Rés . 20 : Valeur du rapport des écarts pour les 4 couches métalliques.....114

Introduction

Les couches minces métalliques ont toujours été au centre d'un intérêt sans cesse grandissant pour leurs nombreuses applications dans différents domaines et notamment pour la réalisation de connexions en microélectronique.

La résistivité électrique est une grandeur facilement accessible et qui permet de caractériser un matériau donné.

Notre compréhension actuelle de la conduction électrique dans les métaux « massifs » à la température ambiante, est assez complète, mais les couches minces métalliques ont posé des défis nouveaux et ont rendu le sujet plus intéressant. On sait depuis 1901 [1] que la résistivité d'un conducteur métallique pur augmente sensiblement à mesure que ses dimensions sont réduites. L'échelle à laquelle ce phénomène est observé est celle de ce que nous appelons maintenant le libre parcours moyen λ de l'électron dans le métal. C'est la distance moyenne parcourue par un électron avant d'être diffusé, principalement, par les vibrations thermiques du réseau ou phonons (par exemple, $\lambda \approx 40 \text{ nm}$ pour le cuivre à température ambiante). Ce phénomène se produit à des échelles de longueur plus grandes que celles requises pour les effets de taille relatifs au confinement quantique (généralement moins de 2 nm) et est donc communément appelé « effet de taille classique » en ce qui concerne la conductivité électrique des métaux.

L'importance de cet effet pour les interconnexions métalliques polycristallines utilisées dans la technologie du silicium a été mise en avant pour la première fois en 1998 par Chen et Gardner [2]. Cette augmentation de la résistivité des conducteurs à l'échelle nanométrique est une préoccupation pratique importante pour l'industrie de la microélectronique, parce qu'elle a un impact négatif sur les performances des circuits intégrés [3,4,5]. Par conséquent, la conduction métallique et le besoin de comprendre les origines physiques de ce phénomène centenaire ont suscité un regain d'intérêt.

L'organisation de ce mémoire est comme suit. En premier lieu, on donnera un aperçu sur les couches minces : définition d'une couche mince (CM), méthodes d'élaboration sous vide d'une CM, principales applications, physique de la croissance d'une CM. C'est l'objet du chapitre 1 intitulé : Généralités sur les couches minces. Le deuxième chapitre (Théories de la conduction électrique dans un métal) traite des théories classiques ou semi-classiques bâties sur le modèle de Drude qui a eu le mérite de donner une expression mathématique de la conductivité électrique en introduisant la notion de temps de relaxation. Nous avons jugé nécessaire de rappeler la règle de Matthiessen qui est d'une importance capitale et qui permet d'identifier les différents phénomènes de diffusion des électrons dans un métal. Nous avons à la fin de ce chapitre exposé

de façon assez détaillée la fameuse équation de transport de Boltzmann qui permet de mieux cerner le problème et qui montre que, finalement, ce ne sont pas tous les électrons de conduction qui contribuent au courant dans un conducteur métallique, mais principalement ceux dont l'énergie est proche de l'énergie de Fermi E_F . Le troisième chapitre, lui, s'intéresse à l'objet principal de notre étude : la conductivité d'une couche mince métallique. Dans un premier temps, nous exposons la théorie connue sous l'appellation de modèle de Fuchs-Sondheimer (FS) [6, 7] et qui donne une équation mathématique de la conductivité dans une CM métallique monocristalline. Cette théorie basée sur le rôle primordial des deux surfaces limites de la CM qui diffusent les électrons de manière spéculaire ou non, et qui contribuent à la diminution de sa conductivité (ou l'augmentation de sa résistivité). Cet effet est appelé effet de taille (size effect), parce qu'il est lié à la faible épaisseur de la CM qui fait intervenir beaucoup plus les collisions (diffusion) des électrons sur les surfaces limites. Dans un deuxième temps, nous développons la théorie de Mayadas-Shatzkes (MS) [8] qui, elle, s'intéresse à la conductivité dans une CM polycristalline composée (par définition) de grains ou cristallites séparés par des joints de grain, considérés comme des défauts 2D. Dans leur étude, MS montrent que les joints de grain - assimilés à des barrières de potentiel sur lesquels se réfléchissent les électrons - contribuent aussi à l'augmentation de la résistivité électrique d'une CM. Ces auteurs ont également combiné l'effet de taille démontré par FS à leur modèle tenant compte des joints de grain et ont donné une expression mathématique de la conductivité relativement complexe. Cette expression mathématique fut plus tard rendue plus simple par Pichard et al. [9,10,11] qui développèrent un modèle appelé « modèle de l'approximation hyperbolique » dans laquelle ce qu'on appelle la fonction MS est d'expression plus simple. Le quatrième chapitre est lui consacré à la présentation des résultats obtenus suite à la simulation/modélisation des théories FS et MS, à l'aide de programmes (scripts) écrits dans le langage de programmation actuellement très utilisé : Python.

Cette étude se termine par une conclusion dans laquelle nous résumons les résultats obtenus, et présentons d'autres voies et perspectives d'exploration de la résistivité des couches minces métalliques.

Trois annexes sont jointes à cette étude :

- Annexe A : Quelques exemples d'application des modèles
- Annexe B : Définition de la rugosité d'une surface
- Annexe C : Exemples de scripts Python utilisés.

Chapitre I :
Généralités sur les
couches minces

Ce chapitre donne un aperçu sur les couches minces. Dans l'ordre suivant, et en premier lieu nous donnerons la définition d'une couche mince, d'un point de vue de la physique des matériaux, puis citerons les caractéristiques essentielles, et les principales applications des couches minces. En deuxième lieu, nous discuterons de la physique de croissance d'une couche mince, puis des principales techniques expérimentales de fabrication d'une couche mince.

1.1. Définition d'une couche mince

Par principe, une couche mince est une fine pellicule d'un matériau déposé sur un autre matériau, appelé "substrat", dont l'une des dimensions qu'on appelle -l'épaisseur- est très faible devant les deux autres dimensions (typiquement ce sont des couches de 10 à 100 nanomètres d'épaisseur). L'épaisseur correspond donc à la distance entre deux surfaces limites ; on parle alors de quasi-bidimensionnalité ou de structure quasi-2D lorsqu'elle est très faible. Cette structure quasi-2D cause une perturbation importante de la majorité des propriétés physiques, très souvent un aussi petit nombre de couches atomiques possède des propriétés très différentes. Par exemple la réflexion optique ou l'absorption peuvent être maîtrisées de manière très précise, de même pour la conductivité électrique.

Dans le cas typique d'un métal, une couche sera dite mince si son épaisseur est de l'ordre de grandeur du libre parcours moyen des électrons de conduction dans le métal considéré.

En résumé, on retiendra qu'une couche mince possède une épaisseur d_z très faible devant les dimensions latérales, d_x et d_y (Figure I.1).



Figure I. 1: Géométrie d'une couche mince

La différence essentielle entre le matériau à l'état massif et celui en couche mince est 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 sont prépondérants. Il est assez évident que plus l'épaisseur sera faible plus cet effet de bidimensionnalité sera important. En revanche, lorsque l'épaisseur d'une couche mince dépassera un certain seuil l'effet d'épaisseur deviendra minime et le matériau retrouvera les propriétés bien connues du matériau massif.

1.2. Propriétés spéciales des couches minces

Par rapport aux matériaux massifs dont elles sont issues, les couches minces :

- ✓ sont fortement influencées par les effets de surface et d'interface (avec le substrat ou entre les différentes couches s'il s'agit de structures multicouches minces);
- ✓ sont souvent peu denses ;
- ✓ présentent des défauts structurels différents ;
- ✓ peuvent être l'objet de tensions ou stress en raison de l'existence éventuelle de différences avec les caractéristiques physiques du substrat. Par exemple, la couche mince et son substrat peuvent avoir des coefficients de dilatation thermique assez différents, ce qui produit un stress lors du dépôt à des températures élevées ou lors d'un recuit thermique. Ce qu'on entend par stress, est le fait que les atomes du matériau sont déplacés de leurs positions d'équilibre par une force ;
- ✓ peuvent être obtenues à deux dimensions (exemple : le graphène où l'épaisseur est celle d'une couche atomique d'atomes de carbone).

Ces propriétés spéciales changent sensiblement les propriétés électriques, magnétiques, optiques, thermiques et mécaniques.

1.3. Principales techniques d'élaboration des couches minces

Les couches minces sont réalisées en utilisant plusieurs techniques, qui sont généralement des dépôts sous vide en utilisant soit une méthode CVD (dépôt chimique en phase vapeur) ou une technique PVD (dépôt physique en phase vapeur).

- Dans la méthode PVD, Les éléments qui donnent la couche mince sont introduits sous forme solide et passent en phase vapeur dans l'enceinte de dépôt, par un procédé physique comme la pulvérisation cathodique, l'évaporation thermique, l'épitaxie par jets moléculaires (MBE) ou l'ablation laser. La condensation de la vapeur obtenue se fait sur des substrats (généralement chauffés) qui peuvent être de différente nature.
- Dans la méthode CVD, les éléments qui donnent lieu à la formation d'une couche mince sur un substrat sont des gaz réactifs. Les réactions chimiques entre ces gaz, à des

températures relativement élevées, conduisent à un dépôt solide contrôlé. Cette technique donne lieu à des couches minces de haute qualité.

Dans ces méthodes d'élaboration, on peut obtenir soit des couches minces réellement monocristallines (par épitaxie), polycristallines ou carrément amorphes.

On trouvera une étude détaillée de ces techniques dans de nombreux ouvrages comme celui de K. Seshan [12], de H. Frey et H.R. Khan [13], ou de K.S. Sree Harsha [14].

1.4. Applications des couches minces

La modification de la surface d'un substrat permet de coupler les propriétés du matériau de cœur (ou substrat) et du matériau de surface : ce dernier peut être soit directement issu du substrat dans le cas d'un traitement de surface ou d'un matériau d'apport pour un revêtement de surface. La modification de la surface d'un substrat apporte une ou plusieurs propriétés physicochimiques supplémentaires à ce dernier (résistance à la corrosion, isolation électrique...) : l'utilisation d'un substrat à faible valeur ajoutée permet de déduire les coûts de fabrication tout en ayant les propriétés physico-chimiques de surface requises.

Les premières modifications de surface avaient un but esthétique (peinture, plaquage d'or, émaillage...) tandis que des applications plus techniques concernaient la métallurgie (cémentation, nitruration...).

Au cours du XX^{ème} siècle, des applications plus pointues se sont diversifiées dans les domaines suivants :

➤ Microélectronique : elle a pu se développer à partir des années 1960 grâce à la mise en œuvre de couches de plus en plus minces conductrices ou isolantes, et on peut les trouver sous types de couche passives (contact électronique), jonctions PN, diodes, transistors, matériau piézoélectrique, lampes LED, supraconducteurs.

➤ Energie solaire : réalisation de cellules solaires de différents types et plus récemment à base de pérovskites.

➤ Optique : tout en conservant les applications esthétiques, les applications optiques des couches ont permis de développer des capteurs de rayonnements plus efficaces, comme les couches anti-reflet dans les cellules solaires, tain du miroir, traitement anti-reflet des objectifs d'appareil photo, photo détection, affichage-écrans plats, applications ophtalmiques, guide optiques (contrôles d'énergie – architecture, véhicules, conversion d'énergie...).

- Mécanique : revêtements tribologiques (lubrification sèche ; résistance à l'usure, l'érosion, l'abrasion ; barrières de diffusion).
- Chimie : les principales applications des revêtements de surface sont orientées vers une meilleure tenue à la corrosion par la création d'un film étanche (résistance à la corrosion), capteur à gaz, revêtements catalytiques, couches protectrices.
- Thermique : l'utilisation d'une couche barrière thermique diminue par exemple la température de surface du métal des ailettes des réacteurs permettant ainsi d'améliorer les performances des réacteurs (augmentation de la température interne).
- Magnétique : stockage d'information (mémoire d'ordinateur), dispositifs de sécurité, capteurs.

On trouvera une revue des applications des couches minces dans les différents domaines dans beaucoup d'articles et autres ouvrages comme par exemple les références [15] et [16].

1.5. Etapes de formation d'une couche mince

Lorsque des atomes du matériau à déposer (M) arrivent pour former une couche mince à la surface d'un substrat (S), les différents processus physiques observés sont représentés sur la Figure I.1. Ces atomes (M) ne restent à la surface du substrat que si leur énergie de liaison (ou énergie d'adsorption) avec les atomes du substrat (pour la première couche) et avec leurs frères (pour les couches suivantes) est nettement supérieure à l'énergie moyenne d'agitation thermique du substrat qui est égale à : $\frac{3}{2} k_B T_S$ (avec T_S la température du substrat). Sinon, ces atomes vont être désorbés. On a donc intérêt à rechercher le meilleur compromis entre une température de substrat basse, qui limite la ré-évaporation (désorption) du gaz déposé, et une température de substrat élevée, qui réduit le taux d'impuretés déposées, issues du gaz résiduel dans l'enceinte (molécules de vapeur d'eau, CO₂, etc.).

La *Figure I.2* représente schématiquement les différentes étapes de formation d'une couche mince.

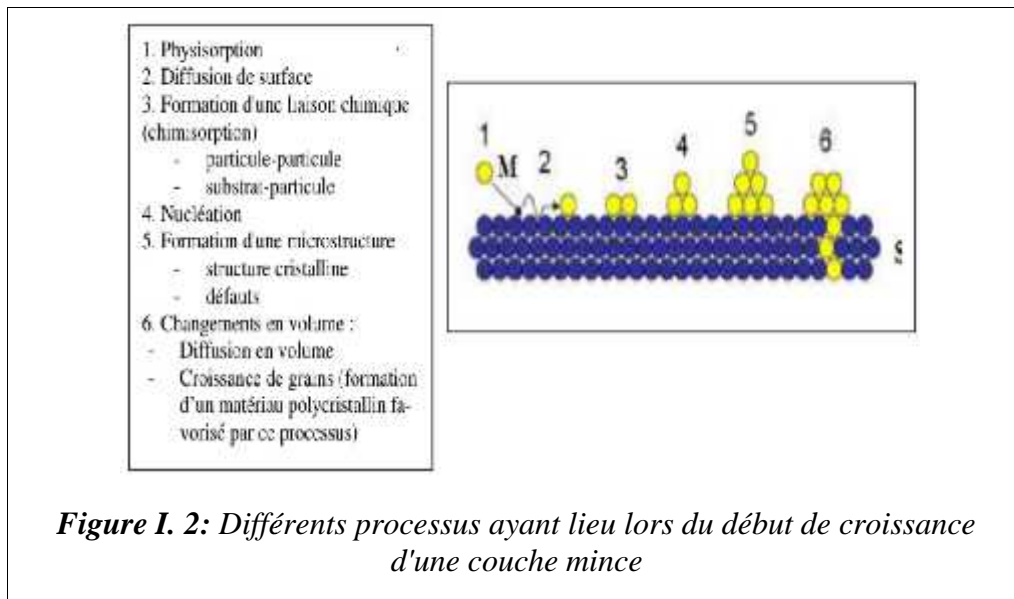


Figure I. 2: Différents processus ayant lieu lors du début de croissance d'une couche mince

La *figure I.3* complémentaire montre une vue de dessus du substrat et les différentes étapes qui conduisent à l'obtention d'une couche mince.

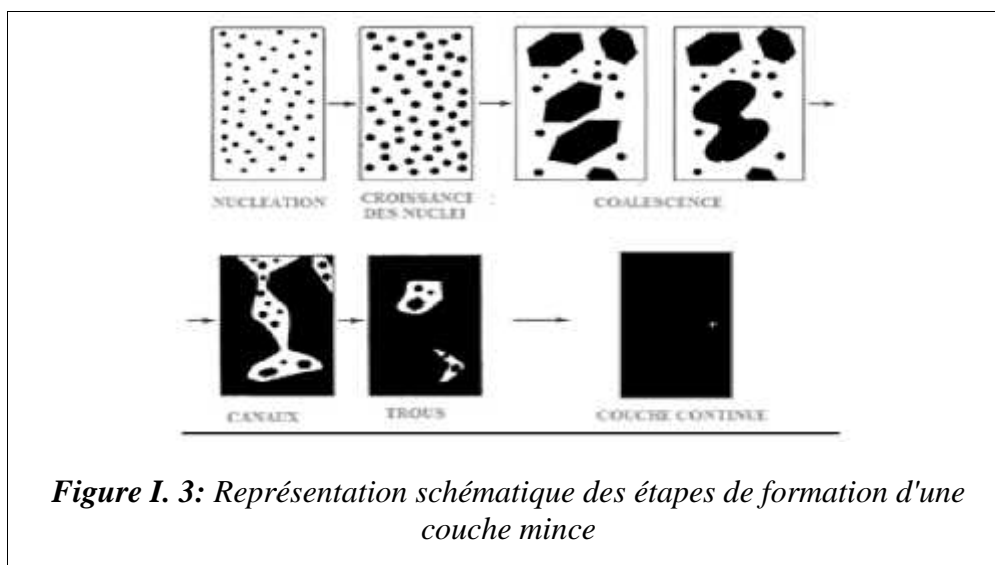


Figure I. 3: Représentation schématique des étapes de formation d'une couche mince

A partir des théories élaborées pour expliquer les phénomènes de nucléation et de formation d'une couche, et des observations au microscope électronique à transmission (TEM), les étapes qui conduisent à la formation d'une couche (ou film) mince peuvent être résumées comme suit :

- 1 Adsorption d'atomes
- 2 Diffusion de surface et migration vers des sites d'intégration ou de fixation (dans ces sites l'énergie pour intégrer les adatoms est minimisée)

3 Formation de nucléi (premiers germes cristallins) de tailles différentes inférieures à la taille critique (ce sont les embryons)

4 Formation de nucléi (noyaux) de taille critique (phase de nucléation); ils deviennent des agrégats ou clusters

5 Les agrégats (de taille critique) grossissent et atteignent une taille supercritique (le nombre d'atomes isolés diminue sensiblement)

6 Des îlots stables se forment et commencent à se réunir : c'est le phénomène de coalescence

7 De nouveaux atomes s'adsorbent en des points à la surface non couverts par la coalescence (nucléation secondaire) ; De plus grands îlots sont formés (ce qui entraîne la formation de canaux et de trous) ; Des trous et des canaux disparaissent au fur et à mesure que la nucléation secondaire a lieu et une couche continue se forme.

Dans la dernière étape les îlots commencent par se regrouper pour former des agglomérats en réduisant la surface du substrat en d'autres termes les îlots deviennent des îles cette agglomération peut être accélérée par l'augmentation de la température du substrat qui augmentera à son tour la mobilité des surfaces des espèces adsorbées et la croissance des îlots continue jusqu'à ce que la structure de la couche passe du type discontinu au type poreux. Peu à peu, une couche continue se forme lorsque les trous et les canaux se remplissent. Le processus de croissance d'une couche mince peut être décrit par trois types ou modèles [17].

1.6. Classification des modes de croissance des couches minces.

Ces modèles de croissance ont été classés par en trois sections comme le montre la *figure I.4*.

1. La croissance en couches minces (2D ou mode Frank-Vander Merwe ou FM). Dans ce mode de croissance, l'énergie des atomes déposés est minimisée lorsque le substrat est entièrement couvert, ce qui favorise le dépôt couche par couche (*les adatoms doivent avoir de grandes vitesses de diffusion en surface pour s'incorporer aux bords d'îlots*). C'est généralement le type de croissance observée pour certains systèmes métal/métal (ex : dépôts d'argent sur des surfaces de nickel), pour des gaz rares sur certains métaux et dans le cas de l'homoépitaxie de semi-conducteurs comme Si/Si [18].

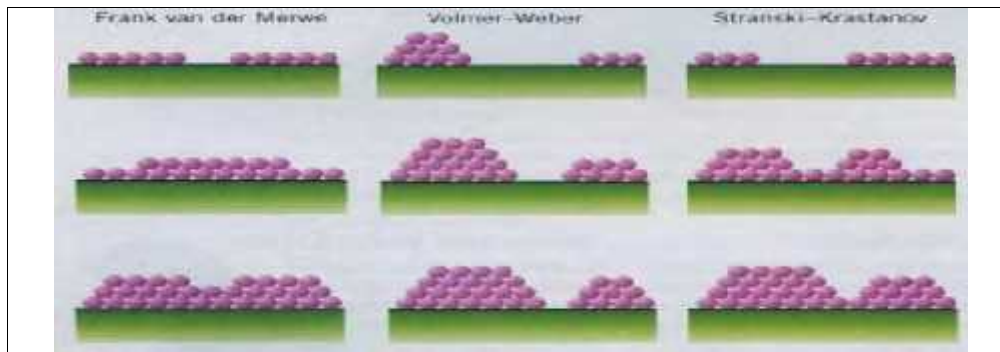


Figure 1. 4 : Les modèles de croissance

2. Le mode de croissance *tridimensionnel* ($3D$) où le matériau M pousse en îlots $3D$ sur S , mode appelé *Volmer-Weber* (VW). Dans ce cas les atomes déposés sont plus fortement liés entre eux qu'avec le substrat. Ce mode de croissance est observé dans de nombreux systèmes

3. Un mode mixte qui commence par une croissance $2D$ puis devient $3D$ au bout d'une certaine épaisseur critique ; appelé usuellement *mode de croissance Stranski-Krastanov* (SK). Ce mode apparaît le plus souvent dans le cas d'une croissance hétéroépitaxiale (ex : Ge/si). Un faible désaccord de paramètre de maille entre le matériau épitaxié et le substrat, induit une contrainte dans la couche déposée.

Chapitre
II : Théories de la
conduction
électrique dans un
métal

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 σ définie par la loi d'Ohm (locale) $\mathbf{j} = \sigma \cdot \mathbf{E}$, s'exprimait de la façon suivante : $\sigma = \frac{ne^2\tau}{m}$; où n est la densité volumique d'électrons libres, e est la charge de l'électron, τ est le temps moyen entre deux collisions et m est la masse de l'électron.

Le développement de la mécanique quantique permit à Sommerfeld 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 il 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 ils sont localisés dans des bandes d'énergie séparées par des bandes 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 $T = 0$ 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).

La conductibilité électrique 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 larges variations de la conductibilité électrique ; la conductivité est la mesure de cette conductibilité. C'est ainsi qu'à la température ambiante, le rapport entre la résistivité (inverse de la conductivité) du meilleur isolant et celle du meilleur conducteur, atteint 10^2 . Les processus responsables de la conductibilité sont d'ailleurs très variés, tels que les électrons libres dans les métaux, les porteurs de charge (électrons et trous) issus du dopage

d'un semi-conducteur, les ions mobiles. Notre approche vis-à-vis des mécanismes physiques de la conductivité de l'électricité sera progressive, mais avant nous devons obligatoirement rappeler une règle très de base relative aux différents types de résistivité électrique dans un métal et qui est la règle de Matthiessen. Ainsi, notre étude concernera, dans l'ordre :

- La règle de Matthiessen
- Le modèle de Drude
- Le modèle de Sommerfeld
- L'équation de transport de Boltzmann

II.1. Règle de Matthiessen

Dans le métal massif cristallin, la résistivité électrique (ρ) trouve son origine dans l'interaction des électrons avec les oscillations du réseau (phonons), les imperfections ou défauts du réseau cristallin (lacunes, dislocations, ...) et les impuretés chimiques (atomes étrangers) éventuellement présentes. Chacune de ces interactions est un processus de diffusion, appelé également choc ou collision

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

Les probabilités pour un électron de subir, pendant un intervalle de temps unité, un choc avec un phonon (α_{ph}), une impureté chimique (α_{i}), ou un défaut (α_{def}), sont au nombre de trois et sont indépendantes les unes des autres ; elles peuvent être représentées par la relation :

$$\alpha = \alpha_{ph} + \alpha_{i} + \alpha_{def} \quad (1)$$

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

$$\tau_{ph} = \frac{1}{\alpha_{ph}}, \tau_{i} = \frac{1}{\alpha_{i}}, \tau_{def} = \frac{1}{\alpha_{def}}$$

D'où :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{ph}} + \frac{1}{\tau_{i}} + \frac{1}{\tau_{def}} \quad (2)$$

La conductivité σ se déduit de la loi d'Ohm (locale) sous la forme : $J = \sigma E$; on obtient donc, d'après Drude :

$$\sigma = \frac{ne^2}{m} \tau \quad (3)$$

Où n est la concentration des électrons, et m leur masse.

En comparant (2) et (3), on découvre que les résistivités partielles de chaque type de phénomène de diffusion doivent être additionnées pour obtenir la résistivité totale du matériau considéré. C'est la règle de Mathiessen [19] qui s'écrit donc :

$$\rho = \frac{m}{ne^2} \left(\frac{1}{\tau_{ph}} + \frac{1}{\tau_i} + \frac{1}{\tau_{déf}} \right) \quad (4)$$

La résistivité totale s'écrit, en utilisant l'équation (4) et en introduisant les résistivités partielles : ρ_{ph} , ρ_i et $\rho_{déf}$:

$$\rho = \rho_{ph} + \rho_i + \rho_{déf} \quad (5)$$

Avec : $\rho_{ph} = \frac{m}{ne^2} \left(\frac{1}{\tau_{ph}} \right)$ la résistivité due aux phonons, $\rho_i = \frac{m}{ne^2} \left(\frac{1}{\tau_i} \right)$ celle due aux impuretés et $\rho_{déf} = \frac{m}{ne^2} \left(\frac{1}{\tau_{déf}} \right)$ celle due aux défauts. L'expérience montre que ρ_i et $\rho_{déf}$ 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 ces défauts, par contre ρ_{ph} dépend de la température. On peut écrire la relation (5) sous la forme :

$$\rho = \rho_{ph}(T) + \rho_i \quad (6)$$

Où $\rho_{ph}(T)$ est la résistivité due aux phonons et ρ_i est la résistivité due aux défauts ou imperfections et aux impuretés. ρ_i est appelée résistivité résiduelle (indépendante de T) ; elle peut être déterminée à $T = 0K$. La résistivité $\rho_{ph}(T)$ varie en T^5 [20] à basse température et linéairement avec T à haute température [21].

La résistivité électrique d'un matériau métallique est donc due à l'existence d'imperfections (au sens large) dans la structure du réseau cristallin, qui sont soit des oscillations thermiques des ions, soit des défauts du réseau et qui donnent lieu à deux sortes de diffusion des électrons de conduction et à une variation de la résistivité selon la règle dite de Mathiessen.

Dans un matériau polycristallin, la présence de joints de grain (interfaces entre grains ou cristaux) influence également la conductivité électrique. Ces joints de grain se comportent comme dans des barrières de potentiel devant le mouvement des électrons. Nous verrons, dans la partie concernée, l'influence des joints de grain sur la résistivité électrique d'une couche mince.

II.2. Le modèle de Drude

Seulement trois ans après la découverte de l'électron par J. J. Thomson en 1897, P. Drude a, en 1900, développé un modèle permettant décrire la conduction d'électricité et de chaleur dans les métaux. Le modèle se base sur quatre hypothèses fondamentales :

- **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. Il 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 entre eux. Aujourd'hui on sait qu'elle est particulièrement efficace pour décrire un gaz d'électrons libres.
- **Collisions instantanées** : Drude introduit l'interaction entre électrons et ions sous forme de collisions ayant une durée infinitésimale, qui changent la vitesse d'un électron au cours de son mouvement. Dans l'idée originale les électrons sont sujets de collisions mécaniques avec les ions du solide.
- **Temps de relaxation** : un électron subit une collision avec une probabilité par unité de temps $\frac{1}{\tau}$. Cette probabilité ne dépend pas de la position et de la vitesse de l'électron. Le temps τ est appelé temps de relaxation. Cela implique qu'un électron se propage en moyenne pendant un temps τ avant sa prochaine collision et s'est propagé en moyenne un temps τ depuis sa dernière collision.
- **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.

Considérons le cas des électrons de conduction dans les métaux. Ces électrons interagissent par collision avec des ions fixes ou d'autres électrons [22]. Etudions le mouvement d'un électron entre deux chocs.

En l'absence d'un champ électrique externe (\vec{E}), le mouvement des électrons libres est aléatoire à l'intérieur du solide. Les électrons libres se déplacent alors à une vitesse moyenne

\vec{V}_{T1} ,laquelle est une conséquence à l'agitation thermique du solide. Cette vitesse varie avec la température du solide et indépendante du champ électrique externe appliqué.

L'électron libre se déplace sous l'influence de l'agitation thermique mais son mouvement est limité par les collisions avec les autres atomes du solide. A chaque collision, l'électron libre perd son énergie cinétique, laquelle est transformée en radiation thermique par l'émission d'un photon.

On définit λ comme étant la distance moyenne parcourue par l'électron libre entre chaque collision (ou longueur parcourue par un électron entre deux collisions). Le temps moyen des collisions pour un électron libre sera définie par :

$$\lambda = V_{T1} \cdot \tau \quad (7)$$

V_{T1} est la vitesse moyenne associée à l'agitation thermique La figure suivante illustre le mouvement aléatoire de l'électron dans le solide.

En présence d'un champ électrique, on observera un déplacement moyen Δx des électrons libres sur une période de temps Δt . En plus de son mouvement thermique habituel, chaque électron libre dérivera d'une distance moyenne λ_d dans la direction parallèle à l'orientation du champ électrique E entre chacune des collisions.

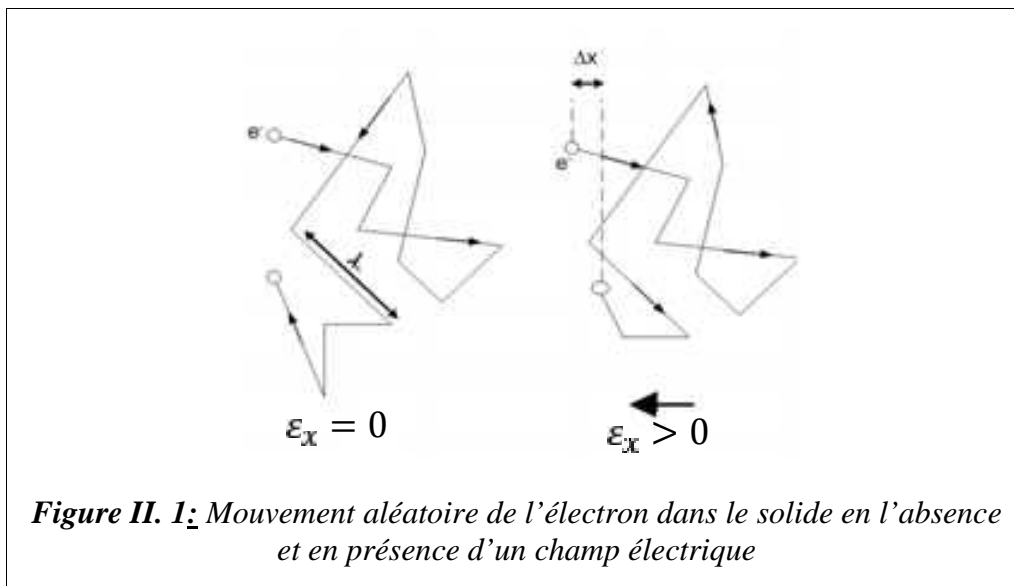


Figure II. 1: *Mouvement aléatoire de l'électron dans le solide en l'absence et en présence d'un champ électrique*

Chaque électron libre sera soumis à une force électrique $(-e\vec{E})$ dans la direction du champ électrique externe appliqué, laquelle engendrera une accélération γ . La relation fondamentale de la dynamique newtonienne $\Sigma\vec{F} = m \cdot \vec{\gamma}$, donne dans notre cas :

$$m\vec{\gamma} = -e\vec{E} \quad (8)$$

Où : m est la masse de l'électron ; e la charge de l'électron et $\vec{\mathcal{E}}$ le champ électrique imposé par une source externe.

La vitesse moyenne de déplacement des électrons dans la direction du champ électrique est la vitesse de dérive :

$$v_d = \frac{l_d}{\tau} \quad (9)$$

La vitesse de dérive v_d sera en général beaucoup plus faible que la vitesse V_{T1} résultant de l'agitation thermique. Il est donc raisonnable d'affirmer que la vitesse de dérive des électrons n'affecte en rien la fréquence des collisions à l'intérieur du solide et que seule la température affecte la fréquence de ces collisions.

On exprime l'accélération γ en fonction de la vitesse de dérive :

$$\gamma = \frac{\Delta v_d}{\Delta t} \quad (10)$$

Et la vitesse moyenne de dérive sur le parcours de l'électron libre entre deux collisions peut être extraite de l'équation suivante :

$$m \frac{\Delta v_d}{\Delta t} = -e\mathcal{E} \quad (11)$$

Donc :

$$v_d = -\frac{e\mathcal{E}\tau}{m} \quad (12)$$

On retiendra donc que la vitesse de dérive d'un électron soumis à un champ électrique $\vec{\mathcal{E}}$, a pour expression l'équation (12).

La densité de courant est \vec{j} ; elle peut être définie comme étant la charge par unité de temps qui traverse une unité de surface orthogonale à la direction du courant électrique. On a donc :

$$\vec{j} = -n \cdot e \cdot v_d \quad (13)$$

On remplace v_d par son expression (12) dans l'équation (13) ; on obtient :

$$\vec{j} = \frac{ne^2\tau}{m} \mathcal{E} \quad (14)$$

La conductivité électrique σ se déduit immédiatement de la comparaison de (14) avec la loi d'Ohm locale $\vec{j} = \sigma\mathcal{E}$, on aura donc :

$$\sigma = \frac{ne^2\tau}{m} \quad (15)$$

Et :

$$\sigma = n \mu \quad (16)$$

Où μ est la mobilité des électrons donnée donc par

$$\mu = \frac{e\tau}{m} \quad (17)$$

On remarque que la conductivité électrique dans le modèle de Drude est donc exprimée en fonction du paramètre τ , le temps de relaxation, et elle contient la concentration volumique des électrons (n) et leur mobilité (μ). Cependant, plusieurs faits expérimentaux ne sont pas en accord avec le modèle de Drude dans lesquels les électrons libres sont considérés comme un gaz régi par la théorie cinétique des gaz. En particulier le modèle de Drude prédit une chaleur spécifique du gaz électronique environ cent fois plus grande que la valeur observée expérimentalement.

Pour améliorer ce modèle, en 1905 Lorenz a développé un modèle en utilisant la distribution classique de Maxwell-Boltzmann pour les vitesses thermiques, puisque Drude présuppose la même vitesse thermique pour tous les électrons [23]. La théorie de Drude n'est pas également apte à expliquer la conduction dans les semi-conducteurs où deux types de porteurs charges de signes opposés interviennent, les électrons et les trous. De même, qu'elle est incapable d'expliquer le signe positif du coefficient de Hall de certains métaux comme l'aluminium ou l'indium.

Malgré cela, le problème ne fut pas réglé pour autant, sachant que ce dernier modèle ne tient pas compte de la nature quantique des électrons. Nous devons alors faire appel à un *modèle semi-classique (modèle de Drude-Sommerfeld)* pour expliquer la conductivité dans les métaux. Ce modèle est classique dans le sens où les électrons sont considérés comme des particules ponctuelles (soumises à un phénomène de diffusion) et quantique dans le sens où il fait appel à la statistique de Fermi-Dirac. En mécanique quantique, la statistique de Fermi-Dirac s'applique à des particules appelés *fermions* (de spin demi-entier) comme les électrons.

II.3. Le modèle de Drude/Sommerfeld

Le modèle de Drude a été développé bien avant la physique quantique. Il était donc difficile dans ce modèle de traiter correctement le gaz d'électrons. En particulier, la distribution des vitesses des électrons était supposée suivre une statistique issue de la théorie cinétique des gaz. Or, les électrons ne peuvent pas être traités simplement comme des particules massiques ayant une cinétique donnée. En effet, comme nous le savons que les

électrons sont des fermions, c'est-à-dire qu'ils possèdent un nombre quantique de spin demi-entier, et surtout ils obéissent au principe de Pauli.

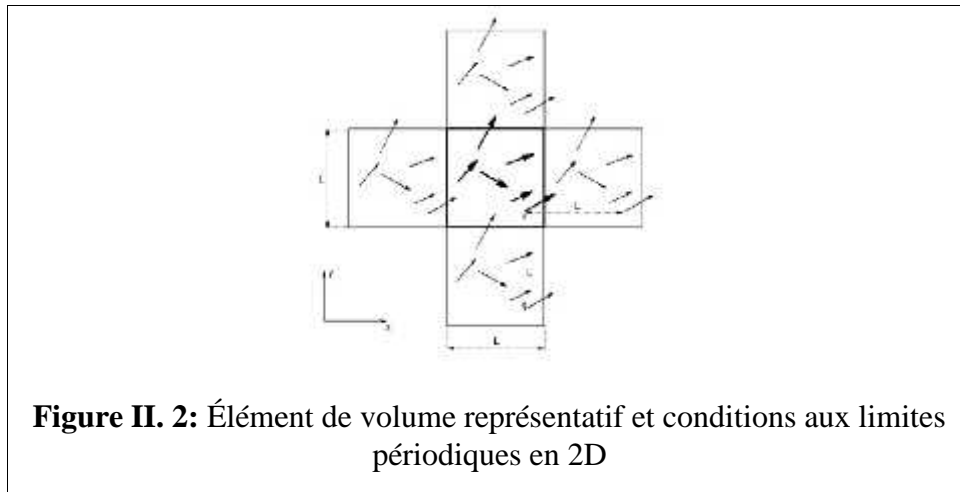
Le modèle alternatif amélioré par Sommerfeld repose sur l'approximation des électrons libres, comme le modèle de Drude. Cependant, la nature quantique des électrons est prise en compte, conduisant à une meilleure estimation de certaines quantités en jeu dans ce type de modèle.

Description du modèle

A. Approximation des électrons libres

Comme dans le modèle de Drude, nous considérons un gaz d'électrons confinés dans une boîte de volume V . De plus, nous gardons l'approximation des électrons indépendants, de sorte que l'on peut raisonner sur un seul électron, puis remplir la boîte en recommençant l'opération tout en respectant le principe de Pauli.

Nous allons en fait utiliser une boîte en forme de cube de côté L , soit $V = L^3$. Ce cube constitue un élément de volume représentatif du matériau, et non une boîte dans laquelle sont confinés les électrons. En fait, lorsqu'un électron sort de cette boîte, un autre est supposé arriver avec les mêmes caractéristiques par le côté opposé. Comme illustré en 2D dans la figure II.2.



Ceci revient à utiliser les conditions aux limites suivantes, aussi appelées conditions de Born - Von Karman ou conditions aux limites périodiques sur la fonction d'onde $\psi(\vec{r})$ décrivant l'état d'un électron :

$$\psi(x, y, z) = \psi(x + L, y, z) = \psi(x, y + L, z) = \psi(x, y, z + L).$$

En choisissant une référence telle que le potentiel soit constant et nul dans le matériau, et donc dans la boîte, l'équation de Schrödinger correspondant aux états stationnaires de chaque électron s'écrit :

$$\hat{H}\psi(\vec{r}) = -\frac{\hbar^2}{2m}\Delta\psi(\vec{r}) = \varepsilon(\vec{r}) \quad (18)$$

En appliquant les conditions aux limites périodiques sur la fonction d'onde d'une particule dans une boîte, on peut écrire les solutions stationnaires de l'équation de Schrödinger ψ_n et leur énergie E_n sous la forme suivante, où n_x, n_y, n_z sont des entiers relatifs non simultanément nuls :

$$\psi_n(\vec{r}) = \frac{1}{L^{3/2}} e^{-i\vec{k}_n \cdot \vec{r}} \quad \vec{k}_n = \frac{2\pi}{L} (n_x, n_y, n_z) \quad (19)$$

$$E_n = \frac{\hbar^2}{2m} k_n^2 \quad k_n^2 = E_n (n_x^2 + n_y^2 + n_z^2) \quad E_0 = \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{2\pi}{L}\right)^2 \quad (20)$$

Dans ces équations, on voit que l'énergie des électrons dans la boîte (cube de côté L) est dégénérée en bandes d'énergie. En effet, les entiers n_x, n_y, n_z prennent des valeurs discrètes.

Par exemple, pour $n_x = 1, n_y = 0$ et $n_z = 0$, on a $E = E_0$. On parle de l'état (100). On remarque que les états (010), (001), (100), (0 $\bar{1}$ 0) et (00 $\bar{1}$) sont tous au niveau énergétique E_0 ($\bar{1}$ signifie -1). On peut ensuite traiter le niveau d'énergie $2E_0$, par exemple pour l'état (110), etc.

La *figure II.3* illustre en 2D que les niveaux de même énergie sont tous situés sur un même cercle (une même sphère en 3D). Chaque état possible correspond à un point sur cette figure. Ainsi, pour chaque niveau d'énergie, on peut compter le nombre d'états possibles. Cette même figure donne l'évolution du nombre d'états possibles à niveau d'énergie égal ou inférieur à celui donné par un vecteur d'onde \vec{k} , de norme k . En abscisse, nous avons porté la quantité k^2 divisée par la surface d'une cellule élémentaire dans l'espace des \vec{k} , soit $\left(\frac{2\pi}{L}\right)^2$.

On trouve approximativement une droite de pente . En fait, le nombre d'états peut être estimé en 2D par le rapport entre la surface du cercle de rayon k et celle d'une cellule élémentaire. Cette estimation sera d'autant plus valide lorsque k augmentera. En effet, cette estimation revient à supposer qu'il existe un état possible (un point) par cellule élémentaire. En 3D, le même raisonnement conduit au nombre suivant d'états possibles N_s , en utilisant des volumes au lieu de surfaces :

$$N_s = \frac{\frac{4}{3}\pi k^3 \mathcal{V}}{\left(\frac{2\pi}{L}\right)^3} = \frac{k^3}{6\pi^2} L^3 \quad (21)$$

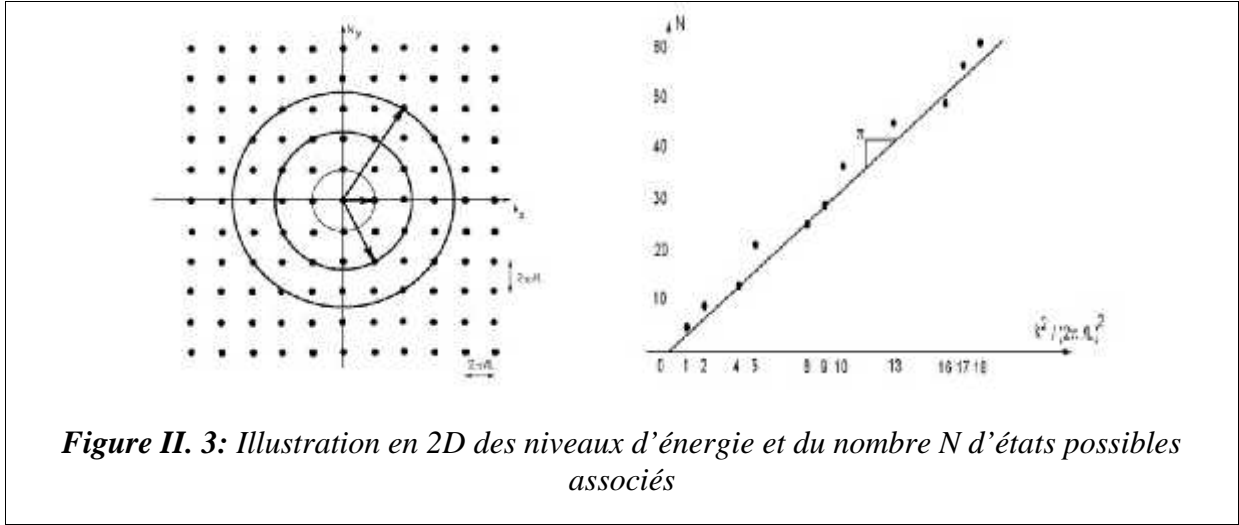


Figure II. 3: Illustration en 2D des niveaux d'énergie et du nombre N d'états possibles associés

B. Distribution de Fermi-Dirac

Chaque état illustré dans la *figure II.3* correspond à un état électronique particulier, sans tenir compte du nombre quantique de spin et du principe de Pauli. Il résulte de cela que, pour chaque état, on peut associer deux électrons, un avec un spin parallèle ($s = 1/2$) et un avec un spin anti-parallèle ($s = -1/2$). Le nombre d'électrons possibles est donc le double du nombre d'états possibles.

On note k_F le rayon de la sphère correspondant au niveau d'énergie maximum des électrons dans le matériau au zéro absolu ($T = 0 K$). A cette température, on peut donner sa densité électronique, c'est-à-dire le nombre d'électrons par unité de volume, sous la forme (N est le nombre d'électrons, V est le volume de l'élément représentatif utilisé) :

$$n = \frac{N}{V} = \frac{2 N_s}{L^3} = \frac{k_F^3}{3\pi^2} \quad (22)$$

Le vecteur d'onde k_F est appelé *vecteur d'onde de Fermi*. On peut lui associer une énergie E_F , appelée énergie de Fermi, et une vitesse v_F , appelée vitesse de Fermi, sous la forme :

$$E_F = \frac{\hbar^2}{2m} k_F^2 = \frac{\hbar^2}{2m} k_F^2 (3\pi^2 n)^{2/3} \quad (23)$$

$$v_F = \frac{\hbar}{m} k_F = \frac{\hbar}{m} (3\pi^2 n)^{1/3} \quad (24)$$

La surface délimitant dans l'espace des vecteurs d'onde \vec{k} les états énergétiques possibles des autres est celle de rayon k_F . On l'appelle surface de Fermi. Dans l'approximation des électrons libres, cette surface est celle d'une sphère.

Lorsque la température augmente, l'énergie cinétique du gaz d'électrons augmente. Certains niveaux d'énergie, vides au zéro absolu, deviennent occupés, tandis que d'autres, remplis au zéro absolu, deviennent libres. La fonction de distribution de Fermi-Dirac donne la probabilité qu'une orbitale d'énergie E soit occupée, dans le cas d'un gaz électronique idéal en équilibre thermique :

$$f_D(E) = \frac{1}{e^{\left(\frac{E-\mu}{k_B T}\right)+1}} \quad (25)$$

Dans cette équation k_B est la constante de Boltzmann, E est l'énergie, T est la température absolue, et μ est une fonction de la température, homogène à une énergie. La fonction μ doit être telle que le nombre de particules (d'électrons dans notre cas) N soit constant. Au zéro absolu ($T = 0\text{ K}$), μ vaut l'énergie de Fermi, $\mu = E_F$, car lorsque $T \rightarrow 0$ la distribution de Fermi-Dirac passe de façon discontinue de la valeur 1 (niveau rempli) à la valeur 0 (niveau vide) pour $E = E_F = \mu$.

La *figure II.4* illustre l'évolution de la fonction de distribution de Fermi-Dirac lorsque la température augmente. Au zéro absolu, tous les niveaux inférieurs à $\mu = E_F$ sont occupés (la fonction vaut 1), et tous les niveaux supérieurs sont vides (la fonction vaut 0). Lorsque la température augmente, par exemple à 500K sur cette figure, certains niveaux d'énergie inférieure à μ (cette fois différent de E_F) peuvent être vides (la fonction peut être inférieure à 1) et d'autres niveaux supérieurs à μ peuvent être remplis (la fonction peut être non nulle).

A toutes les températures, la fonction de distribution de Fermi-Dirac vaut 1/2 lorsque $E = \mu$. La quantité μ est appelée *potentiel chimique*. Lorsque l'énergie devient supérieure au niveau de Fermi, on a $E - \mu \gg k_B T$, et dans la fonction f_D de l'équation (24) le terme en exponentielle devient prépondérant. Cette fonction s'approche alors de la fonction de distribution suivante, qui est la fonction de distribution de Maxwell-Boltzmann : $f_B(E) =$

$$e^{-\left(\frac{\mu-E}{k_B T}\right)}.$$

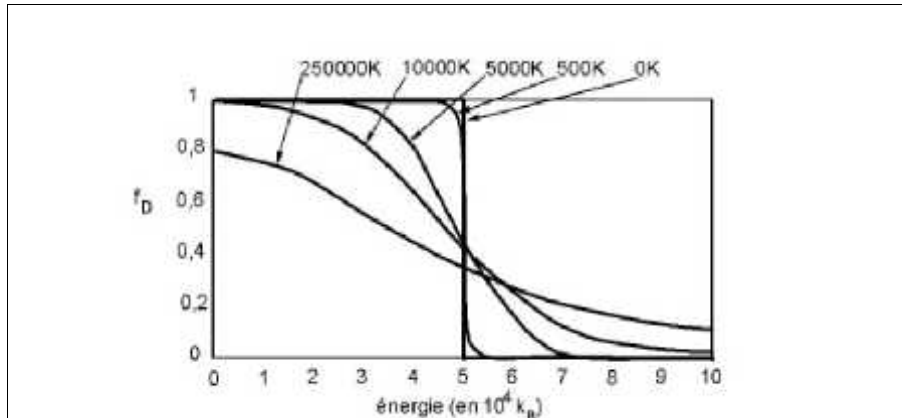


Figure II. 4: Fonction de distribution de Fermi-Dirac à différentes températures, pour une température de Fermi

$$T_F = \frac{E_F}{k_B} = 50 \text{ K}$$

II.4. Equation de Boltzmann

L'équation de Boltzmann consiste est une manière puissante de description des systèmes hors équilibre thermodynamique [24,25]. Généralement, il s'agit de la diffusion ou du transport de masse, d'énergie ou de charge qui fait évoluer le système vers sa configuration d'équilibre, fournissant un formalisme approprié pour calculer un certain nombre de propriétés d'un système physique donné, telles que les conductivités thermiques et électriques, les coefficients de diffusion, etc. Cela en fait un outil majeur pour la physique statistique.

En ce qui nous concerne, les phénomènes de transport comme la circulation d'un courant électrique dans les solides, font intervenir deux mécanismes caractéristiques avec des effets opposés : la force d'entraînement due aux champs externes (comme le champ électrique) et l'effet dissipatif due à la diffusion des porteurs par les phonons et les défauts. L'interaction entre les deux mécanismes est décrite par l'équation de Boltzmann.

La résolution de cette équation dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation (voir définition plus loin), permet la détermination de la conductivité électrique ainsi que la densité de courant dans un métal, en particulier. Cette approximation suppose que la forme de la fonction de distribution électronique hors équilibre n'a aucun effet sur la vitesse avec laquelle un électron donné subit une collision ou sur la distribution des électrons qui émergent des collisions.

Fonction de distribution des électrons

On définit la probabilité qu'une particule de vitesse \vec{v} ait une position \vec{r} au temps t par une fonction de distribution $f(\vec{k}, \vec{r}, t)$. A l'équilibre, on la définit par :

$$f_0(\vec{k}, \vec{r}) = f_0(E(\vec{k})) = \frac{1}{e^{\left(\frac{E(\vec{k}) - E_F}{k_B T}\right) + 1}} \quad (26)$$

Où $E(\vec{k})$ est l'énergie de l'électron, et E_F l'énergie de Fermi. $f_0(\vec{k}, \vec{r})$ est la *fonction de Fermi-Dirac* (que nous avons déjà présenté au paragraphe précédent).

En présence d'un électrique \vec{E} ou d'un champ magnétique \vec{H} , la fonction de distribution sera différente de f_0 .

Détermination des termes de l'équation de Boltzmann

Intégrale de collision et temps de relaxation

Une perturbation de la fonction de distribution $f(\vec{k}, \vec{r}, t)$ des électrons de conduction d'un métal peut être induite par deux principaux effets qui sont supposés être superposables, et qui sont l'effet des divers types de collisions ou de diffusion des électrons (qui freinent ces porteurs de charge) et l'effet des champs extérieurs appliqués (qui assurent leur déplacement). On écrit donc :

$$\frac{\partial}{\partial t} = \left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_c + \left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_{ch} \quad (27)$$

Où :

- $\left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_c$: représente l'effet des collisions sur les phonons, les imperfections et les défauts.
- $\left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_{ch}$: rend compte de l'effet des forces extérieures (dus à l'application des champs \vec{E} et/ou \vec{H}).

Le terme du aux forces extérieures appliquées est la somme de deux composantes : une composante dite de diffusion ($-\frac{\delta \vec{r}}{\delta t} \cdot \vec{\nabla} f$) et une composante dite de dérive ($-\frac{\delta \vec{k}}{\delta t} \cdot \vec{\nabla}_k f$) :

$$\left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_{ch} = - \left(\frac{\delta \vec{k}}{\delta t} \cdot \vec{\nabla}_k f + \frac{\delta \vec{r}}{\delta t} \cdot \vec{\nabla} f \right) \quad (28)$$

Où $\vec{k}f = \frac{\partial}{\partial \vec{k}}$ et $\vec{i}f = \frac{\partial}{\partial \vec{i}}$; $\frac{\delta \vec{k}}{\delta} = \frac{\vec{F}}{\hbar}$ et $\frac{\delta \vec{r}}{\delta} = \vec{v}$ la vitesse de l'électron (qui est égale à sa vitesse de groupe).

\vec{F} étant la résultante de toutes les forces appliquées donnée par :

$$\vec{F} = \frac{\delta \vec{p}}{\delta} = \hbar \frac{\delta \vec{k}}{\delta} \quad (29)$$

On obtient alors, en tenant compte de (27), de (28) et de (29) :

$$\frac{\partial}{\partial} + \left(\vec{v} \vec{i}f + \frac{\vec{F}}{\hbar} \vec{k}f \right) = \frac{\partial}{\partial} \Big|_c \quad (30)$$

C'est la célèbre *équation de Boltzmann*.

En régime hors équilibre mais stationnaire on a : $\frac{\partial}{\partial} = 0$, et l'équation de Boltzmann s'écrit :

$$\frac{\partial}{\partial} \Big|_c = \vec{v} \vec{i}f + \frac{\vec{F}}{\hbar} \vec{k}f \quad (31)$$

Cette dernière équation montre, qu'à l'état stationnaire, la variation de la fonction de distribution sous l'effet du mouvement des particules (électrons) et des champs extérieurs appliqués se trouve compensée par les collisions des porteurs de charge (électrons) et des perturbations locales du champ périodique du réseau.

Lorsqu'on utilise l'expression générale du terme de collision, l'équation de Boltzmann est une équation intégral-différentielle non-linéaire assez compliquée, qui nécessite des techniques de résolution numériques lourdes telles que la méthode itérative [19,25].

Dans l'hypothèse du temps de relaxation on part du principe que si la cause de la perturbation cesse, alors le système retourne en un certain temps à son état antérieur (qui est un état d'équilibre).

En effet, supposons que l'action des champs extérieurs (ou forces extérieures) est supprimée, l'équation (27) devient : $\frac{\partial}{\partial} = \frac{\partial}{\partial} \Big|_c$. Lors de la suppression des champs appliqués, le système de particules (électrons) se trouve dans un état transitoire hors équilibre, mais quand ces champs n'agissent plus du tout, ce système doit revenir à l'état d'équilibre grâce aux collisions : ces collisions assurent donc le retour à l'état d'équilibre perturbé par application des champs extérieurs. L'hypothèse la plus simple que l'on puisse imaginer pour décrire l'évolution de ce processus de relaxation est de poser que la vitesse de

rétablissement de l'équilibre est proportionnelle à l'écart $[f(\vec{k}, \vec{r}, t) - f_0(\vec{k}, \vec{r})]$ à l'état d'équilibre. On écrit donc :

$$\frac{\partial}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial t} \Big|_e = - \frac{f(\vec{k}, \vec{r}, t) - f_0(\vec{k}, \vec{r})}{\tau(\vec{k})} \quad (32)$$

Rappelons que $f_0(\vec{k}, \vec{r})$ est la fonction de distribution non perturbée, ou fonction de distribution à l'état d'équilibre, et $f(\vec{k}, \vec{r}, t)$ cette même fonction lorsque l'équilibre est rompu. Le facteur $1/\tau(\vec{k})$ est un coefficient de proportionnalité qui, en général, dépend de \vec{k} et de \vec{r} , mais qui souvent a une forte dépendance uniquement de \vec{k} [26].

L'équation (31) est connue sous l'appellation d'*approximation du temps de relaxation* pour le terme de collision. Elle permet de simplifier l'équation de Boltzmann sous la forme d'une équation différentielle linéaire aux dérivées partielles.

Sachant que $\tau(\vec{k})$ est une grandeur positive, le signe moins devant le second membre de l'équation (32) caractérise le retour du système à l'état d'équilibre. La résolution de l'équation (32) est assez simple et on obtient :

$$f(\vec{k}, \vec{r}, t) - f_0(\vec{k}, \vec{r}) = [f(\vec{k}, \vec{r}, 0) - f_0(\vec{k}, \vec{r})] e^{-t/\tau} \quad (33)$$

La grandeur $\tau(\vec{k})$ indique à quelle vitesse se rétablit l'état d'équilibre perturbé par des champs extérieurs appliqués ; c'est pour cette raison qu'on l'appelle *temps de relaxation*.

Nous allons établir le lien entre ce qu'on appelle l'intégrale de collision qui est en fait le terme $\frac{\partial}{\partial t} \Big|_e$ exprimé sous forme d'intégrale, et $\tau(\vec{k})$.

Nous allons supposer que, sous l'effet des collisions, les porteurs de charge passent d'un état (\vec{k}, \vec{r}) à un état (\vec{k}', \vec{r}') . Soit $W_{\vec{k}, \vec{k}'}$ la probabilité de transition de l'état \vec{k} à l'état \vec{k}' par unité de temps ; comme une collision ne modifie pas de façon notable les coordonnées cette probabilité ne dépend donc pas de \vec{r} et \vec{r}' .

Considérons deux volumes élémentaires $d\tau_{\vec{k}} = d^3\vec{k}$ et $d\tau_{\vec{k}'} = d^3\vec{k}'$ entourant les points \vec{k} et \vec{k}' , et calculons maintenant le nombre d'états permis contenus dans chacun de ces deux volumes. En tenant compte du spin des électrons, ce nombre est respectivement égal à $\left(\frac{d\tau_{\vec{k}}}{4\pi^3}\right)$ et $\left(\frac{d\tau_{\vec{k}'}}{4\pi^3}\right)$. Le nombre d'états occupés est alors $f(\vec{k}, \vec{r}, t) \left(\frac{d\tau_{\vec{k}}}{4\pi^3}\right)$ et $f(\vec{k}', \vec{r}') \left(\frac{d\tau_{\vec{k}'}}{4\pi^3}\right)$, ; là également la fonction de distribution ne varie qu'avec la variation du vecteur d'onde. Le

nombre d'état vides (c'est-à-dire non occupés) est, quant à lui, respectivement égal à $[1 - f(\vec{k}, \vec{r}, t)] \left(\frac{d\tau_{\vec{k}}}{4\pi^3}\right)$ et $[1 - f(\vec{k}', \vec{r}, t)] \left(\frac{d\tau_{\vec{k}'}}{4\pi^3}\right)$. Du fait des collisions, les électrons passent du volume $d\tau_{\vec{k}}$ dans le volume $d\tau_{\vec{k}'}$ et inversement. Le nombre de transitions doit dépendre non seulement de $W_{\vec{k}, \vec{k}'}$ mais également du nombre d'états occupés et du nombre d'états vides restants après une collision (en tenant compte du principe de Pauli). A la suite de transitions directes des électrons de $d\tau_{\vec{k}}$ à $d\tau_{\vec{k}'}$, et des transitions en sens inverse de $d\tau_{\vec{k}'}$ à $d\tau_{\vec{k}}$, le nombre d'état occupés devra varier durant le temps d de la quantité :

$$\begin{cases} -d \left\{ W_{\vec{k}, \vec{k}'} \left(\frac{d\tau_{\vec{k}}}{4\pi^3}\right) f(\vec{k}, \vec{r}, t) [1 - f(\vec{k}', \vec{r}, t)] \left(\frac{d\tau_{\vec{k}'}}{4\pi^3}\right) \right\} + \\ +d \left\{ W_{\vec{k}', \vec{k}} \left(\frac{d\tau_{\vec{k}'}}{4\pi^3}\right) f(\vec{k}', \vec{r}, t) [1 - f(\vec{k}, \vec{r}, t)] \left(\frac{d\tau_{\vec{k}}}{4\pi^3}\right) \right\} \end{cases} \quad (34)$$

Le premier terme de cette somme définit la diminution du nombre d'électrons contenus dans le volume $d\tau_{\vec{k}}$ causée par les transitions dans le sens $d\tau_{\vec{k}} \rightarrow d\tau_{\vec{k}'}$, alors que le second terme définit l'augmentation du nombre d'électrons dans le même volume déterminé par les transitions des électrons dans le sens inverse $d\tau_{\vec{k}'} \rightarrow d\tau_{\vec{k}}$ avec la probabilité $W_{\vec{k}', \vec{k}}$.

En intégrant l'équation (34) sur le volume V_K de la zone de Brillouin qui est le domaine de variation de \vec{k}' , on obtient la variation du nombre total d'états occupés dans ce volume pendant la durée d :

$$d \frac{d\tau_{\vec{k}}}{4\pi^3} V_K \left\{ W_{\vec{k}', \vec{k}} f(\vec{k}', \vec{r}, t) [1 - f(\vec{k}, \vec{r}, t)] - W_{\vec{k}, \vec{k}'} f(\vec{k}, \vec{r}, t) [1 - f(\vec{k}', \vec{r}, t)] \right\} \frac{d\tau_{\vec{k}'}}{4\pi^3} \quad (35)$$

Le nombre d'états permis qui sont occupés par des électrons à tout instant t est égal à $f(\vec{k}, \vec{r}, t) \frac{d\tau_{\vec{k}}}{4\pi^3}$, et la variation de ce nombre en raison des collisions dans le temps d est représentée par :

$$\frac{\partial}{\partial t} \Big|_c d \frac{d\tau_{\vec{k}}}{4\pi^3} \quad (36)$$

Ecrivons que l'équation (35) est égale à la quantité (36), et éliminons le terme commun $d \frac{d\tau_{\vec{k}}}{4\pi^3}$; on trouve alors :

$$\frac{\partial}{\partial t} \Big|_c = V_K \left\{ W_{\vec{k}', \vec{k}} f(\vec{k}', \vec{r}, t) [1 - f(\vec{k}, \vec{r}, t)] - W_{\vec{k}, \vec{k}'} f(\vec{k}, \vec{r}, t) [1 - f(\vec{k}', \vec{r}, t)] \right\} \frac{d\tau_{\vec{k}'}}{4\pi^3} \quad (37)$$

Cette expression de $\frac{\partial}{\partial t} \Big|_c$ est appelée *intégrale de collision*. Le développement de cette intégrale donne :

$$\begin{aligned}
\left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_{\vec{c}} &= \int_{V_K} \{ [W_{\vec{k}, \vec{k}'} f(\vec{k}', \vec{r}, t) - W_{\vec{k}', \vec{k}} f(\vec{k}, \vec{r}, t)] f(\vec{k}, \vec{r}, t) \} \\
&\quad - [W_{\vec{k}, \vec{k}'} f(\vec{k}, \vec{r}, t) - W_{\vec{k}', \vec{k}} f(\vec{k}, \vec{r}, t)] f(\vec{k}', \vec{r}, t) \} \frac{d\tau_{\vec{k}'}}{4\pi^3} \\
&= \int_{V_K} \{ [W_{\vec{k}, \vec{k}'} f(\vec{k}', \vec{r}, t) - W_{\vec{k}', \vec{k}} f(\vec{k}, \vec{r}, t)] - [W_{\vec{k}, \vec{k}'} - W_{\vec{k}', \vec{k}}] f(\vec{k}', \vec{r}, t) f(\vec{k}, \vec{r}, t) \} \frac{d\tau_{\vec{k}'}}{4\pi^3}
\end{aligned}$$

Si on considère que les probabilités des transitions directes et inverses sont égales, c'est-à-dire que $W_{\vec{k}, \vec{k}'} = W_{\vec{k}', \vec{k}}$, alors l'intégrale de collision (37) prend une forme plus simple et s'écrit :

$$\left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_{\vec{c}} = \int_{V_K} W_{\vec{k}, \vec{k}'} [f(\vec{k}', \vec{r}, t) - f(\vec{k}, \vec{r}, t)] \frac{d\tau_{\vec{k}'}}{4\pi^3} \quad (38)$$

En combinant les équations (27), (30) et (38), on obtient :

$$\frac{\partial (\vec{k}, \vec{r}, t)}{\partial t} = - \left(\vec{v} \cdot \vec{\nabla} f(\vec{k}, \vec{r}, t) + \frac{\vec{F}}{\hbar} \cdot \vec{k} f(\vec{k}, \vec{r}, t) \right) + \int_{V_K} W_{\vec{k}, \vec{k}'} [f(\vec{k}', \vec{r}, t) - f(\vec{k}, \vec{r}, t)] \frac{d\tau_{\vec{k}'}}{4\pi^3} \quad (39)$$

Cette équation est appelée *équation cinétique de Boltzmann*. L'intégrale de (39) renferme la fonction que l'on cherche à déterminer ; c'est pour cette raison qu'elle est appelée *équation intégro-différentielle*. Comme nous l'avons mentionné bien avant, sa solution n'est pas évidente.

Pour l'état stationnaire ($\frac{\partial}{\partial t} = 0$), l'équation cinétique de Boltzmann donne l'égalité suivante :

$$\int_{V_K} W_{\vec{k}, \vec{k}'} [f(\vec{k}', \vec{r}) - f(\vec{k}, \vec{r})] \frac{d\tau_{\vec{k}'}}{4\pi^3} = \vec{v} \cdot \vec{\nabla} f(\vec{k}, \vec{r}) + \frac{\vec{F}}{\hbar} \cdot \vec{k} f(\vec{k}, \vec{r}) \quad (40)$$

Conclusion : A l'état stationnaire, les modifications apportées par un (des) champ(s) appliqué(s) sont compensées par les collisions.

En introduisant le temps de relaxation, on peut exprimer l'intégrale de collision sous une forme assez simple. En effet, en combinant les équations (32) et (38), on obtient :

$$\left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_{\vec{c}} = \int_{V_K} W_{\vec{k}, \vec{k}'} [f(\vec{k}', \vec{r}, t) - f(\vec{k}, \vec{r}, t)] \frac{d\tau_{\vec{k}'}}{4\pi^3} = - \frac{f(\vec{k}, \vec{r}, t) - f_0(\vec{k}, \vec{r})}{\tau(\vec{k})} \quad (41)$$

De cette équation, on peut tirer une relation explicite entre le temps de relaxation $\tau(\vec{k})$, la probabilité de transition $W_{\vec{k}, \vec{k}'}$ et la fonction de distribution $f(\vec{k}, \vec{r}, t)$:

$$\frac{1}{\tau(\vec{k})} = \frac{1}{4\pi^3} \frac{1}{v_k} W_{\vec{k},\vec{k}'} \frac{[f(\vec{k},\vec{r},t) - f(\vec{k}',\vec{r},t)]}{[f(\vec{k},\vec{r},t) - f_0(\vec{k},\vec{r})]} d\tau_{\vec{k}'} \quad (42)$$

Solution de l'équation de Boltzmann pour les états stationnaires

Nous allons maintenant nous intéresser à résoudre l'équation cinétique de Boltzmann pour les états stationnaires, en tenant compte de (41), c'est-à-dire résoudre l'équation suivante :

$$\vec{v} \cdot \vec{\tau} f(\vec{k}, \vec{r}) + \frac{\vec{F}}{\hbar} \cdot \vec{k} f(\vec{k}, \vec{r}) = - \frac{f(\vec{k}, \vec{r}) - f_0(\vec{k}, \vec{r})}{\tau(\vec{k})} \quad (43)$$

Pour simplifier le problème, nous allons supposer que le champ extérieur appliqué est un champ électrique \vec{E} et que la fonction de distribution ne dépend pas de la position (c'est-à-dire $\vec{\tau} f(\vec{k}, \vec{r}) = \vec{0}$); l'équation (42) devient, sachant que $\vec{F} = -e\vec{E}$:

$$-\frac{e}{\hbar} \vec{E} \cdot \vec{k} f(\vec{k}) = - \frac{f(\vec{k}) - f_0(\vec{k})}{\tau(\vec{k})} \quad (44)$$

Et :

$$f(\vec{k}) = f_0(\vec{k}) + \frac{e}{\hbar} \tau(\vec{k}) \vec{E} \cdot \vec{k} f(\vec{k}) \quad (45)$$

Cette équation différentielle en $f(\vec{k})$ peut être résolue de façon itérative en approximant d'abord f dans le terme $\vec{k} f(\vec{k})$ par la fonction de distribution f_0 à l'équilibre. On obtient alors une solution de f linéaire en fonction de \vec{E} , qui sera de nouveau insérée dans l'équation (45) pour obtenir une solution quadratique en \vec{E} . Le processus est ainsi poursuivi et la fonction de distribution hors-équilibre $f(\vec{k})$ s'écrit au fur et à mesure en termes de puissances de \vec{E} .

Si l'on ne s'intéresse qu'à l'approximation linéaire de f en fonction de \vec{E} (cas de la conduction ohmique dans les solides), nous pouvons alors remplacer f par f_0 dans $\vec{k} f(\vec{k})$ et écrire : $\vec{k} f(\vec{k}) = \vec{k} f_0(\vec{k})$. L'équation (45) devient :

$$f(\vec{k}) = f_0(\vec{k}) + \frac{e}{\hbar} \tau(\vec{k}) \vec{E} \cdot \vec{k} f_0(\vec{k}) \quad (46)$$

Dans le cas où le champ électrique appliqué est de faible intensité, c'est-à-dire pour les petits écarts par rapport à l'équilibre (le problème linéarisé), l'équation (46) peut être considérée comme un développement de f_0 autour du point \vec{k} , autrement dit :

$$f(\vec{k}) = f_0\left(\vec{k} + \frac{e}{\hbar} \tau(\vec{k}) \vec{E}\right) \quad (47)$$

La distribution à l'état stationnaire résultant de l'application d'un champ extérieur \vec{E} et incluant les effets des collisions (décrits par τ), peut alors être représentée par une distribution de Fermi (représentée par f_0) décalée de la quantité $\frac{e}{\hbar} \tau \vec{E}$ par rapport à la position à l'équilibre.

Sur la *figure II.5*, nous avons représenté l'effet d'un champ appliqué E_x sur la distribution d'électrons quasi-libres dans l'espace des \vec{k} . La sphère de Fermi a pour rayon $k_F = \frac{\sqrt{2mE_F}}{\hbar}$; sa projection dans le plan (xy) est un cercle de même rayon. Sur cette figure, le cas (a) représente le déplacement de la sphère de Fermi (ou de la surface de Fermi), dans l'état stationnaire, d'une quantité $|\delta k_x| = e E_x \tau / \hbar$. Le cas (b) représente l'effet de E_x sur la fonction de distribution où l'on voit que la fonction $f(E(k))$ ne diffère sensiblement de la fonction à l'équilibre f_0 que dans le voisinage du niveau de Fermi (signalé par le rayon de Fermi), en gardant la même forme.

Il est intéressant de considérer l'effet des collisions élastiques et inélastiques (on parle plutôt de diffusion élastique et inélastique des électrons) sur l'équilibre du système dans l'espace des \vec{k} .

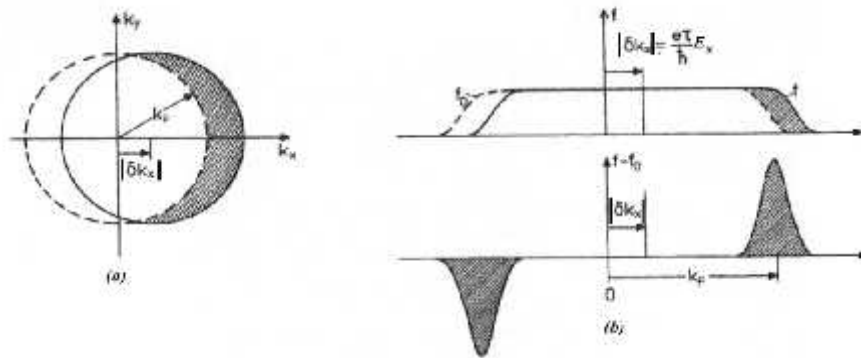


Figure II. 5: Effet de l'application d'un champ électrique suivant l'axe x (E_x)

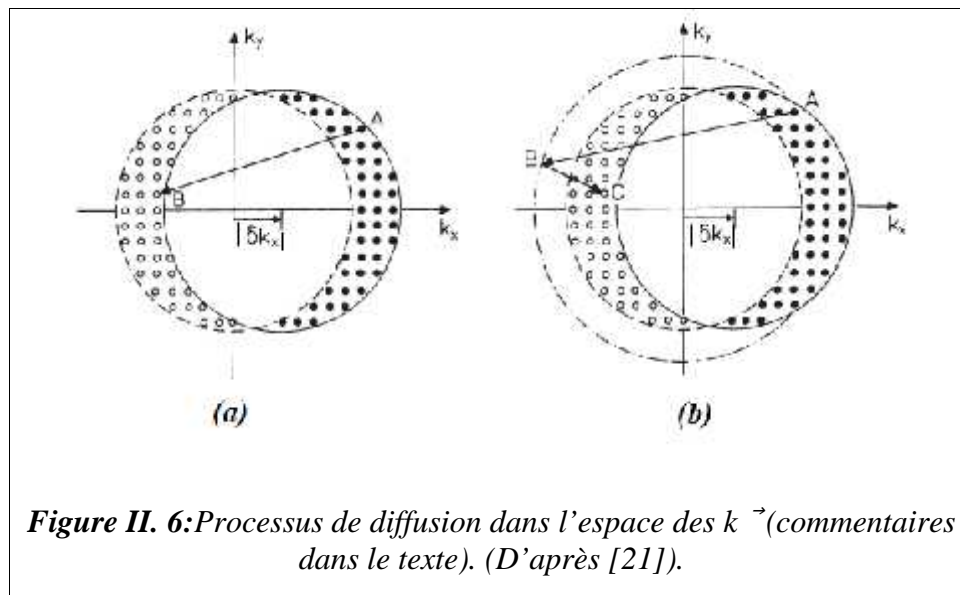
(a) Déplacement de la sphère de Fermi de la distribution à l'équilibre [- - -], centrée en $(0,0,0)$ de δk_x ;

(b) Représentation de la nouvelle fonction $f(E(k))$ au voisinage de E_F , ainsi que de la différence $(f - f_0)$ (D'après [23]).

L'effet de ces processus de diffusion sont schématisés sur la figure II.6, où le cercle en tirets (- - -) représente la surface de Fermi à l'équilibre thermodynamique (avec $\vec{E} = \vec{0}$). Sous

l'influence d'un champ électrique \mathcal{E}_x et pour un courant constant, la surface de Fermi est déplacée comme le montre le cercle en trait plein. Quand l'application du champ électrique cesse (on fait $\mathcal{E}_x = 0$), cette surface de Fermi retourne à la distribution d'équilibre à l'aide de la diffusion d'électrons (collisions) partant des états occupés (●) vers les états non occupés (○) (*cas (a)*). Comme les états A et B (*a*) se trouvent en des points différents dans l'espace des \vec{k} (c'est-à-dire avec des énergies différentes), la relaxation vers l'équilibre doit nécessairement faire intervenir des phénomènes de *diffusion inélastique* (par exemple, la diffusion par des phonons). Pour un processus de *diffusion purement élastique* (des états de type A vers les états de type B, *cas (b)* de la *figure (II.6)*, la sphère de Fermi (et donc la surface de Fermi) doit simplement s'élargir. Lorsqu'on interrompt le champ électrique (on fait $\mathcal{E}_x = 0$), l'équilibre ne peut être atteint que grâce à un phénomène de *diffusion inélastique* vers les états C à l'intérieur de la sphère de Fermi à l'équilibre (- - -).

Il est intéressant de considérer l'effet des collisions élastiques et inélastiques (on parle plutôt de diffusion élastique et inélastique des électrons) sur l'équilibre du système dans l'espace des \vec{k} . L'effet de ces processus de diffusion sont schématisés sur la figure II.6, où le cercle en tirets (- - -) représente la surface de Fermi à l'équilibre thermodynamique (avec $\vec{\mathcal{E}} = \vec{0}$). Sous l'influence d'un champ électrique \mathcal{E}_x et pour un courant constant, la surface de Fermi est déplacée comme le montre le cercle en trait plein.



Quand l'application du champ électrique cesse (on fait $\mathcal{E}_x = 0$), cette surface de Fermi retourne à la distribution d'équilibre à l'aide de la diffusion d'électrons (collisions) partant

des états occupés () vers les états non occupés () (*cas (a)*). Comme les états A et B (*a*) se trouvent en des points différents dans l'espace des \vec{k} (c'est-à-dire avec des énergies différentes), la relaxation vers l'équilibre doit nécessairement faire intervenir des phénomènes de *diffusion inélastique* (par exemple, la diffusion par des phonons). Pour un processus de *diffusion purement élastique* (des états de type A vers les états de type B, *cas (b)* de la *figure II.6*), la sphère de Fermi (et donc la surface de Fermi) doit simplement s'élargir. Lorsqu'on interrompt le champ électrique (on fait $\mathcal{E}_x = 0$), l'équilibre ne peut être atteint que grâce à un phénomène de *diffusion inélastique* vers les états C à l'intérieur de la sphère de Fermi à l'équilibre (- - -).

On constate donc, que seuls les phénomènes de *diffusion inélastique* (*figure II.6a*) permettent le retour à l'équilibre ; ils sont donc indispensables au rétablissement de cet équilibre. Par contre, les collisions élastiques (diffusion élastique) au niveau des défauts, par exemple, ne peuvent pas faciliter le retour à l'équilibre. Sans les collisions inélastiques, la sphère de Fermi se dilaterait simplement sous l'effet des collisions élastiques (*figure II.6b*).

Remarque : Une étude détaillée de la résolution de l'équation cinétique de Boltzmann stationnaire (43) est donnée dans la référence [26], où le traitement concerne également les porteurs de charge dans les semi-conducteurs en présence d'un champ électrique et d'un champ magnétique.

II.1 Conductivité électrique dans un métal et fonction de distribution

Nous avons vu dans la partie consacrée au modèle de Drude que la conductivité électrique métallique pouvait être liée au temps de relaxation τ suivant la relation :

$$\sigma = \frac{j}{E} = \frac{ne^2\tau}{m} \quad (48)$$

j étant la densité de courant et E l'intensité du champ électrique appliqué.

Dans ce modèle, la mobilité des électrons est donnée par :

$$\mu = \frac{e}{m} \quad (49)$$

En se limitant aux effets linéaires dans un champ électrique appliqué, c'est-à-dire la loi d'Ohm (ou conduction ohmique), on doit utiliser la forme linéaire de la fonction de distribution donnée par (46). Pour un champ électrique appliqué \mathcal{E}_x suivant la direction x , on montre [23] que la densité de courant électrique s'écrit :

$$\vec{j} = -\frac{e}{4\pi^3} V_K \vec{v}(\vec{k}) f(\vec{k}) d^3\vec{k} = -\frac{e}{4\pi^3} V_K d^3\vec{k} \vec{v}(\vec{k}) \left(f_0(\vec{k}) + \frac{e(\vec{k})}{\hbar} \mathcal{E}_x \frac{\partial f_0}{\partial k_x} \right) \quad (50)$$

Où V_K est le volume de la première zone de Brillouin, $\vec{v}(\vec{k})$ la vitesse de l'électron dans l'état \vec{k} , et $d^3\vec{k}$ est un volume élémentaire dans l'espace des \vec{k} .

Dans un milieu isotrope et pour les réseaux cubiques, les composantes de \vec{j} suivant les axes Oy et Oz n'existent pas lorsque le champ électrique est appliqué selon l'axe Ox . En d'autres termes, la relation tensorielle entre la densité de courant et le champ électrique se réduit à une relation scalaire :

$$j_y = j_z = 0 \quad (51)$$

La densité de courant est dans ce cas donnée par :

$$j_x = -\frac{e}{4\pi^3} V_K d^3\vec{k} v_x(\vec{k}) \left(f_0(\vec{k}) + \frac{e(\vec{k})}{\hbar} \mathcal{E}_x \frac{\partial f_0}{\partial k_x} \right) \quad (52)$$

Remarque : La fonction de distribution à l'équilibre $f_0(\vec{k})$ est une fonction paire de \vec{k} : $f_0(\vec{k}) = f_0(-\vec{k})$, alors que la vitesse est une fonction impaire : $v_x(-\vec{k}) = -v_x(\vec{k})$. Par conséquent, le produit $v_x(\vec{k})f_0(\vec{k})$ est une fonction impaire et son intégration dans la zone de Brillouin (c'est-à-dire entre des bornes symétriques) est nulle :

$$V_K d^3\vec{k} v_x(\vec{k}) f_0(\vec{k}) = 0 \quad (53)$$

Le sens physique de ce résultat est que, dans un milieu solide conducteur, ne peut circuler aucun courant électrique à l'équilibre thermodynamique.

Expression de $\frac{\partial f_0}{\partial k_x}$:

$$\frac{\partial f_0}{\partial k_x} = \frac{\partial f_0}{\partial E} \frac{\partial E}{\partial k_x} = \frac{\partial f_0}{\partial E} \hbar v_x \quad (54)$$

D'après $E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} = \frac{1}{2} m v^2$, avec $k^2 = k_x^2 + k_y^2 + k_z^2$, et $v^2 = v_x^2 + v_y^2 + v_z^2$. En tenant compte des équations (51), (52) et (53), on obtient :

$$j_x = -\frac{e^2}{4\pi^3} V_K d^3\vec{k} v_x^2(\vec{k}) \tau(\vec{k}) \mathcal{E}_x \frac{\partial f_0}{\partial E} \quad (55)$$

L'intervalle d'énergie où la fonction $f_0(E)$ varie rapidement est de l'ordre de $4k_B T$, centré sur E_F , comme le montre la figure II.7. Pour $T = 0 K$, $f_0(E)$ peut être représentée par une

fonction de Heaviside, ou fonction « échelon » : $f_0 = 1$ pour $E < E_F$ et $f_0 = 0$ pour $E > E_F$. Ceci fait que sa dérivée peut être approximée par une distribution de Dirac :

$$\frac{\partial f_0}{\partial E} \approx -\delta(E - E_F) \quad (56)$$

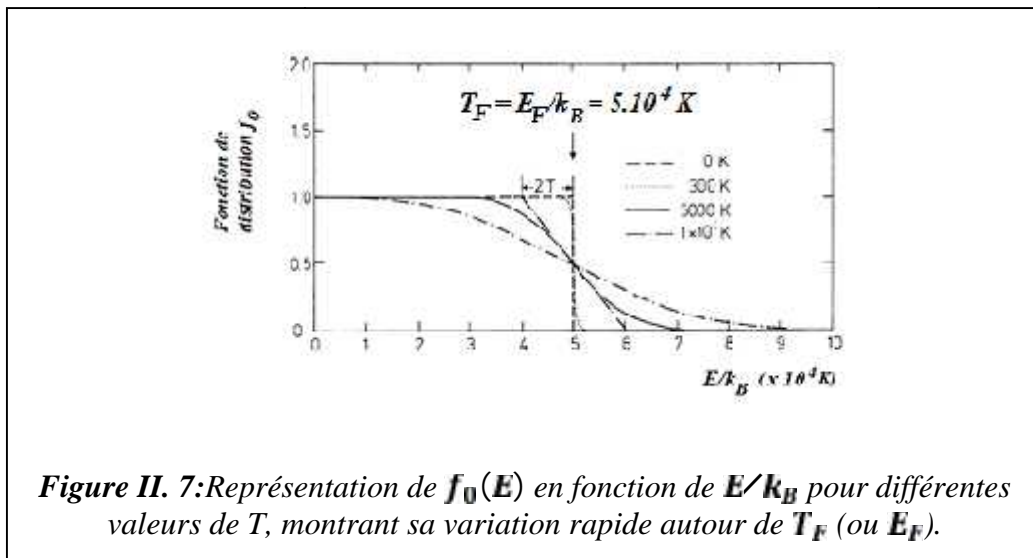
Où $\delta(E - E_F) = 1$ si $E = E_F$, et $\delta(E - E_F) = 0$ si $E \neq E_F$.

Pour les températures peu élevées autour la température ambiante, cette approximation reste bien valable. Et l'équation (55) devient :

$$j_x = \frac{e^2}{4\pi^2} E_x \frac{1}{V_K} \int d^3\vec{k} v_x^2(\vec{k}) \tau(\vec{k}) \delta(E - E_F) \quad (57)$$

Une intégration étendue à la zone de Brillouin (de volume V_K) peut être ramenée à une intégration par rapport à l'énergie, si on utilise la relation existant entre le volume élémentaire $d^3\vec{k}$ et l'énergie $dE(\vec{k})$:

$$dE = \vec{k} \cdot d\vec{k} = \left| \frac{dE}{dk_n} \right| dk_n = \hbar |v(\vec{k})| dk_n \quad (58)$$



Où dk_n est la projection du vecteur \vec{k} sur la normale à une surface d'égale énergie (ou surface isoénergétique). Désignons par dS_E un élément de la surface d'énergie ; on pourra alors définir un élément de volume par la relation :

$$d^3\vec{k} = dS_E dk_n = \frac{dS_E dE}{\hbar v(\vec{k})} \quad (59)$$

Avec $v(\vec{k}) = |v(\vec{k})|$.

La conductivité électrique s'écrit en tenant compte de (47) :

$$\sigma = \frac{J_x}{E_x} = \frac{e^2}{4\pi^2} \frac{1}{v_K} \int d^3k v_x^2(\vec{k}) \tau(\vec{k}) \delta(E - E_F) = \frac{e^2}{4\pi^2 \hbar} \frac{1}{v_K} \int dS_E dE \frac{v_x^2(\vec{k})}{v(\vec{k})} \tau(\vec{k}) \delta(E - E_F) \quad (60)$$

Comme $\delta(E - E_F) = 1$ si $E = E_F$, on obtient :

$$\sigma = \frac{e^2}{4\pi^2 \hbar} \int_{E=E_F} \frac{v_x^2(\vec{k})}{v(\vec{k})} \tau(\vec{k}) dS_E \quad (61)$$

En général, $v(\vec{k})$ et $\tau(\vec{k})$ varient sur la surface de Fermi. Cependant, dans l'équation (60), la valeur moyenne $\langle v_x^2(\vec{k}) \tau(\vec{k}) / v(\vec{k}) \rangle_{E_F}$ peut être sortie de l'intégrale. Pour une sphère de Fermi, c'est-à-dire pour des électrons presque libres avec une masse effective m constante, cette valeur moyenne est simplement donnée par :

$$\langle v_x^2(\vec{k}) \tau(\vec{k}) / v(\vec{k}) \rangle_{E_F} = v(E_F) \tau(E_F) / 3 \quad (62)$$

La conductivité électrique σ d'un métal peut alors être exprimée par une intégrale de surface sur la surface de Fermi $E = E_F$ dans l'espace des \vec{k} . Avec la remarque que seuls la vitesse $v(E_F)$ et le temps de relaxation $\tau(E_F)$ des électrons à la surface de Fermi apparaissent dans cette description de la conductivité à l'échelle microscopique.

L'équation (61) exprime le fait que seuls les électrons d'énergie proche de E_F participent au courant électrique dans le métal.

Pour le cas simple d'une bande conduction d'un métal (où l'effet de la température n'intervient pas : $k_B T \ll E_F$) contenant seulement des électrons ayant une masse effective constante (approximation parabolique), l'équation (61) peut être évaluée, en tenant compte des faits suivants. Pour ces électrons de masse m égale à une constante (électrons presque libres), nous avons :

$$v(E_F) = \hbar k_F / m \quad (63)$$

Et

$$\int_{E=E_F} dS_E = 4\pi k_F^2 \quad (64)$$

La densité n de ces électrons de conduction (nombre d'électrons/unité de volume) peut être simplement évaluée [21] :

$$n = \frac{1}{3\pi^2} \left(\frac{2m}{\hbar^2} \right)^{3/2} E_F^{3/2} = \frac{1}{3\pi^2} \left(\frac{2m}{\hbar^2} \right)^{3/2} \left(\frac{\hbar^2 k_F^2}{2m} \right)^{3/2} = \frac{k_F^3}{3\pi^2} \quad (65)$$

En tenant compte des équations (62) à (65), la conductivité électrique (61) est donnée par :

$$\sigma = \frac{e^2 \tau(E_F)}{3\pi^3 m} k_F^3 = \frac{n e^2 \tau(E_F)}{m} \quad (66)$$

La mobilité est alors donnée par :

$$\mu = \frac{e \tau(E_F)}{m} \quad (67)$$

Ces deux dernières relations sont équivalentes à celles déduites du modèle de Drude. Le temps de relaxation (qui n'est pas exactement spécifié dans ce modèle) est celui des électrons du niveau de Fermi, et la masse effective m remplace la masse de l'électron libre m . La concentration totale des électrons dans la bande de conduction qui apparaît dans le modèle de Drude, est également présente dans les relations plus rigoureuses que sont les équations (65) et (66). Cependant, ce résultat provient du fait de l'intégration sur la zone de Brillouin dans l'espace des \vec{k} (équation 59), et non -comme supposé dans le modèle de Drude- au fait que ce sont tous les électrons quasi-libres qui participent à la conduction électrique.

Chapitre III

*La conductivité
électrique dans une
couche mince*

III.1. Le modèle de Fuchs-Sondheimer

A température ambiante, le principal mécanisme qui régit la résistivité d'un métal à l'état massif est la diffusion des électrons de conduction par les phonons (vibrations du réseau). Cette diffusion entraîne la perte de l'énergie et de l'impulsion supplémentaires que l'électron peut acquérir à partir d'un champ électrique appliqué, et elle empêche donc la réponse électronique au champ appliqué ; en d'autres termes, *elle induit l'existence d'une résistivité métallique*. La distance moyenne parcourue par un électron entre deux événements de diffusion (ou collisions) est appelée le *libre parcours moyen* de l'électron, noté λ . D'autres mécanismes de résistivité peuvent également agir dans un métal massif comme, par exemple, la diffusion d'électrons par des impuretés résiduelles, des défauts ponctuels, linéaires et 2D ainsi que par les surfaces externes du conducteur, mais ces mécanismes sont considérés comme secondaires en raison de leur contribution négligeable à la résistivité. Cependant, lorsque la plus petite dimension du conducteur (son épaisseur) est réduite à l'ordre de son libre parcours moyen électronique, la fraction des électrons qui interagissent avec une surface externe du conducteur augmente et cela donne lieu à une augmentation de la résistivité, ce phénomène est un *effet de taille dit classique*.

Fuchs [27] a été le premier à expliquer et à modéliser la variation (augmentation) de la résistivité électrique causée par la diffusion des électrons sur les surfaces supérieure et inférieure d'une couche mince. Sondheimer [28] a ensuite étendu le travail de Fuchs à des conducteurs métalliques filaires. Leur théorie de la diffusion de surface est connue sous le nom du *modèle de Fuchs et Sondheimer (FS)*.

Dérivé de l'équation de transport de Boltzmann, le modèle FS traite tous les processus de diffusion sur les surfaces des conducteurs comme étant des réflexions *diffuses* ou *spéculaires*. Le modèle FS attribue une probabilité notée (p), pour que les événements de diffusion spéculaire se produisent, et $(1 - p)$ est la probabilité pour que les événements de diffusion spéculaire (réflexions diffuses) aient lieu. Cette probabilité de diffusion spéculaire ou non, est la seule caractéristique des surfaces limites d'une couche mince considérée par le modèle. Dans une réflexion diffuse, toute augmentation de la vitesse d'un électron induite par le champ électrique est perdue lors de la collision de la surface et de l'électron.

La réflexion spéculaire a lieu au niveau des surfaces *absolument planes à l'échelle atomique* (l'analogie est la réflexion d'un rayon lumineux par un miroir parfaitement plan) alors que la dispersion ou réflexion diffuse a lieu au niveau des surfaces *rugueuses à l'échelle atomique*. La réflexion spéculaire ($p = 1$) se fait sans changement d'énergie ; c'est un événement dans lequel la composante de la quantité de mouvement de l'électron

perpendiculaire à la surface est inversée (change de signe), alors que sa composante tangentielle est conservée, ce qui ne produit aucun effet sur la résistivité. Par contre, la dispersion diffuse ($p = 0$) est imprévisible et a lieu avec une perte plus ou moins importante d'énergie ; la quantité de mouvement électronique post-diffusion peut avoir une direction aléatoire ce qui se traduit par une augmentation de la résistivité.

La figure III.1 représente le cas d'une couche mince et les réflexions aux surfaces limites.

Notons cependant que certaines études [29,30] ont contesté l'hypothèse de Fuchs selon laquelle le paramètre p , qui reflète le caractère spéculaire ou non des réflexions, était constant. En effet, ces études estiment que ce paramètre doit également tenir compte de la longueur d'onde électronique, de l'angle d'incidence des électrons et de la rugosité géométrique de la surface (ou interface). A titre d'exemple, Soffer [31] a proposé un modèle de diffusion de surface alternatif qui attribue l'augmentation observée de la résistivité principalement aux réflexions des électrons arrivant en incidence *non rasante* (seuls les angles d'incidence importants sont comptabilisés) sur des *surfaces rugueuses* (voir §2).

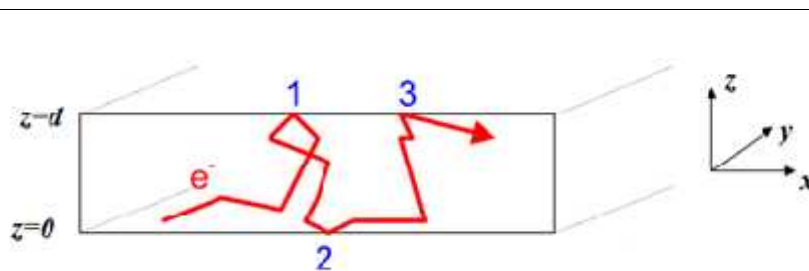


Figure III. 2 : Représentation schématique de la trajectoire d'un électron dans une couche métallique d'épaisseur d sous l'influence d'un champ électrique appliqué suivant la direction x .

Pour résumer, nous pouvons dire que le modèle FS décrit la dépendance de la résistivité d'un *effet de taille* (qui est causé par la faible épaisseur de la couche mince, et donc l'influence importante des surfaces qui limitent cette couche) uniquement pour une couche mince monocristalline, caractérisée par un libre parcours moyen de volume noté λ . La diffusion (ou réflexion) sur ces surfaces est décrite par un paramètre spéculaire p , tel que $0 \leq p \leq 1$: si $p = 0$, la réflexion est totalement diffuse ; si $p = 1$, elle est totalement spéculaire.

Pour obtenir la dépendance de la résistivité électrique de la couche mince vis-à-vis de son épaisseur d , il est nécessaire de résoudre l'équation cinétique de Boltzmann à l'état stationnaire (d'après les équations 40 et 41 du Chap. 2) :

$$-\frac{f(\vec{k}, \vec{r}) - f_0(\vec{k}, \vec{r})}{\tau(\vec{k})} = \vec{v} \cdot \nabla_{\vec{r}} f(\vec{k}, \vec{r}) + \frac{\vec{F}}{\hbar} \cdot \vec{k} f(\vec{k}, \vec{r}) \quad (1)$$

Avec le terme général relatif aux collisions :

$$\left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_{\vec{c}} = (v_{\vec{k}}) W_{\vec{k}, \vec{k}'} [f(\vec{k}', \vec{r}, t) - f(\vec{k}, \vec{r}, t)] \frac{d\tau_{\vec{k}}}{4\pi^3} = -\frac{f(\vec{k}, \vec{r}, t) - f_0(\vec{k}, \vec{r})}{\tau(\vec{k})} \quad (2)$$

Si $\vec{F} = -e\vec{\mathcal{E}}$, l'équation (1) s'écrit plus simplement :

$$\vec{v} \cdot \nabla_{\vec{r}} f - \frac{e\vec{\mathcal{E}}}{\hbar} \cdot \vec{k} f = \vec{v} \cdot \nabla_{\vec{r}} f - \frac{e\vec{\mathcal{E}}}{m} \cdot \vec{v} f = -\frac{f - f_0}{\tau(\vec{k})} = \left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_{\vec{c}} \quad (3)$$

Comme le mouvement d'un électron ne se fait plus uniquement suivant l'axe x , mais suivant les 3 dimensions dont z , cet électron sera repéré par son vecteur-position \vec{r} . Le terme

$$\vec{v} \cdot \nabla_{\vec{r}} f = \left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_{d\vec{e}r} \quad \text{n'est plus égal à zéro, parce que } f \text{ dépend maintenant de } \vec{r}.$$

L'équation (3) est déduite de l'équation générale à l'état stationnaire :

$$\frac{d}{dt} = \left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_{cha} \quad \text{élu} + \left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_{\vec{c}} + \frac{\partial}{\partial t} \Big|_{d\vec{e}r} = 0 \quad (4)$$

Si le champ électrique est appliqué suivant l'axe Ox : $\vec{\mathcal{E}} = (\mathcal{E}_x, 0, 0)$, alors

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial}{\partial t} \right|_{cha} \quad \text{élu} &= -\frac{e\vec{\mathcal{E}}}{m} \cdot \vec{v} f = -\frac{e}{m} \mathcal{E}_x \frac{\partial}{\partial v_x} f = -\frac{e}{m} \mathcal{E}_x \frac{\partial}{\partial} \frac{\partial}{\partial v_x} f = -\frac{e}{m} \mathcal{E}_x \frac{\partial}{\partial} \frac{\partial}{\partial v_x} \left(\frac{1}{2} m v_x^2 \right) \\ &= -e \mathcal{E}_x v_x \frac{\partial}{\partial} f - e \mathcal{E}_x v_x \frac{\partial f_c}{\partial} \end{aligned} \quad (5)$$

Sachant que $\frac{\partial}{\partial} = \frac{\partial f_0}{\partial}$.

Posons $g(\vec{k}, \vec{r}) = f(\vec{k}, \vec{r}) - f_c(\vec{k})$, qui représente l'écart de la fonction de distribution par rapport à l'équilibre. L'équation (3) peut alors s'écrire :

$$\frac{e\vec{\mathcal{E}}}{m} \cdot \vec{v} f - \vec{v} \cdot \nabla_{\vec{r}} f - \frac{f - f_0}{\tau} = \frac{e\vec{\mathcal{E}}}{m} \cdot \vec{v} f - \vec{v} \cdot \nabla_{\vec{r}} f - \frac{f - f_0}{\tau} = \frac{e\vec{\mathcal{E}}}{m} \cdot \vec{v} f_c - \vec{v} \cdot \nabla_{\vec{r}} g - \frac{g}{\tau} = 0 \quad (6)$$

Rappelons que : $\vec{\mathcal{E}} = (\mathcal{E}_x, 0, 0)$, $\vec{v} = (v_x, v_y, v_z)$ et $g = g(\vec{v}, z)$ (dérive suivant l'axe Oz uniquement) : $\frac{\partial}{\partial \vec{r}} (\vec{v}, \vec{r}) = \left(0, 0, \frac{\partial}{\partial z} (\vec{v}, \vec{r}) \right)$. Il vient alors :

$$\frac{e\vec{\mathcal{E}}}{m} \vec{v} f_0 - \vec{v} \cdot \nabla g - \frac{g}{\tau} = e\mathcal{E}_x v_x \frac{\partial f_0}{\partial v_x} - v_x \frac{\partial}{\partial z} g - \frac{g}{\tau} = 0 \quad (7)$$

La fonction g doit, de plus, satisfaire aux conditions aux limites suivantes :

$$\begin{aligned} g(\vec{v}, z = 0) &= 0, \quad \text{si } v_z > 0 \\ g(\vec{v}, z = d) &= 0, \quad \text{si } v_z < 0 \end{aligned} \quad (8)$$

Parce que la fonction de distribution des électrons doit être égale à la fonction de distribution à l'équilibre lors de la diffusion (ou réflexion) aux surfaces limites.

Les solutions de l'équation (7) sont :

$$\begin{aligned} g^+(\vec{v}, z) &= \frac{e \mathcal{E}_x}{m} \frac{\partial f_0(\vec{v})}{\partial v_x} \left[1 - e^{-\left(-\frac{z}{v_z}\right)} \right] \quad \text{si } v_z > 0 \\ g^-(\vec{v}, z) &= \frac{e \mathcal{E}_x}{m} \frac{\partial f_0(\vec{v})}{\partial v_x} \left[1 - e^{-\left(-\frac{d-z}{v_z}\right)} \right] \quad \text{si } v_z < 0 \end{aligned} \quad (9)$$

Ces résultats signifient qu'aux limites de la couche (en $z = 0$ et en $z = d$), la fonction de distribution hors équilibre est égale à f_0 : $f(\vec{k}, \vec{r}) = f_0(\vec{k})$.

$g^+(\vec{v}, z)$ représente la fonction de distribution perturbée des électrons qui s'éloignent de la surface $z = 0$ (substrat) et $g^-(\vec{v}, z)$ celle des électrons qui quittent la surface $z = d$ (limite supérieure de la couche).

La figure III.2 montre les contributions à la densité de courant d'une couche mince métallique des électrons avec une composante positive et une composante négative de la vitesse suivant l'axe Oz . L'épaisseur d de la couche est de l'ordre du libre parcours moyen de l'électron.

D'après l'équation (29) du Chap. 1, la densité de courant s'écrit :

$$\vec{j} = -\frac{e}{4\pi^3} \int v_K \vec{v}(\vec{k}) f(\vec{k}) d^3\vec{k}, \text{ soit suivant l'axe } Ox \text{ selon lequel le champ électrique est appliqué :}$$

$$j_x = -\frac{e}{4\pi^3} \int v_K v_x [g^+(\vec{v}, z) + g^-(\vec{v}, z)] d^3\vec{k} \quad (10)$$

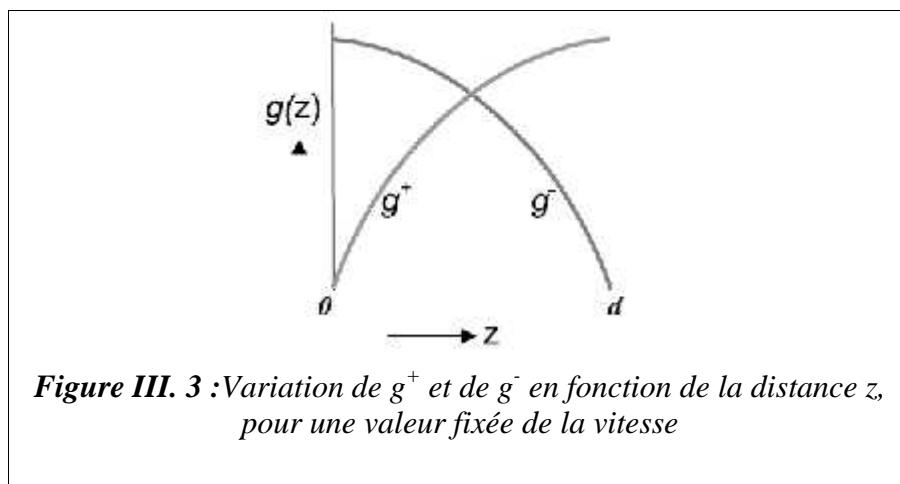
Dans le matériau massif ($d = \infty$), la densité de courant s'écrit $\vec{j} = \sigma \vec{E} = \frac{\vec{E}}{\rho}$; il en est de même dans la couche mince (d'épaisseur d).

Fuchs et Sondheimer [27,28] montrent que la résistivité de la couche mince ρ_F a pour expression :

$$\rho_F = \rho_t \left[1 - \frac{3\lambda}{2d} (1-p) \int_0^1 \left(\frac{1}{x^3} - \frac{1}{x^2} \right) \frac{1-e^{-\left(\frac{d}{\lambda}x\right)}}{1-p} \left(-\frac{d}{\lambda}x \right) dx \right]^{-1} \quad (11)$$

Où λ représente le libre parcours moyen des électrons de conduction défini par la diffusion sur les phonons et les imperfections (dans le volume du matériau constituant la couche mince), et ρ_t est la résistivité dans le volume de ce même matériau (on peut également la considérer comme la résistivité d'une couche mince de même nature mais d'épaisseur infinie).

L'équation (11) peut être résolue numériquement en fonction de l'épaisseur d de la couche mince. Même si cette équation ne montre pas de dépendance explicite par rapport à la température T , il faut quand même se rappeler que aussi bien ρ_t que λ sont fonctions de la diffusion sur les phonons et peuvent dépendre fortement de T dans les métaux purs. A la température ambiante, ρ_t est principalement déterminée par la diffusion sur les phonons, alors qu'à basse température (autour de 4,2 K) elle n'est pratiquement due qu'à la diffusion sur les défauts cristallins résiduels.



i. Cas d'une couche épaisse ($d \gg \lambda$)

Ce sont les valeurs de d/λ pour lesquelles le terme $e^{-\left(\frac{d}{\lambda}x\right)} \ll 1$.

$$\rho_F = \rho_t \left[1 + \frac{3\lambda}{2d} (1-p) \right] \quad (12)$$

ii. Cas d'une couche (assez) mince ($d \ll \lambda$)

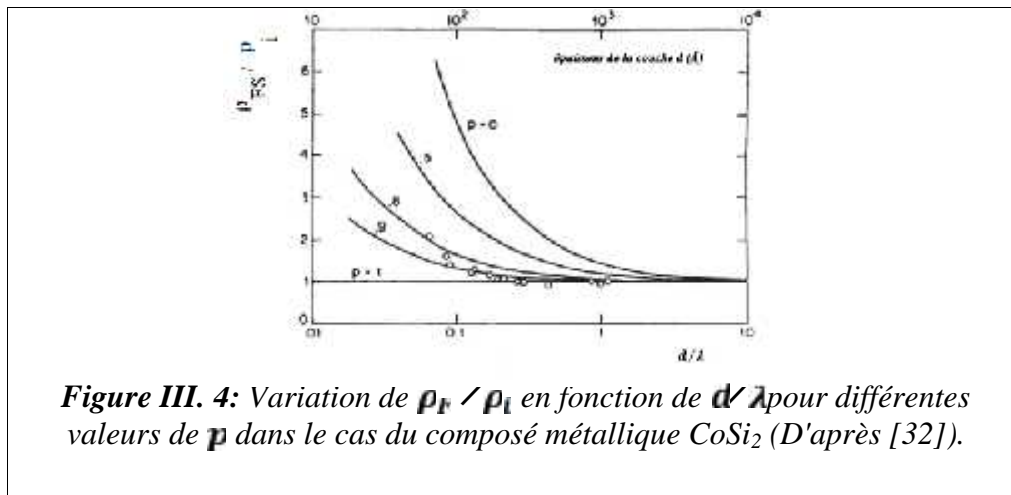
Ce sont les valeurs de d/λ le cas pour lesquelles le terme $e^{-\left(\frac{d}{\lambda}x\right)} \approx 1$ et est remplacé par le terme $1 + \frac{d}{\lambda}x$ (développement limité au premier ordre).

$$\rho_F / \rho_i = \left[\frac{3}{4} \left(\frac{1+p}{1-p} \right) k \left(l \frac{\lambda}{d} \right) \right]^{-1} \quad (13)$$

La figure III.4 donne une représentation de la variation du rapport des résistivités ρ_F / ρ_i en fonction du rapport d/λ , pour différentes valeurs du paramètre spéculaire p .

Les équations (12) et (13) sont souvent utilisées pour l'étude empirique de la variation de la résistivité en fonction des valeurs expérimentales de l'épaisseur d d'une couche mince.

En général, pour comparer les données expérimentales avec la théorie, il est nécessaire de linéariser les équations (12) et (13).



Cas où p n'est pas le même pour les deux surfaces.

On peut se poser la question de savoir quelle peut être l'expression de ρ_F / ρ_i si les deux surfaces limitant la couche mince sont caractérisées par des paramètres de spécularité différents : p_1 p_2 .

J. S. CHawla et D. Gall [33] ont répondu à cette question en montrant que, dans ce cas :

$$\frac{\rho_F}{\rho_i} = \left[1 - \frac{3\lambda}{4d} \int_1^{\infty} \left(\frac{1}{x^3} - \frac{1}{x^5} \right) \frac{2 \left[1 - p_1 p_2 e^{-\left(-\frac{d}{\lambda} x\right)} \right] \left[1 - e^{-\left(-\frac{d}{\lambda} x\right)} \right] - (p_1 + p_2) \left[1 - e^{-\left(-\frac{d}{\lambda} x\right)} \right]^2}{1 - p_1 p_2 e^{-\left(-2\frac{d}{\lambda} x\right)}} dx \right]^{-1} \quad (14)$$

Une forme approximative de l'équation (13b) est obtenue pour les valeurs élevées de d/λ :

$$\rho_F / \rho_i = 1 + \frac{3}{8k} \left(1 - \frac{p_1 + p_2}{2} \right) \quad (15)$$

Démonstration :

En négligeant $p_1 p_2 e^{-\left(-\frac{d}{\lambda} x\right)}$, $e^{-\left(-\frac{d}{\lambda} x\right)}$ et $p_1 p_2 e^{-\left(-2\frac{d}{\lambda} x\right)}$ devant 1 dans l'équation ci-dessus, on obtient :

$$\frac{\rho_F}{\rho_t} \left[1 - \frac{3\lambda}{4d} \times 2 \left(1 - \frac{p_1 + p_2}{2} \right) \int_1^{\infty} \left(\frac{1}{x^3} - \frac{1}{x^5} \right) dx \right]^{-1}$$

Sachant que $\int_1^{\infty} \left(\frac{1}{x^3} - \frac{1}{x^5} \right) dx = 1/4$, alors : $\frac{\rho_F}{\rho_t} \left[1 - \frac{3\lambda}{8d} \left(1 - \frac{p_1 + p_2}{2} \right) \right]^{-1} = 1 + \frac{3}{8k} \left(1 - \frac{p_1 + p_2}{2} \right)$

III.2. Effet de la rugosité de surface dans le modèle FS

Le modèle FS utilise la probabilité de réflexion spéculaire ou paramètre spéculaire p , comme caractéristique de la surface externe du conducteur dont on peut changer la valeur pour l'adapter aux données expérimentales. Néanmoins, ce modèle n'inclut pas explicitement la rugosité de la surface où a lieu ce type de diffusion.

Remarque : Nous donnons dans l'Annexe B une définition de la rugosité d'une surface.

Soffer [31] a introduit un modèle de diffusion de surface qui utilise la rugosité de la surface pour calculer une probabilité de réflexion spéculaire dépendant de l'angle d'incidence sur cette surface. Ce modèle permet une comparaison avec des données expérimentales sans ajustement du paramètre p lorsque la rugosité des surfaces est connue. Dans ce modèle, chacune des deux surfaces est caractérisée par un paramètre spéculaire qui est dépendant de la rugosité et de l'angle d'incidence du flux électronique par rapport à la normale à la surface.

Pour une couche mince limitée par une surface supérieure (1) et une surface inférieure (2) de rugosités R_1 et R_2 , respectivement, le paramètre spéculaire de Soffer est donné, pour chacune des deux surfaces, par :

$$\begin{aligned} p_1(c_1) &= e^{-\left[-\left(\frac{4\pi R_1}{\lambda_F} \right)^2 c_1^2 \theta \right]} = e^{-\left[-(4\pi r_1)^2 c_1^2 \theta \right]} \\ p_2(c_1) &= e^{-\left[-\left(\frac{4\pi R_2}{\lambda_F} \right)^2 c_1^2 \theta \right]} = e^{-\left[-(4\pi r_2)^2 c_1^2 \theta \right]} \end{aligned} \quad (16)$$

Où θ est l'angle d'incidence des électrons sur chacune des surfaces, et λ_F est la longueur d'onde de Fermi des électrons, définie par $\lambda_F = 2\pi/k_F = h/\sqrt{2m E_F}$. A titre d'exemple, $\lambda_F = 0,5 \text{ nm}$ pour Cu [34].

Dans les équations (14), les coefficients R_1 et R_2 sont en fait les écarts quadratiques moyens tels que définis dans l'annexe B; r_1 et r_2 sont les mêmes écarts mais rapportés à la longueur d'onde de Fermi.

Le paramètre spéculaire moyen pour les surfaces (1) et (2) est donné, dans le modèle de Soffer, par :

$$p(c_1) = \frac{1}{2} [p_1(c_1) + p_2(c_1)] \quad (17)$$

La résistivité selon ce modèle a pour expression [35] :

$$\rho_S = \rho_t \left\{ 1 - \frac{3\lambda}{2d} \frac{1}{c} \frac{\int_0^1 (u-u^3)[1-e^{-(d/\lambda)u}]\{1-p+[p-p_1(u)p_2(u)]e^{-(d/\lambda)u}\} du}{[1-p_1(u)p_2(u)]e^{-(2d/\lambda)u}} \right\}^{-1} \quad (18)$$

La variable d'intégration est $u = c_1$; les bornes d'intégration sont 0 et 1, c'est-à-dire pour θ variant entre $\pi/2$ (incidence rasante) et 0 (incidence normale à chacune des deux surfaces).

En utilisant ce modèle, on peut estimer l'augmentation de la résistivité à cause de la diffusion des électrons induite par la rugosité de surface, et qui est donnée par : $\rho_S = \rho_t + \rho_F$.

Par ailleurs, Rossnagel et Kuan (RK) ont proposé une extension semi-empirique du modèle FS incluant de façon explicite la rugosité de surface [36]. Basé sur des simulations de trajectoires d'électrons près de la surface rugueuse en utilisant la méthode de Monte Carlo, leur modèle donne l'expression suivante de la résistivité :

$$\rho_R = \rho_t + \rho_F \left(1 + \frac{\rho_F}{n} \right) \quad (19)$$

Où $\rho_F = \rho_S - \rho_t$, et n est un paramètre incluant l'épaisseur d et la longueur d'onde λ_F ; il est déterminé par les simulations Monte Carlo.

Ce dernier modèle utilise toujours le paramètre spéculaire du modèle FS comme un paramètre d'ajustement, et donne lieu à des augmentations de la résistivité plus importantes que celles que donne le modèle FS.

Un modèle relativement plus récent [37] utilisant également les techniques de simulation Monte Carlo a permis de mieux comprendre le rôle de la rugosité de surface ; ce modèle inclut la possibilité pour les électrons d'être temporairement localisés (piégés) dans des aspérités de la surface rugueuse.

III.3. Le modèle de Mayadas-Shatzkes (MS)

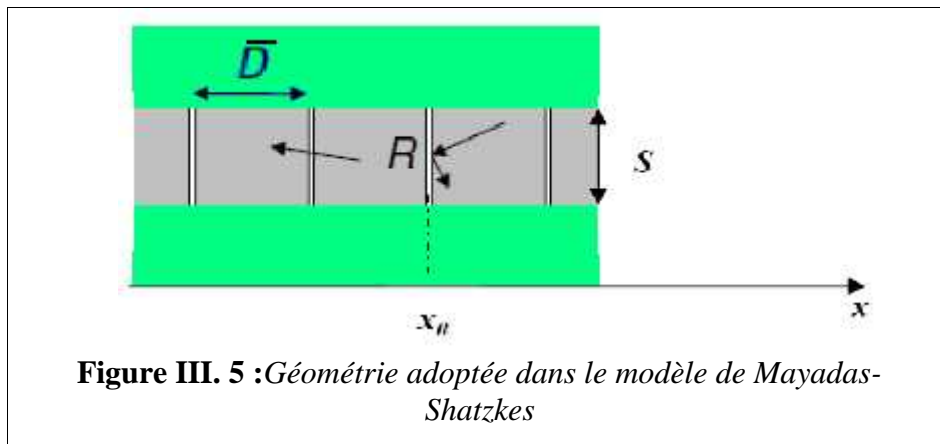
Mayadas et Shatzkes [38] ont développé une extension de la théorie du transport de Boltzmann pour inclure la réflexion et la transmission d'électrons de conduction aux joints de grains d'un métal polycristallin. Ce modèle noté MS) qui étudie, dans un premier temps, la diffusion des électrons sur les joints de grains qui séparent les cristallites dans une couche mince polycristalline, y ajoute par la suite l'effet des surfaces en incluant le modèle FS.

Un joint de grain est un défaut à deux dimensions (2D) qui peut être représenté par une barrière de potentiel sur laquelle les électrons sont réfléchis ou transmis.

Chaque joint de grain perpendiculaire à la direction du courant est traité comme une surface interne, et lorsqu'un électron de conduction entre en collision avec ce joint grain, il a une probabilité de transmission ou de réflexion qui est quantifiée par un coefficient de réflexion, R . Ce coefficient peut prendre des valeurs comprises entre zéro et un et varie pour s'adapter aux données expérimentales. Plus R est grand, plus les électrons sont réfléchis et plus la résistivité de la couche mince augmente. La réflexion aux joints de grains peut être spéculaire ou diffuse, et tous les électrons diffusés selon ces deux mécanismes contribuent à l'augmentation de la résistivité.

Le modèle MS est un modèle à une dimension qui repose sur les hypothèses simplificatrices suivantes :

- i. Seuls les joints de grains perpendiculaires au champ électrique participent à la diffusion des électrons ; autrement dit les réflexions sur des joints de grain *parallèles* au champ électrique ne jouent aucun rôle dans l'augmentation de la résistivité (*ces réflexions sont purement spéculaires*) ;
- ii. Les joints de grains sont représentés par des plans parallèles séparés par une distance moyenne \bar{D} (qui est assimilée au diamètre moyen des grains)
- iii. Un plan réflecteur situé à la position x_n (n variable) peut être représenté par une barrière de potentiel de la forme $V_{x_n} = S$, où S est la hauteur de la barrière (figure III.4).



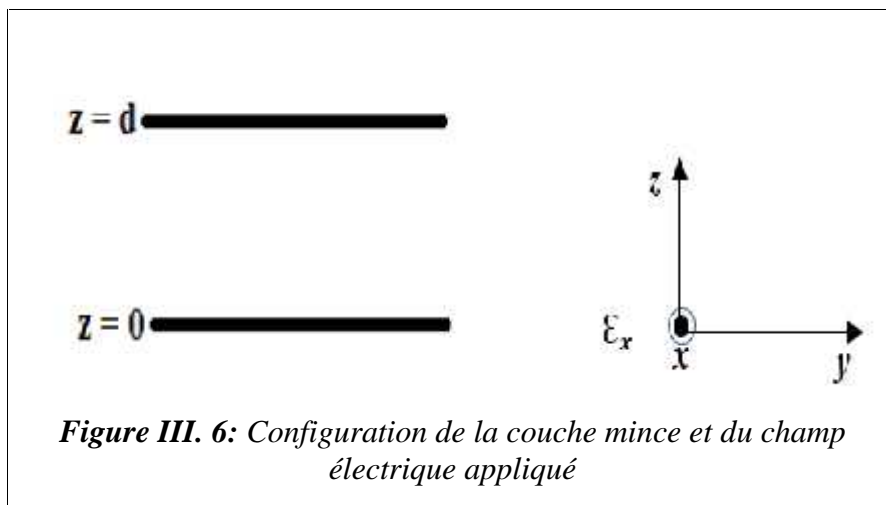
Soient $f(\vec{k}, \vec{r})$ la fonction de distribution des électrons, hors équilibre et $f_0(\vec{k})$ leur fonction de distribution à l'équilibre. Posons $g(\vec{k}, \vec{r}) = f(\vec{k}, \vec{r}) - f_0(\vec{k})$.

On suppose que la couche mince a une épaisseur d suivant l'axe Oz , et on applique un champ électrique $\vec{\mathcal{E}} = (\mathcal{E}_x, 0, 0)$ suivant l'axe Oz comme le montre la figure III.5.

On rappelle le résultat obtenu dans le paragraphe « Equation de Boltzmann » et qui est :

$$f(\vec{k}) = f_0(\vec{k}) + \frac{e}{\hbar} \tau(\vec{k}) \vec{\mathcal{E}} \cdot \vec{k} f_0(\vec{k}) \quad (\text{Voir équation 45 du Chap. 1}).$$

Sachant que $\vec{\mathcal{E}} \cdot \vec{k} f_0(\vec{k}) = \mathcal{E}_x \frac{\partial f_0}{\partial k_x} = \mathcal{E}_x \frac{\partial f_0}{\partial \epsilon} \frac{\partial \epsilon}{\partial k_x} = \mathcal{E}_x \frac{\partial f_0}{\partial \epsilon} \hbar v_x$ (voir équation 53 du Chap. 1)



Nous rappelons que nous avons : $\vec{\mathcal{E}} = (\mathcal{E}_x, 0, 0)$, $\vec{v} = (v_x, v_y, v_z)$ et $g = g(\vec{v}, z)$ (la dérivée n'existe que suivant l'axe Oz uniquement) (voir paragraphe FS).

Cas d'une couche d'épaisseur « infinie ».

Dans ce cas, la fonction de distribution $g(\vec{k}) = f(\vec{k}) - f_0(\vec{k})$ reflète les effets superposés de la diffusion des électrons dans les grains constituant l'échantillon et sur les joints de grains, en considérant que cet échantillon est polycristallin. Ces deux processus sont caractérisés par un temps de relaxation $\tau(\vec{k})$.

D'après l'équation (45) du Chap. 1 :

$$g(\vec{k}) = f(\vec{k}) - f_0(\vec{k}) = \frac{e}{\hbar} \tau(\vec{k}) \vec{\mathcal{E}} \cdot \vec{k} f_0(\vec{k}) = e \tau(\vec{k}) \mathcal{E}_x v_x \frac{\partial f_0}{\partial \epsilon}.$$

C'est la solution de l'équation cinétique de Boltzmann (équation 39 du Chap. 1).

Les paramètres importants dans le modèle MS sont le diamètre moyen des grains \bar{D} , le libre parcours moyen des électrons λ et le coefficient de réflexion R [38]. Ces paramètres sont regroupés dans un seul autre, donné par :

$$\alpha = \frac{\lambda R}{\bar{D} (1-R)} \quad (20)$$

Dans le modèle MS, la résistivité de la couche mince ρ_M a pour expression :

$$\rho_M = \rho_t f(\alpha) = \rho_t \left[1 - \frac{3}{2}\alpha + 3\alpha^2 - 3\alpha^3 h \left(1 + \frac{1}{\alpha} \right) \right]^{-1} \quad (19)$$

Dans l'expression (19), ρ_t et λ représentent -respectivement- la conductivité et le libre parcours à l'intérieur d'un grain (c'est-à-dire la conductivité et le libre parcours moyen d'un *monocrystal* du même matériau, qui a la même densité de défauts et d'impuretés que le grain).

Dans le cas des faibles valeurs de α , cette équation devient :

$$\rho_M = \rho_t \left[1 + \frac{3}{2} \left(\frac{\lambda}{\bar{D}} \right) \left(\frac{R}{1-R} \right) \right] \quad (20)$$

Selon ce modèle, l'augmentation de résistivité à cause de la diffusion sur les joints de grain est : $\rho_M = \rho_M - \rho_t$.

La combinaison de l'effet des surfaces de la couche mince (modèle FS) et de l'effet des joints de grain (modèle MS) (modèle combine noté MSS) donne la relation suivante pour la résistivité totale ρ_M :

$$\frac{1}{\rho_M} = \frac{1}{\rho_M} - \frac{6}{\pi \rho_t} (1-p) \int_0^{\pi/2} d \int_1^{\frac{c}{H^2(x,\phi)} \left(\frac{1}{x^2} - \frac{1}{x^5} \right) \frac{1-e^{-[\kappa(x,\phi)]}}{1-p} \frac{[-\kappa(x,\phi)]}{[-\kappa(x,\phi)]} d \quad (21)$$

Rappelons que p est le paramètre spéculaire du modèle FS, $\kappa = d/\lambda$ et la fonction $H(x, \phi)$ est définie par :

$$H(x, \phi) = 1 + \frac{\alpha}{c \sqrt{(1-1/x^2)}} \quad (22)$$

Avec $x = c \sin^{-1} \theta$, où θ est l'angle que font la vitesse \vec{v} et la direction Oz .

Pour une couche mince *monocrystalline*, $\alpha = 0$, et l'équation (21) se réduit à l'équation (11). Pour une couche mince polycristalline, elle inclut la diffusion des électrons sur les joints de grain ; lesquels électrons sont redirigés vers les deux surfaces limites de la couche.

Dans l'équation (21), le coefficient de réflexion aux joints de grains R et le paramètre spéculaire p peuvent être déterminés en même temps. Par ailleurs, l'expression à l'intérieur de l'intégrale montre que les deux mécanismes (diffusion aux joints de grains et aux surfaces)

sont indépendants l'un par rapport l'autre puisque cette expression contient les deux paramètres de diffusion (R et p), de telle façon que la règle de Matthiessen puisse s'appliquer. Un modèle combiné (FS + MS) pour les surfaces, les joints de grain et la diffusion sur les phonons utilisant cette approche peut être *simplement* écrit sous la forme :

$$\rho_{(F+M)} = \rho_l + \rho_F + \rho_M \quad (23)$$

De manière similaire, un autre modèle combiné (Soffer + MS), basé sur la règle de Matthiessen appliqué à la diffusion sur les surfaces rugueuses, les joints de grain et sur les phonons peut être écrit comme suit :

$$\rho_{(S+M)} = \rho_l + \rho_S + \rho_M \quad (24)$$

Il en est de même si on combine le modèle RK (équation 17) et la diffusion sur les joints de grain :

$$\rho_{(R+M)} = \rho_R + \rho_M \quad (25)$$

La figure III.6 montre une comparaison entre les modèles (FS + MS) en utilisant la règle de Matthiessen (équation 23), et le modèle MSS décrit par l'équation (21), pour une couche mince de cuivre d'épaisseur $d = 30 \text{ nm}$ et de diamètre moyen des grains $\bar{D} = 30 \text{ nm}$.

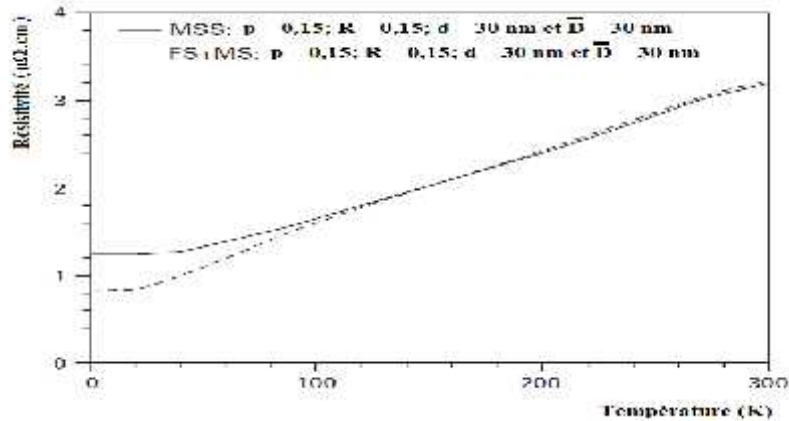


Figure III. 7: Variation de la résistivité totale résultat de la combinaison de deux modèles de diffusion sur les joints de grain et les surfaces d'une couche mince de cuivre : modèle (FS + MS) (équation 23) et modèle MSS (équation 21). (D'après [40])

L'interaction entre la diffusion des électrons sur les joints de grain et les surfaces, à travers les réflexions de type diffus, domine à basse température pour le modèle MSS, alors que cette interaction est absente dans le modèle (FS + MS). A haute température, les deux modèles se rejoignent.

III.4. Influence des impuretés et des pores sur la résistivité

Mentionnons également que la présence d'impuretés et de pores (cavités) dans une couche mince métallique polycristalline induit une augmentation non négligeable de la résistivité.

A titre d'exemple, des concentrations élevées d'impuretés, telles que Al, O et C dans des couches minces de Cu de haute pureté (99,99%) montrent une légère augmentation de leur résistivité de $\sim 0,01 \mu \Omega \cdot \text{cm}$.

Selon la technique d'élaboration d'une couche mince, celle-ci peut contenir un taux de vide plus ou important. Mais en général, les couches minces polycristallines sont préparées de manière à limiter sensiblement le taux de vide, si bien que ce dernier n'influe pas sensiblement sur la résistivité [39].

III.5. L'approximation de Tellier, Tosser et Pichard

Dans le modèle théorique proposé par Mayadas et Shatzkes [38], l'expression de la fonction $f(\alpha)$ (équation 19) est compliquée ; Pichard *et al.* [41] ont alors proposé une forme plus simple de cette fonction.

Le coefficient de température de la résistivité (CTR) est défini par [41] : $\beta = -d(\ln \rho)/d$, où $\sigma_M = 1/\rho_M$ est la conductivité de la couche mince polycristalline :

$$\sigma_j = \sigma_t \cdot h(\alpha) \quad (26)$$

σ_t étant la conductivité de volume, $\sigma_j = \sigma_M$ dans le modèle MS, et $h(\alpha) = 1/f(\alpha)$.

Le rapport du CTR relatif au modèle de diffusion sur les joints de grain (β_j) au CTR relatif au volume (β_t) est donné par [42] :

$$\frac{\beta_j}{\beta_t} = 1 + h(\alpha)^{-1} + \frac{a h(\alpha)}{a} \quad (27)$$

Des expériences sur des couches minces polycristallines [43,44] ont montré que :

$$\frac{\beta_j}{\sigma_j} = \frac{\beta_t}{\sigma_t} \text{ ou } \rho_j \cdot \beta_j = \beta_t \rho_t \quad (28)$$

Les équations (26), (27) et (28) donnent :

$$\frac{a h(\alpha)}{h(\alpha)[h(\alpha)-1]} = \frac{a}{\alpha} \quad (29)$$

La solution de l'équation (29) est :

$$h(\alpha) = \frac{1}{1+C_1\alpha} \quad (30)$$

Où C_1 est une constante.

$h(\alpha)$ est une forme approximative hyperbolique de la fonction MS, $h(\alpha) = 1/f(\alpha)$.

Un ajustement parfait de $h(\alpha)$ avec $h(\alpha)$ serait obtenu si on pouvait faire varier C_1 avec α . Mais une variation C_1 de C_1 implique une variation h de $h(\alpha)$, dont la valeur peut être calculée de l'équation (30) :

$$\frac{h}{h(\alpha)} = -[1 - h(\alpha)] \frac{C_1}{C_1} \quad (31)$$

L'écart par rapport à la valeur idéale est le plus faible lorsque $h(\alpha)$ prend des valeurs proches de l'unité, c'est-à-dire pour les valeurs les plus faibles de α . Pour les valeurs plus élevées de α , on doit ajuster $h(\alpha)$ à $h(\alpha)$ en agissant sur la constante C_1 (voir équation 30). Dans ce cas, la valeur de C_1 est choisie de telle façon à ce que les valeurs approximative h et exacte h coïncide pour la valeur quasi-maximale que peut prendre α , soit $\alpha = 10$ [40] ; des valeurs plus élevées de α sont rarement obtenues à la température ambiante [42].

Le tableau 1 donne les valeurs des fonctions $h(\alpha)$ et $h(\alpha)$. On y constate, par exemple, que pour $C_1 = 1,34$, l'écart entre les deux fonctions est inférieur à 4% pour les valeurs de α comprises entre 0,01 et 10.

D'après Sondheimer [28], on peut exprimer la conductivité σ_j en coordonnées polaires sous la forme suivante :

$$\sigma_j = \sigma_i \left[\frac{\theta}{4\pi} \frac{2\pi}{\alpha} d \quad \frac{\pi \theta}{\alpha} \frac{2\theta \phi}{1 + \lambda/\lambda_j} d \right] \quad (32)$$

Où λ_j est le libre parcours moyen relatif à la diffusion sur les joints de grain.

En supposant que λ_j est indépendant de θ et de ϕ , alors :

$$\sigma_j = \frac{\sigma_i}{1 + \lambda/\lambda_j} \quad (33)$$

En remplaçant $h(\alpha)$ par $h(\alpha)$ (équation 30) dans l'équation (26), on obtient :

$$\lambda/\lambda_j = C_1 \alpha \quad (34)$$

α	$C_1 \alpha$	$1 + C_1 \alpha$	f^*	f
0.01	0.0134	1.0134	0.9868	0.985286
0.05	0.067	1.067	0.9372	0.931358
0.1	0.134	1.134	0.8818	0.872806
0.5	0.67	1.67	0.5888	0.588000
1	1.34	2.34	0.42735	0.420558
2	2.68	3.68	0.2717	0.268837
3	4.02	5.02	0.1992	0.197752
4	5.36	6.36	0.1572	0.156438
5	6.7	7.7	0.1299	0.129416
10	13.4	14.4	0.0694	0.069461

Tableau III. 1: Comparaison entre les fonctions MS ($h(\alpha)$) et l'approximation hyperbolique ($f(\alpha)$) (D'après [41])

Dans le modèle MS [38], la valeur exacte du rapport λ/λ_f est :

$$\left(\lambda/\lambda_f\right)_e = \frac{\alpha k_F}{\tau |k_x|} \quad (35)$$

Où τ est le temps de relaxation dans le volume, k_F le vecteur d'onde de Fermi et k_x le vecteur d'onde suivant la direction Ox .

La comparaison des équations (34) et (35) permet de déduire la valeur de $C_1 \alpha$ et donc de $h(\alpha)$:

$$h(\alpha) = \frac{1}{1 + (\alpha k_F / \tau |k_x|)} \quad (36)$$

Chapitre IV :
Résultats &
commentaires

Dans ce chapitre, nous allons présenter les résultats obtenus dans les essais de modélisation de la résistivité électrique de couches minces métalliques, selon plusieurs modèles et en utilisant des programmes (ou scripts) écrits en langage Python. Dans l'annexe A, nous présentons quelques-uns de ces scripts.

Nous considérons une couche mince d'épaisseur d dont deux les surfaces limitatives peuvent, de manière générale, être caractérisées par deux paramètres spéculaires notés p_1 et p_2 . Cette couche mince peut être mono- ou polycristalline et le libre parcours moyen des électrons y est noté λ . Nous ne tenons pas compte de l'effet de la température et considérons que $T = 298 K$.

IV.1. Le modèle de Fuchs-Sondheimer

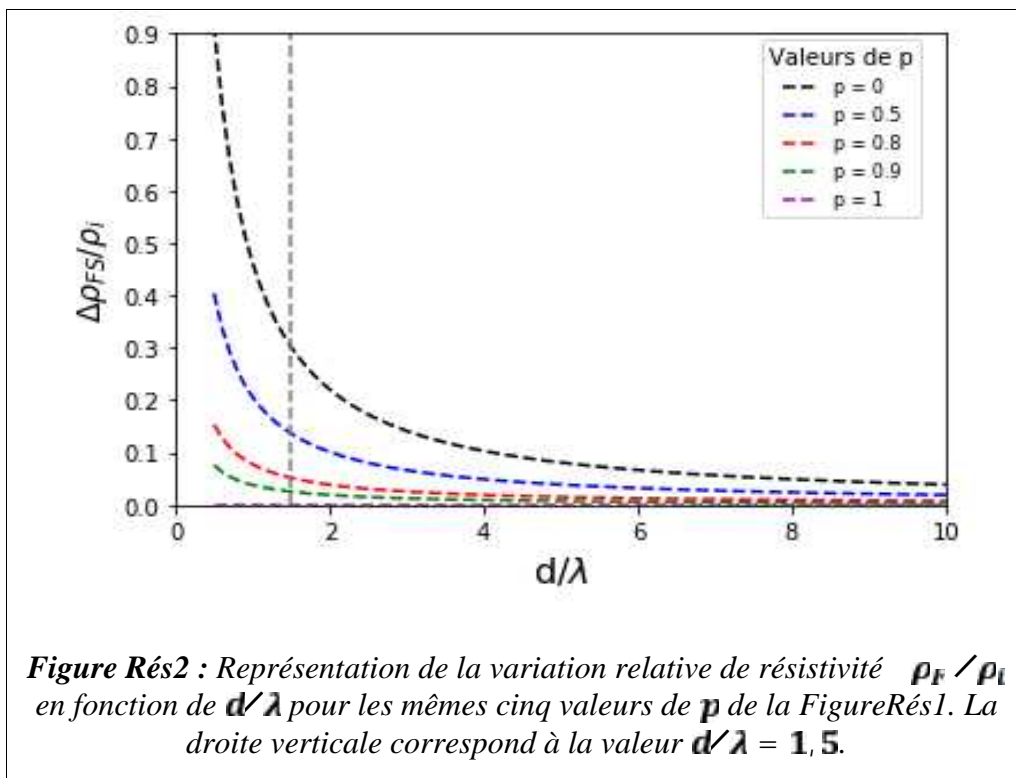
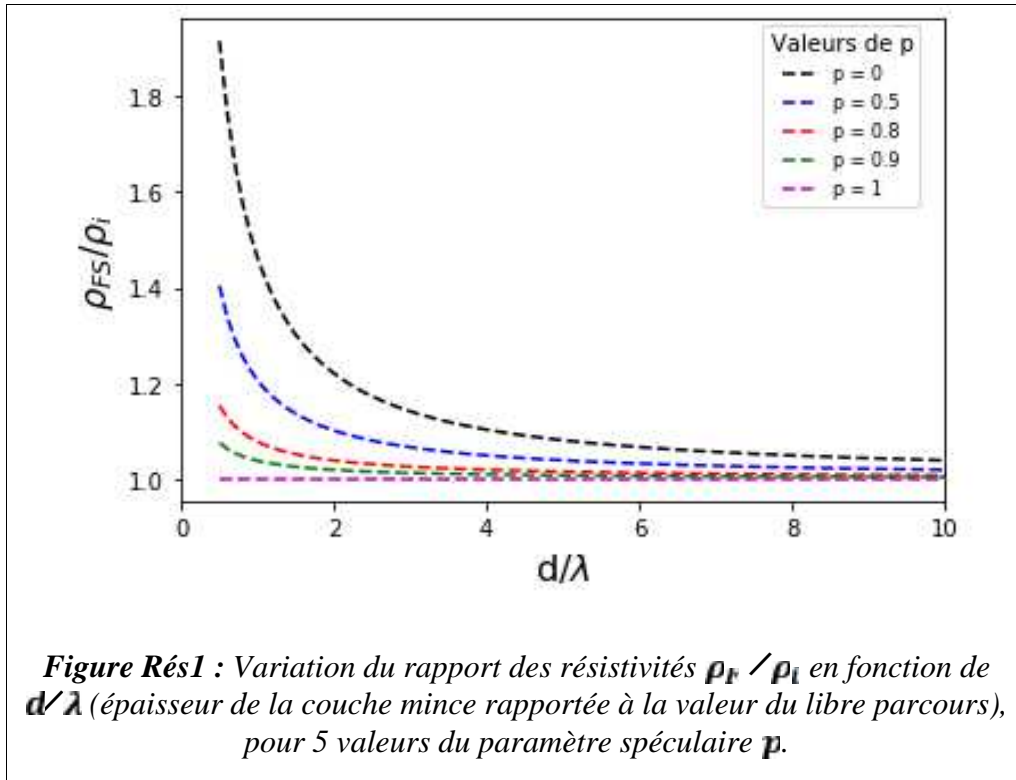
Dans ce modèle, on suppose que (i) la couche mince est totalement monocristalline (c'est-à-dire avec un effet de diffusion par les joints de grain inexistant ; on peut par exemple utiliser une couche obtenue par épitaxie sur un substrat parfaitement monocristallin) ; (ii) il n'y a pas d'influence de l'effet de l'oxydation éventuelle de la surface supérieure sur la résistivité (les mesures de résistivité peuvent se faire par exemple *in situ* dans une atmosphère inerte) ; (iii) on néglige la rugosité géométrique de surface en supposant que l'écart quadratique moyen (voir Annexe B) est inférieur à 2 nm.

Cas où le paramètre spéculaire p est unique

Nous avons modélisé la variation de la résistivité électrique d'une couche mince métallique en fonction du rapport d/λ (équation 11 du chapitre I), en considérant différentes valeurs du paramètre spéculaire p , *supposé le même pour les deux surfaces* ($p = p_1 = p_2$). Cette modélisation numérique, réalisée à l'aide d'un script Python donné en Annexe C, a donné les résultats montrés sur la Figure Rés1.

On remarque sur cette figure que, lorsque p diminue, le rapport ρ_F / ρ_t (et donc ρ_F) augmente, notamment pour les valeurs modérées de l'épaisseur d . A mesure que d devient importante, la courbe $\rho_F / \rho_t = f(d/\lambda)$ admet la droite $\rho_F / \rho_t = 1$ comme asymptote, et ce pour tout $p \geq 1$. Le cas $p = 1$ correspond à des réflexions de nature totalement spéculaire sur les surfaces limitant la couche, et $p = 0$ correspond à des réflexions de nature totalement diffuse ; pour cette valeur de p l'augmentation de la résistivité est beaucoup plus importante.

La variation nette de résistivité dans le modèle FS est donnée par : $\rho_F = \rho_F - \rho_I$. Pour étudier la variation relative de cette résistivité, nous avons représenté la fonction $\rho_F / \rho_I = f(d/\lambda)$ pour les mêmes valeurs du paramètre p ; le résultat est montré sur la **Figure Rés2**.



On constate que ρ_F / ρ_t est bien égal à zéro pour $p = 1$; puisque dans ce cas on a bien $\rho_F = \rho_t$. Ce qui signifie que la résistivité de la couche est égale à celle du volume lorsque les réflexions sur les surfaces se passent toutes de façon parfaitement spéculaire. On retrouve la même tendance d'augmentation de la résistivité ρ_F à mesure que p diminue, pour une valeur donnée de d/λ .

Prenons comme exemple le cas où $d/\lambda = 1,5$, et évaluons la variation ρ_F / ρ_t pour $p = 0,8$ et $p = 0$ (**Figure Rés2**). Les calculs donnent une augmentation relative de 30% de la résistivité ($\rho_F / \rho_t|_{p=0} = 30\%$) pour $p = 0$, et d'environ 5% lorsque $p = 0,8$: ($\rho_F / \rho_t|_{p=0,8} = 5\%$). Ces résultats montrent l'influence du paramètre spéculaire p sur la valeur de la résistivité d'une couche mince.

Examinons maintenant les deux cas limites suivants :

1. **Cas où $d/\lambda = 1$** , c'est-à-dire les valeurs de d/λ qui donnent $e^{-\frac{d}{\lambda}x} = 1$ dans l'équation (11). Nous avons vu que dans ce cas : $\rho_F = \rho_t \left[1 + \frac{\pi\lambda}{8d}(1-p) \right]$. En fait ces valeurs de d/λ sont celles qui donnent une valeur de l'intégrale de l'équation (11) égale à 0,25 (valeur trouvée en faisant $e^{-\frac{d}{\lambda}x} = 1$ et $p \cdot e^{-\frac{d}{\lambda}x} = 1$ dans cette équation).

Le calcul de cette intégrale inclus dans le programme Python confectionné, montre que la valeur minimale de d/λ (appelé $(d/\lambda)_m$) à partir de laquelle l'intégrale est égale à 0,25 varie avec la valeur de p , comme suit :

p	$(d/\lambda)_m$
0	33,6
0,3	33,15
0,5	33,0
0,8	32,0
0,9	31,3

Nous remarquons que lorsque p diminue, le rapport $(d/\lambda)_m$ augmente, ce qui suggère que l'épaisseur minimale à partir de laquelle on peut considérer la couche métallique comme

une couche épaisse régie non plus par l'équation générale (1) mais par l'équation (2), augmente.

Prenons quelques exemples de couches minces métalliques monocristallines, chacune caractérisée par une valeur donnée du libre parcours moyen λ . Les valeurs de λ utilisées sont données par D. Gall [46] à la température ambiante (*Room Temperature*) et sont donc notées λ_R .

Le *Tableau Rés 1* donne les valeurs de d_{th} obtenues pour quatre couches métalliques différentes (Ag, Cu, Au et Al).

Ce tableau montre que λ_R diminue quand on passe de Ag à Al, ce qui signifie que la diffusion des électrons de Al (principalement) par les phonons est beaucoup plus importante que celle des électrons des trois autres métaux. De plus, comme attendu, d_m diminue quand p augmente, restreignant l'application de l'équation (11) du modèle FS à des épaisseurs de couches minces plus grandes.

La variation de l'épaisseur d_m en fonction du paramètre p est représentée, pour les quatre couches métalliques, sur la *Figure Rés3*. On y remarque que ces courbes ont le même profil et présentent une légère pente négative. De manière générale, aux valeurs élevées de p sont associées des valeurs de d_m plus faibles ; ce qui suggère que les couches minces correspondantes de résistivités régies par le modèle FS ont des épaisseurs plus grandes remplissant la condition $d > d_m$.

C	m	λ_R (n)	d_m (n)	
Argent (Ag)	53,3		$p = 0$	1791
			$p = 0,3$	1767
			$p = 0,5$	1759
			$p = 0,8$	1706
			$p = 0,9$	1668
Cuivre (Cu)	39,9		$p = 0$	1341
			$p = 0,3$	1323
			$p = 0,5$	1317
			$p = 0,8$	1277
			$p = 0,9$	1249
Or (Au)	37,7		$p = 0$	1267
			$p = 0,3$	1250
			$p = 0,5$	1244
			$p = 0,8$	1206
			$p = 0,9$	1180
Aluminium (Al)	18,9		$p = 0$	635

		$p = 0,3$	626
		$p = 0,5$	624
		$p = 0,8$	605
		$p = 0,9$	592

Tableau Rés .1 : Détermination de la valeur d_{lim} pour 4 couches métalliques différentes

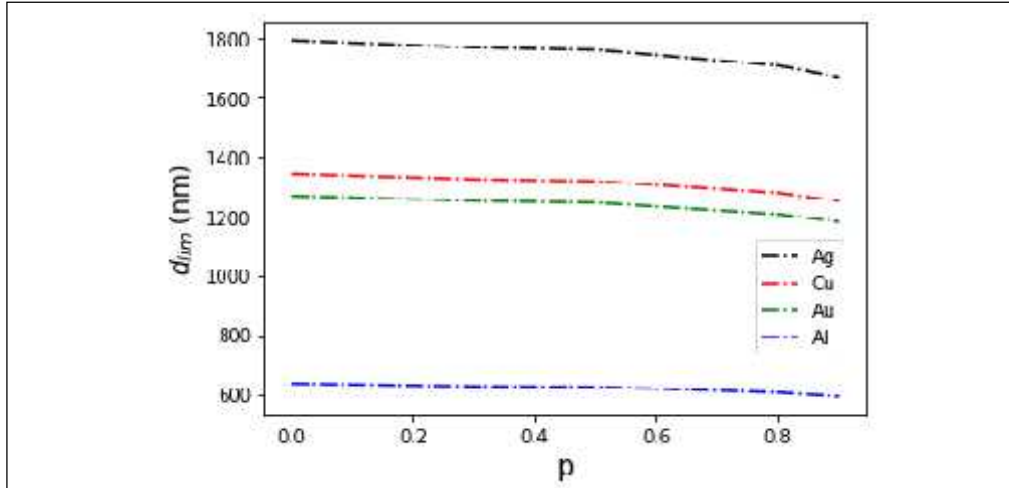


Figure Rés3 : Représentation de la variation de l'épaisseur minimale d_m en fonction du paramètre spéculaire pour 4 couches métalliques différentes.

2. **Cas où $d/\lambda \ll 1$** 1. L'équation (11) du Chap. II, se transforme en l'équation (13) du même chapitre, soit : $\rho_F / \rho_t \propto \left[\frac{3}{4} \left(\frac{1+p}{1-p} \right) k \left(l \frac{\lambda}{d} \right) \right]^{-1}$.

Dans ce cas, on ne peut plus négliger le terme $e^{-\left(\frac{d}{\lambda} x\right)}$ devant 1, mais on peut développer $e^{-\left(\frac{d}{\lambda} x\right)}$ et remplacer ce terme dans l'équation (11) en écrivant : $e^{-\left(\frac{d}{\lambda} x\right)} \approx 1/(1 + k)$. On obtient alors l'expression du rapport des résistivités sous la forme :

$$\rho_F / \rho_t \propto \left[1 - \frac{3}{2} \frac{\lambda}{d} (1-p) \frac{1}{1-p} \left(\frac{1}{x^3} - \frac{1}{x^5} \right) \frac{1 - e^{-\left(\frac{d}{\lambda} x\right)}}{\left(\frac{d}{\lambda} x\right)} d \right]^{-1} \propto \left[1 - \frac{3}{2} (1-p) \frac{1}{1-p + \frac{d}{\lambda} x} d \right]^{-1} \quad (1)$$

Un script Python a été également écrit pour calculer cette dernière intégrale et tracer $\rho_F / \rho_t = f(d/\lambda)$, puis nous avons comparé la courbe obtenue avec celle correspondant au rapport donné par l'équation (13) dans le cas $d/\lambda \ll 1$ (soit $\rho_F / \rho_t \propto \left[\frac{3}{4} \left(\frac{1-p}{1+p} \right) \frac{\lambda}{d} \left(l \frac{\lambda}{d} \right) \right]^{-1}$), et l'équation (11) générale FS, et ce pour $p = 0,5$. Le résultat est montré sur la Figure Rés4.

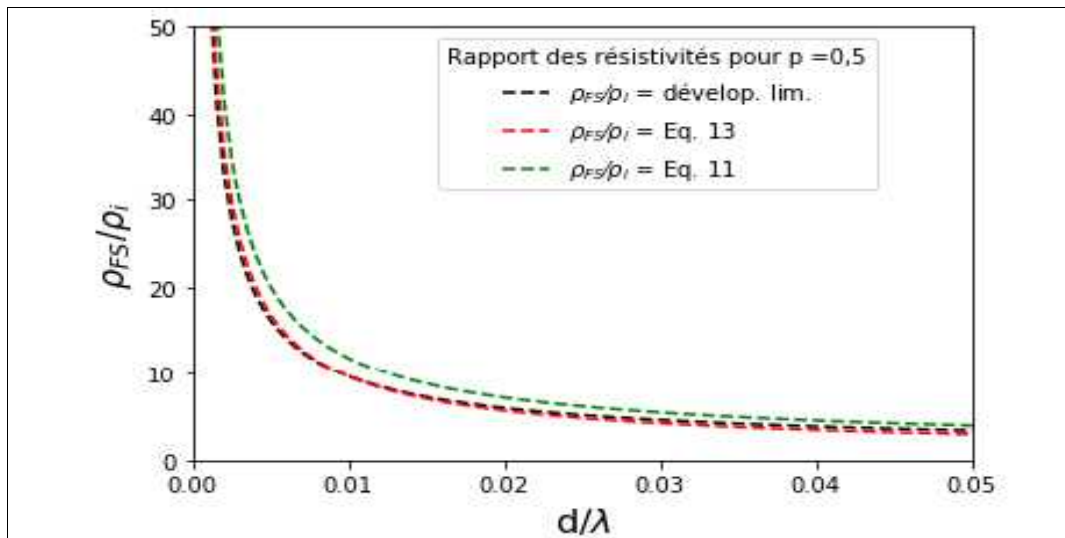


Figure Rés4 : Comparaison entre les variations de $\rho_F / \rho_i = f(d/\lambda)$ pour $d/\lambda \ll 1$, obtenues par le calcul de l'intégrale de l'équation (11) après développement limité (courbe noire), par l'équation approximative (13) (couleur rouge) et par l'équation générale FS (11) (courbe verte). Cas où $p = 0,5$.

En mode log-log, il est possible de mieux distinguer les différences entre les trois courbes de la figure précédente. C'est ce qu'on voit sur la *Figure Rés 5* où les courbes noire et rouge (résultant des expressions approximatives de $\rho_F / \rho_i = f(d/\lambda)$ pour $\frac{d}{\lambda} \ll 1$) se trouvent en dessous de celle (verte) tracée en considérant compte l'équation générale FS (11). Les courbes noire et rouge sont presque confondues pour les valeurs très faibles de d/λ .

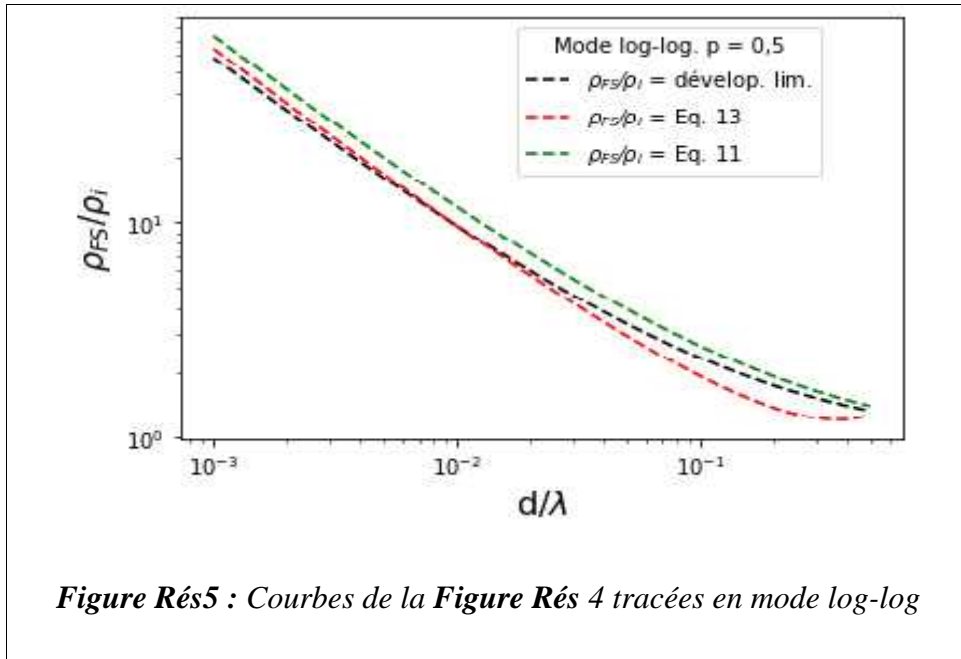


Figure Rés5 : Courbes de la **Figure Rés 4** tracées en mode log-log

En prenant une autre valeur $p = 0,9$, on obtient les courbes de la **Figure Rés 6**.

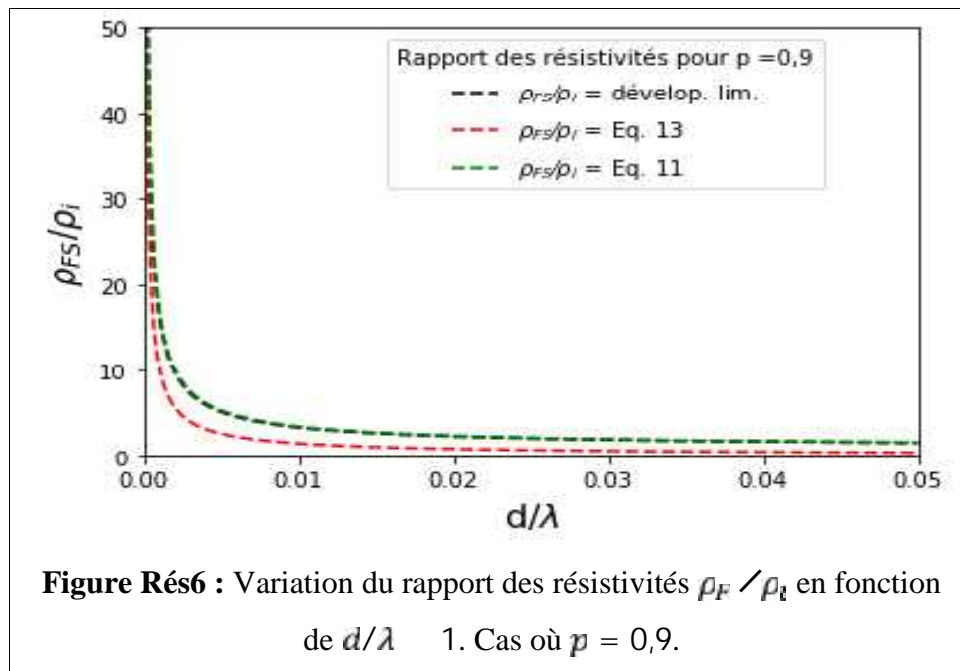


Figure Rés6 : Variation du rapport des résistivités ρ_F / ρ_i en fonction de d/λ 1. Cas où $p = 0,9$.

Dans ce dernier cas ($p = 0,9$), la superposition des deux courbes n'a vraiment lieu que pour les très faibles valeurs de d/λ , ce qui limite la validité de l'équation approximative (13). Les courbes noire et verte paraissent totalement confondues. Pour des valeurs plus élevées de d/λ , les courbes sont bien distinctes. En mode log-log (**Figure Rés7**), on confirme que les courbes verte et noire sont totalement confondues alors que la courbe rouge obtenue à

partir de l'équation (13) est bien distincte des deux autres ; elle est située sous ces courbes et s'en écarte pour des valeurs plus élevées de d/λ .

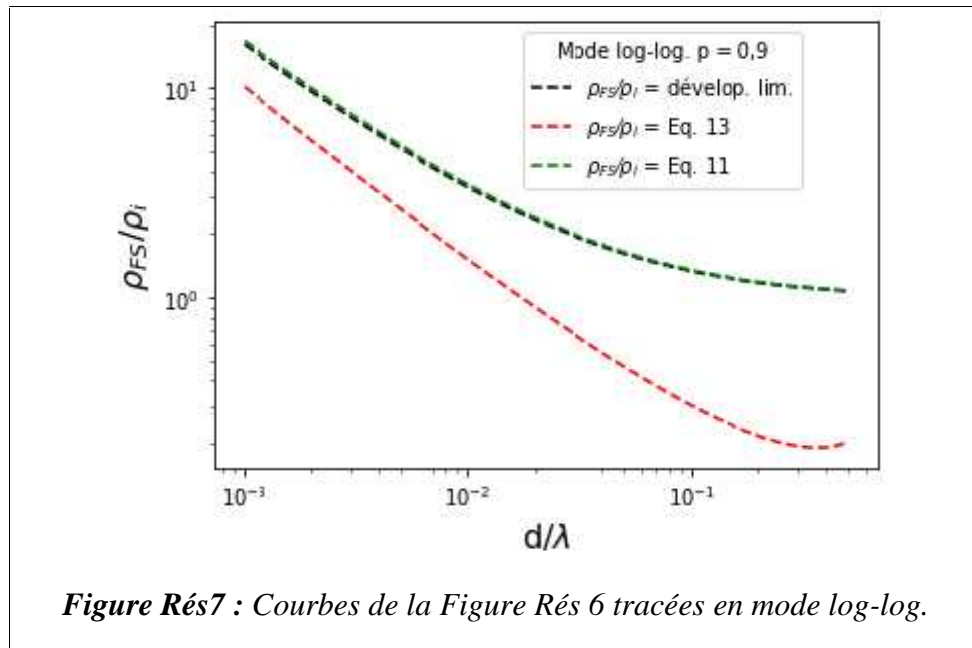


Figure Rés7 : Courbes de la Figure Rés 6 tracées en mode log-log.

Ce qui signifie que l'approximation basée sur l'équation (13) dans le domaine $\frac{d}{\lambda} \ll 1$ est en deçà de la réalité.

Cas où le paramètre spéculaire est différent pour les deux surfaces : $p_1 \neq p_2$

J. S. CHawla et D. Gall [33] ont montré que le rapport des résistivités : ρ_F / ρ_t s'écrit dans ce cas :

$$\frac{\rho_F}{\rho_t} = \left[1 - \frac{3\lambda}{4d} \int_0^{\infty} \left(\frac{1}{x^3} - \frac{1}{x^5} \right) \frac{2 \left[1 - p_1 p_2 e^{-\left(-\frac{d}{\lambda} x\right)} \right] \left[1 - e^{-\left(-\frac{d}{\lambda} x\right)} \right] - (p_1 + p_2) \left[1 - e^{-\left(-\frac{d}{\lambda} x\right)} \right]^2}{1 - p_1 p_2 e^{-\left(-2\frac{d}{\lambda} x\right)}} dx \right]^{-1} \quad (2)$$

Une forme approximative de l'équation (2) ci-dessus est obtenue pour les valeurs élevées de d/λ :

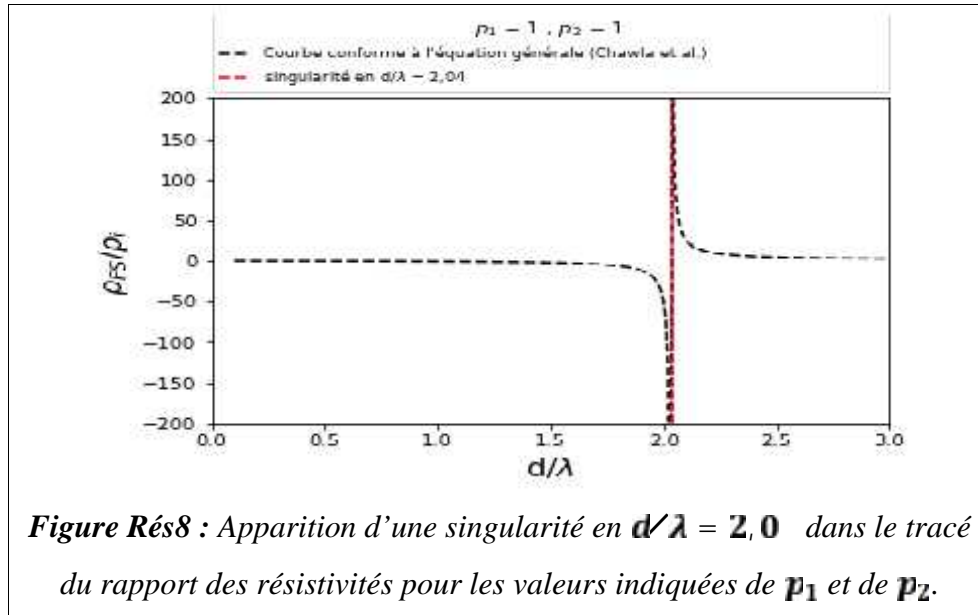
$$\rho_F / \rho_t \approx 1 + \frac{3}{8k} \left(1 - \frac{p_1 + p_2}{2} \right) \quad (3)$$

Nous avons représenté les deux formes de ρ_F / ρ_t , pour différentes valeurs du rapport $\frac{p_1 + p_2}{2}$.

$$\text{Posons } p = \frac{p_1 + p_2}{2}.$$

1. Cas où $\bar{p} = 1$

Exemple : $p_1 = 1$ et $p_2 = 1$. Le tracé $\rho_F / \rho_t = f\left(\frac{d}{\lambda}\right)$ montre qu'il existe une singularité au point $d/\lambda = 2,04$ (Figure Rés8).

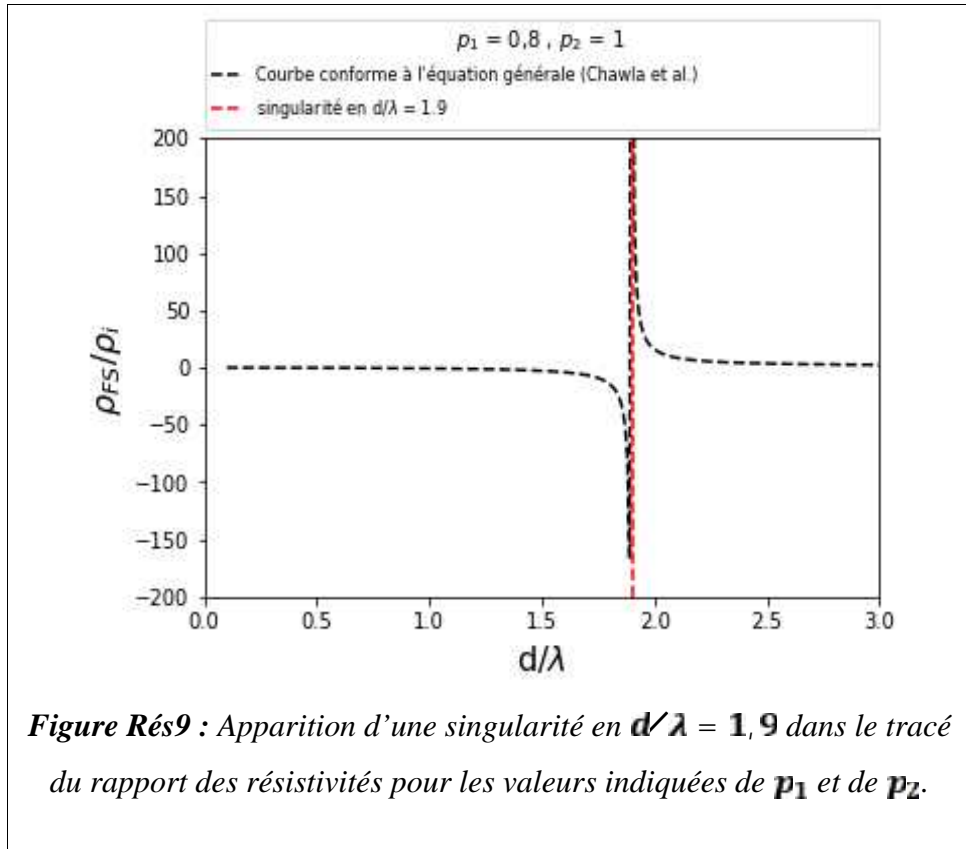


Nous avons également utilisé dans ce cas un script Python permettant le calcul de l'intégrale de l'équation (2) puis le tracé de la courbe. La courbe exploitable est celle qui correspond naturellement aux valeurs positives du rapport ρ_F / ρ_t , c'est-à-dire pour laquelle $d/\lambda > 2,04$. On remarque sur cette courbe que, conformément à la théorie, l'effet des surfaces fait que ρ_F / ρ_t augmente rapidement quand l'épaisseur de la couche diminue. Ceci est valable pour tous les cas que nous allons examiner dans ce qui suit.

2. Cas où $\bar{p} = 0,9$

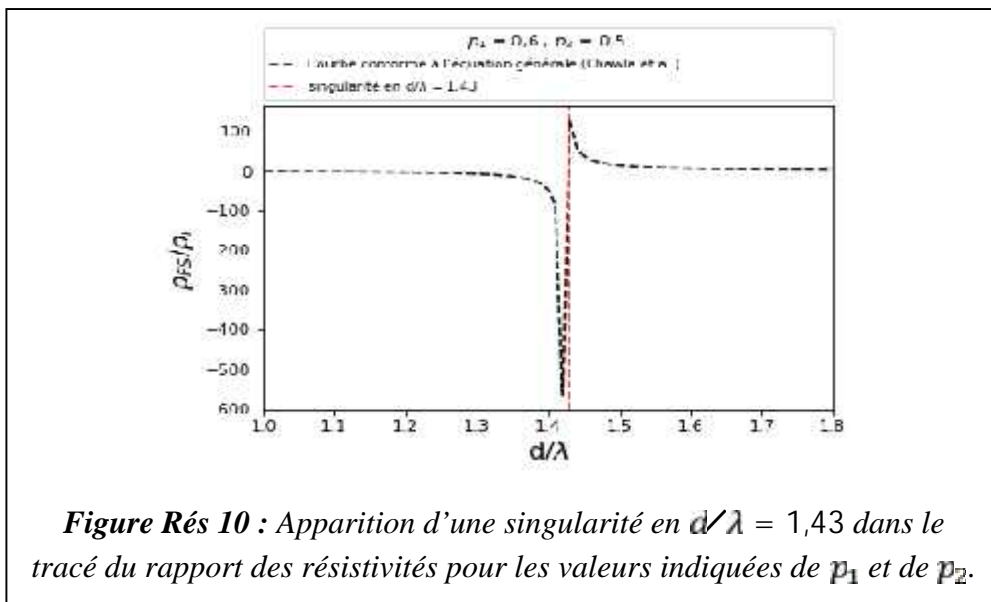
Exemple :

$p_1 = 0,8$ et $p_2 = 1$. Le tracé $\rho_F / \rho_t = f\left(\frac{d}{\lambda}\right)$ montre qu'il existe une singularité au point $d/\lambda = 1,9$ (Figure Rés9). L'équation (2) de Chawla n'est valable que pour les valeurs $d/\lambda > 1,9$. Par ailleurs, nous avons vérifié que toutes les autres valeurs possibles $0 < p_1 < 1$ et $0 < p_2 < 1$ vérifiant la condition $\bar{p} = 0,9$ donnaient la même singularité au point $d/\lambda = 1,9$.



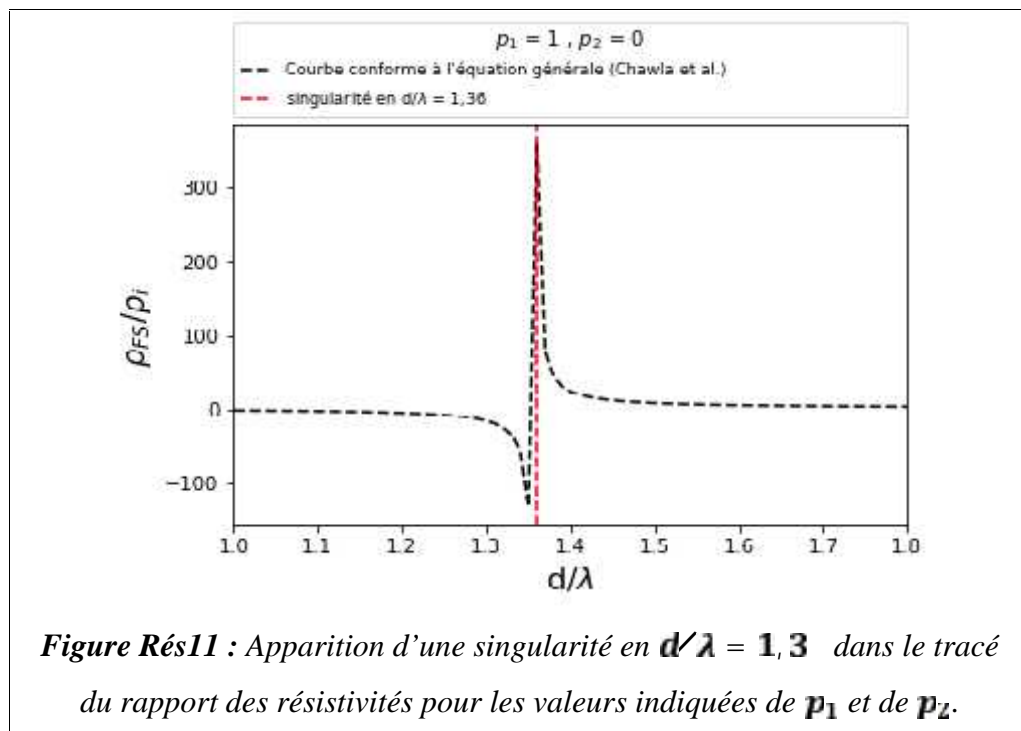
3. Cas où $\bar{p} = 0,5$.

Exemple : $p_1 = 0,6$ et $p_2 = 0,5$. La singularité est observée, dans ce cas, au point : $d/\lambda = 1,43$ (Figure Rés10). Par ailleurs, nous avons vérifié que toutes les autres valeurs possibles $0 < p_1 < 1$ et $0 < p_2 < 1$ vérifiant la condition $\bar{p} = 0,55$ donnaient la même singularité au point $d/\lambda = 1,43$.



4. Cas où $\bar{p} = 0,5$.

Exemple : $p_1 = 1$ et $p_2 = 0$. Le tracé $\rho_F / \rho_t = f\left(\frac{d}{\lambda}\right)$ montre qu'il existe une singularité au point $d/\lambda = 1,36$ (Figure Rés11). Par ailleurs, nous avons vérifié que toutes les autres valeurs possibles $0 \leq p_1 \leq 1$ et $0 \leq p_2 \leq 1$ vérifiant la condition $\bar{p} = 0,5$ donnaient la même singularité au point $d/\lambda = 1,36$. Nous avons vérifié que toutes les valeurs possibles de p_1 et de p_2 vérifiant $\frac{p_1 + p_2}{2} = 0,5$, donnaient également une singularité en $d/\lambda = 1,36$.



5. Cas où $\frac{p_1 + p_2}{2} = 0,3$.

Exemple : $p_1 = 0$ et $p_2 = 0,7$. Il existe une singularité au point $\frac{d}{\lambda} = 1,127$ (Figure Rés12).

Il en est de même pour toutes les valeurs possibles de p_1 et de p_2 vérifiant $\bar{p} = 0,3$.

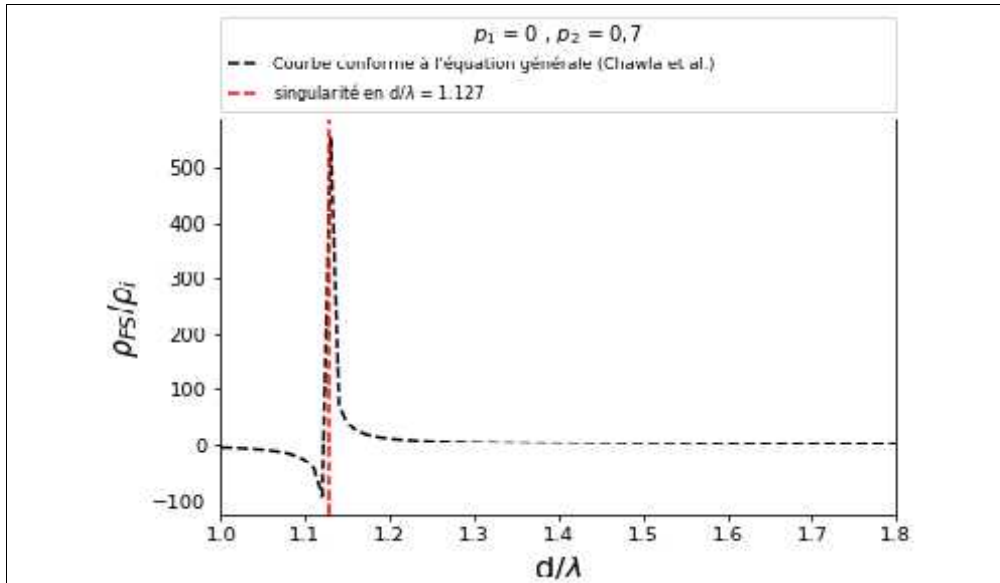


Figure Rés12 : Apparition d'une singularité en $d/\lambda = 1,1$ dans le tracé du rapport des résistivités pour les valeurs indiquées de p_1 et de p_2 .

Nous avons déterminé les singularités pour d'autres valeurs du rapport $p = 0,1$. Les résultats sont consignés dans le tableau ci-dessous.

\bar{p}	$(d/\lambda)_{si}$
0,10	0,637
0,05	0,480
0,08	0,580

Tableau Rés .2 : Détermination d'autres singularités

Etude des cas où $\frac{d}{\lambda} = 1$.

Les termes exponentiels dans l'intégrale de l'équation (2) de Chawla

$$I = \int_1^{\infty} \left(\frac{1}{x^3} - \frac{1}{x^5} \right)^2 \frac{[1 - p_1 p_2 e^{-\left(-\frac{d}{\lambda} x\right)}][1 - e^{-\left(-\frac{d}{\lambda} x\right)}] - (p_1 + p_2) [1 - e^{-\left(-\frac{d}{\lambda} x\right)}]^2}{1 - p_1 p_2 e^{-\left(-2\frac{d}{\lambda} x\right)}} dx$$

deviennent faibles devant 1. A l'aide de scripts Python que nous avons écrits, nous avons déterminé à partir de quelle valeur de d/λ (appelée $(d/\lambda)_{th}$), cette intégrale devient

constante (c'est-à-dire que pour $d/\lambda > (d/\lambda)_{\text{li}}$, les termes exponentiels $\ll 1$) Les résultats sont montrés dans le *Tableau Rés 3*.

Résultats :

$\bar{p} = (p_1+p_2)/2$	Valeur de I	Valeur du rapport ρ_F / ρ_t	$(d/\lambda)_{\text{li}}$
0,05	0,6	1,093	5,3
0,06	0,62	1,112	4,6
0,08	0,66	1,097	5,6
0,10	0,70	1,091	6,3
0,35	1,2	1,127	8,0
0,50	1,5	1,155	8,4
0,55	1,6	1,162	8,5
0,70	1,9	1,196	8,7
0,90	2,3	1,24	8,9
1,00	2,5	1,263	9,0

Tableau Rés .3 : Paramètres spécifiques d'une couche mince métallique en fonction du rapport $\bar{p} = (p_1+p_2)/2$.

Nous allons maintenant déterminer les limites de l'épaisseur d (soit d_{li}) de la couche mince pour laquelle l'équation (2) de Chawla est valable ; on donnera aussi l'épaisseur probable (d_p) de la couche mince associée : $d_{\text{si}} < d_p < d_{\text{li}}$. Le calcul sera fait pour quatre métaux différents composant la couche mince. Rappelons que cette équation s'écrit :

$$\frac{\rho_F}{\rho_t} \left[1 - \frac{3\lambda}{4d} \int_1^{\infty} \left(\frac{1}{x^3} - \frac{1}{x^5} \right) \frac{2 \left[1 - p_1 p_2 e^{-\left(-\frac{d}{\lambda} x\right)} \right] \left[1 - e^{-\left(-\frac{d}{\lambda} x\right)} \right] - (p_1 + p_2) \left[1 - e^{-\left(-\frac{d}{\lambda} x\right)} \right]^2}{1 - p_1 p_2 e^{-\left(-2\frac{d}{\lambda} x\right)}} dx \right]^{-1}$$

Nous avons utilisé pour cela le *Tableau Rés 3* ci-dessus et les valeurs de $(d/\lambda)_{\text{si}}$ qui donnent les singularités observées plus haut.

La limite inférieure de d (4^{ème} colonne du *Tableau Rés 4*) est calculée d'après les valeurs de $(d/\lambda)_{\text{si}}$ obtenues plus haut.

L'épaisseur d_p est donc celle d'une couche mince métallique définie ci-avant par son libre parcours moyen, pour laquelle l'équation (2) de Chawla est vérifiée.

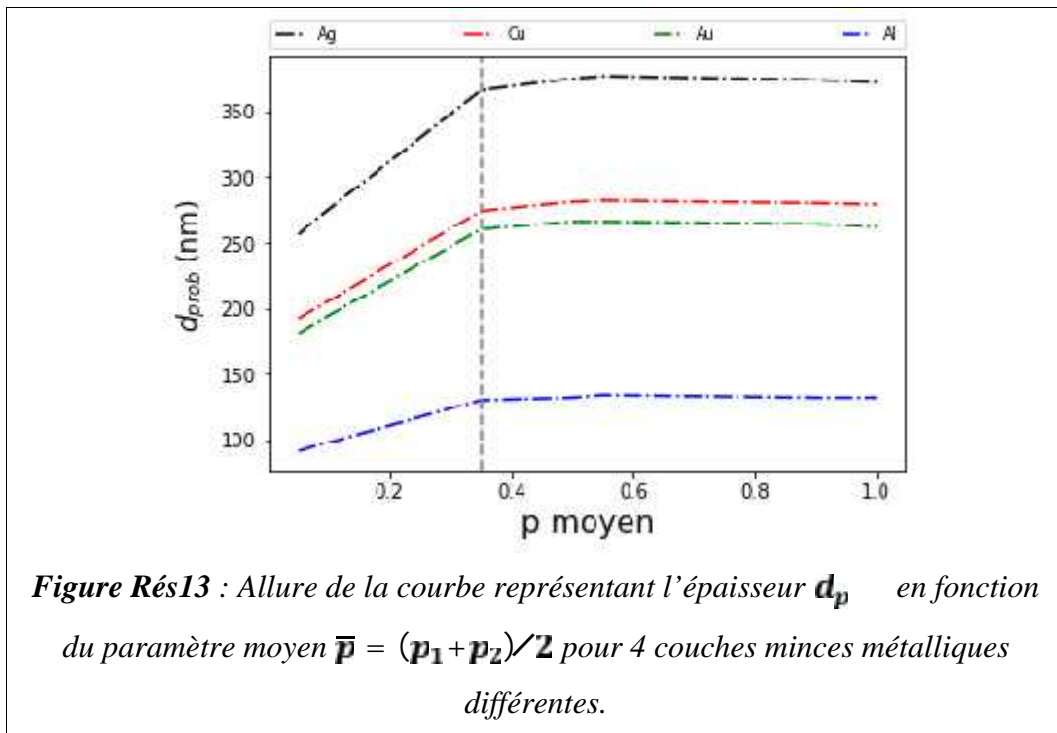
$Mét_i$	$\lambda_R (nm)$	Limites de d (nm)		Épaisseur probable de la couche mince d_p (nm)
		p	Limites	
Argent (Ag)	53,3	$p = 0,05$]25,282[257
		$p = 0,35$]60,426[366
		$p = 0,5$]72,447[375
		$p = 0,9$]100,474[374
		$p = 1,0$]108,480[372
Cuivre (Cu)	39,9	$p = 0,05$]19,211[192
		$p = 0,35$]45,319[274
		$p = 0,5$]54,335[281
		$p = 0,9$]75,355[280
		$p = 1,0$]80,359[279
Or (Au)	37,7	$p = 0,05$]18,200[182
		$p = 0,35$]42,302[260
		$p = 0,5$]51,317[266
		$p = 0,9$]71,335[264
		$p = 1,0$]77,393[316
Aluminium (Al)	18,9	$p = 0,05$]9,100[91
		$p = 0,35$]21,151[130
		$p = 0,5$]26,158[132
		$p = 0,9$]36,168[132
		$p = 1,0$]38,170[132

Tableau Rés .4 : Détermination des limites d'une couche mince dont le rapport ρ_F / ρ_I obéit à l'équation (2) de Chawla. λ_R est le libre parcours moyen à température ambiante (298 K).

Représentation graphique de l'épaisseur d_p en fonction de \bar{p} pour les quatre couches métalliques prises comme exemples.

On remarque sur la figure ci-dessous que l'épaisseur augmente quasi-linéairement avec \bar{p} pour les quatre types de couches jusqu'à la valeur $\bar{p} = 0,35$; au-delà, cette épaisseur

ne varie pratiquement pas et a pour valeur : pour Ag, $d_p^m = 375 \text{ nm}$; pour Cu, $d_p^m = 279 \text{ nm}$; pour Au, $d_p^m = 265 \text{ nm}$ et pour Al, $d_p^m = 131 \text{ nm}$.

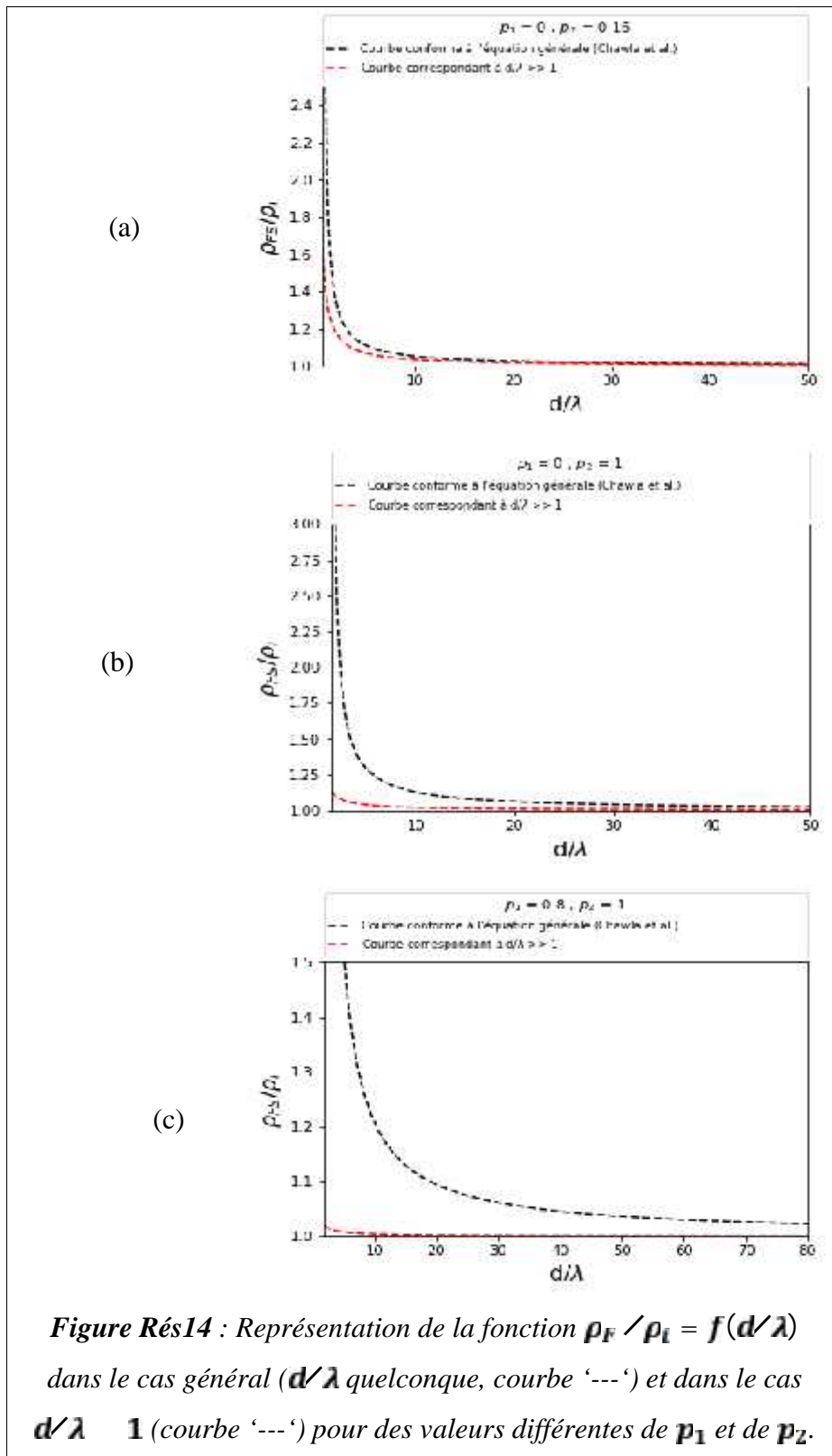


La partie linéaire croissante de chacune des quatre courbes a pour pente: $p_A = 363 \text{ nm} / \text{u.p}$; $p_C = 273 \text{ nm} / \text{u.p}$; $p_A = 260 \text{ nm} / \text{u.p}$ et $p_A = 130 \text{ nm} / \text{u.p}$.

Ces résultats montrent que le libre parcours moyen joue un rôle capital dans la variation de d_p avec p ; c'est le métal caractérisé par une valeur relativement importante de λ_R (soit Ag) qui a l'épaisseur la plus grande par rapport aux autres trois métaux, et pour laquelle l'équation (2) de Chawla est vérifiée. De plus cette, cette épaisseur dépend de p et elle devient à peu près constante au-delà de $p = 0,35$.

Le fait que l'épaisseur augmente avec p , c'est-à-dire avec un caractère de plus en plus spéculaire des deux surfaces en moyenne, est en conformité avec le fait que la résistivité de la couche mince (ρ_F) se rapproche de celle du volume (ρ_t).

Représentons maintenant la fonction $\rho_F / \rho_t = f(d/\lambda)$ en utilisant l'équation générale de Chawla (voir mémoire, équation 14) et son expression dans le cas $d/\lambda \ll 1$: $\rho_F / \rho_t = 1 + \frac{3}{8R} \left(1 - \frac{p_1 + p_2}{2}\right)$ (voir mémoire, équation 15). Ces deux fonctions sont représentées sur la Figure Rés 14 pour différentes valeurs de p_1 et de p_2 .



Les *Figures Rés(14a, 14b et 14c)* correspondent respectivement à : $p = 0,8$; $p = 0,5$ et $p = 0,9$. On remarque que la valeur $(d/\lambda)_0$ à partir de laquelle on peut considérer que les deux courbes se confondent (et leur valeur tend vers 1) est de plus grand à mesure que les

réflexions sur les deux surfaces de la couche mince sont plus spéculaires que diffuses (on voit bien cet effet sur la *Figure Rés14c*, où jusqu'à la valeur $d/\lambda = 100$, les deux courbes ne sont encore confondues).

Donc, la forme approximative (équation 15) de l'équation (14) de Chawla est valable à partir de valeurs différentes de $(d/\lambda)_c$ qui dépendent des valeurs individuelles des paramètres p_1 et p_2 ; cette forme approximative ne dépend pas simplement du rapport $p = \frac{p_1+p_2}{2}$. Ceci est certainement dû au fait que le produit $(p_1 p_2)$ et la somme $(p_1 + p_2)$ interviennent comme des facteurs pré-exponentiels dans l'équation générale (14) de Chawla.

Pour estimer les écarts entre les deux courbes, nous avons fixé la valeur de l'épaisseur de la couche mince rapportée au libre parcours à la valeur $d/\lambda = 20$, et avons calculé les rapports ρ_F / ρ_i relatifs dans les trois cas de la *Figure Rés14*. Les résultats sont consignés dans le tableau ci-après.

p_1	p_2	$(\rho_F / \rho_i) / (\rho_F / \rho_i)$
0	0,16	0,8 %
0	1,0	4,7 %
0,8	1	8,4 %

Tableau Rés .5 : Variation relative du rapport des résistivités pour différentes valeurs de p_1 et de p_2 et pour $d/\lambda = 2$

1 Effet de la rugosité de surface dans le modèle FS

C'est le modèle FS dans lequel Soffer [47] tient compte de la rugosité des deux surfaces, à travers les coefficients (de rugosité) r_1 et r_2 rapportés à la longueur d'onde de Fermi (voir paragraphe 2 du chapitre 3).

Sur la *Figure Rés 15*, nous avons porté le rapport ρ_S / ρ_i en fonction de d/λ pour différentes rugosités r_1 et r_2 , choisies dans l'intervalle $r_1 = r_2$ et $r_1 \neq r_2$. Le cas $r_1 \neq r_2$ signifie qu'une surface est beaucoup plus rugueuse que l'autre. Nous avons fixé une valeur du coefficient de rugosité ($r_1 = 10$) et avons fait varier la valeur de l'autre rugosité r_2 entre 0,01 et 10. Nous remarquons sur cette figure que toutes les courbes admettent comme asymptote suivant l'axe vertical la droite verticale $d/\lambda = 0,02$, quand d/λ devient très faible

et la droite horizontale $\rho_S / \rho_t = 1$ pour les valeurs élevées de d/λ . De plus, à mesure que r_2 varie de 0,01 à 10, le rapport ρ_S / ρ_t augmente légèrement pour les valeurs $0,02 < d/\lambda < 4$; par contre les courbes relatives à $r_2 = 0,5$; $r_2 = 2$ et $r_2 = 10$ semblent confondues. Afin de mieux distinguer les différences entre ces courbes, nous les avons tracées en mode log-log. Le résultat est montré sur la *Figure Rés 16*.

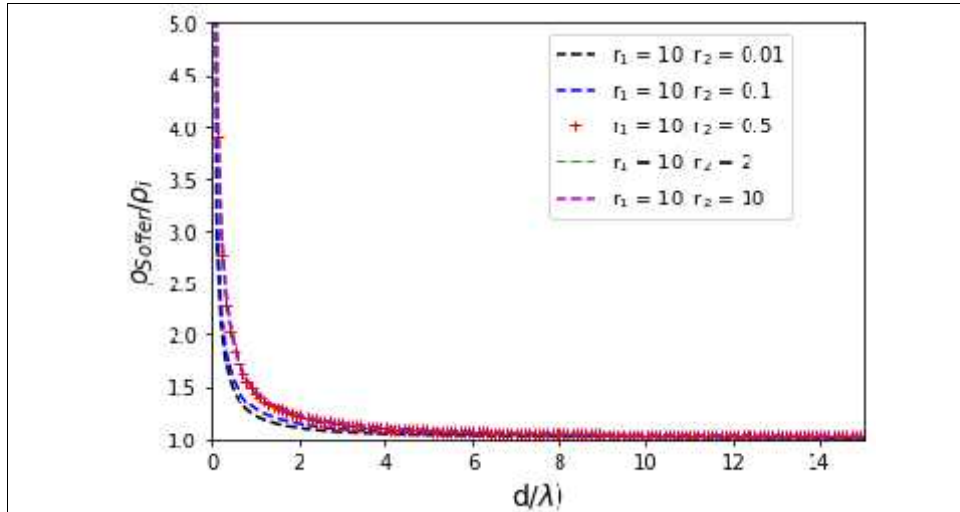


Figure Rés15 : Variation de ρ_S / ρ_t en fonction de d/λ pour différentes valeurs des rugosités des deux surfaces de la couche mince.

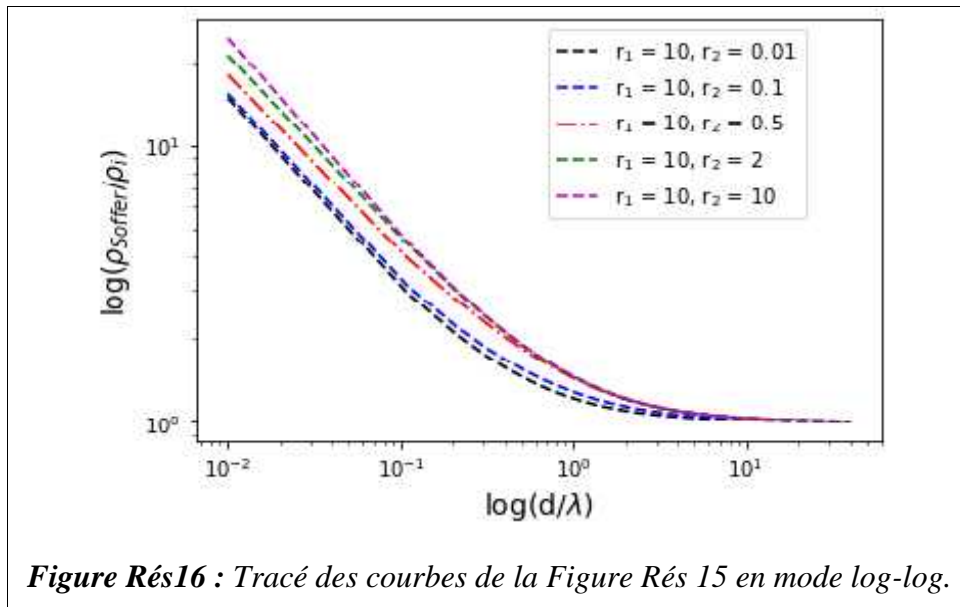


Figure Rés16 : Tracé des courbes de la Figure Rés 15 en mode log-log.

La *Figure Rés16* montre des courbes plus distinctes de comportement quasi-linéaire sur plus d'une décade, mais dans le domaine des faibles valeurs de d/λ . On y remarque aussi

que pour $d/\lambda = 10$, les cinq courbes paraissent confondues. Cela signifie que l'effet de la rugosité n'est remarquable que pour les couches très minces, d'après cette théorie.

De plus, la surface la plus rugueuse ($r_1 = 10; r_2 = 10$) est caractérisée par le rapport des résistivités ρ_S / ρ_t le plus élevé et ce, dans une large gamme de valeurs de d/λ (entre environ 0,01 et 4).

A titre d'exemple, comparons les courbes correspondant aux couples ($r_1 = 10; r_2 = 10$) et ($r_1 = 10; r_2 = 0,01$), pour deux valeurs constantes de ρ_S / ρ_t :

- ✓ Si $\rho_S / \rho_t = 10$, alors $\begin{cases} d/\lambda = 0,036, \text{ pour } r_1 = 10; r_2 = 10 \\ d/\lambda = 0,018, \text{ pour } r_1 = 10; r_2 = 0,01 \end{cases}$
- ✓ Si $\rho_S / \rho_t = 3$, alors $\begin{cases} d/\lambda = 0,21, \text{ pour } r_1 = 10; r_2 = 10 \\ d/\lambda = 0,105, \text{ pour } r_1 = 10; r_2 = 0,01 \end{cases}$

Conclusion : En fixant une valeur du rapport des résistivités et une des valeurs de la rugosité (ici $r_1 = 10$), on voit que dans les deux exemples ci-dessus, une rugosité 1000 fois plus grande de la deuxième surface se traduit par une épaisseur apparente de la couche mince deux fois plus grande (on passe de $d_1 = 0,018\lambda$ pour $r_2 = 0,01$, à $d_2 = 0,036\lambda = d_1/2$ pour $r_2 = 10$ pour le premier exemple ; il en est de même pour le second). Nous avons consigné dans le *Tableau Rés 6* les valeurs de $l_t (\rho_S / \rho_t)$ pour différentes valeurs de $l_t (d/\lambda)$ avec $r_1 = 10$, et pour différentes valeurs de r_2 .

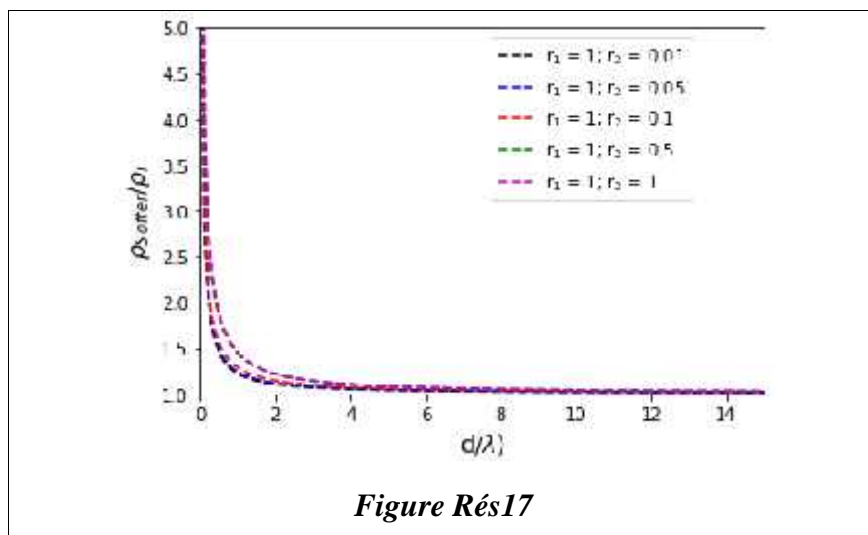
$l_t (d/\lambda)$	$r_2 = 1$	$r_2 = 1$	$r_2 = 0,2$	$r_2 = 0,0$	$r_2 = 0,0$
1,0	0,01659	0,01649	0,01435	0,00921	0,00826
0,8	0,02660	0,02643	0,02296	0,01469	0,01317
0,6	0,04284	0,04257	0,03688	0,02350	0,02106
0,4	0,06889	0,06842	0,05895	0,03763	0,03384
0,2	0,10867	0,10785	0,09202	0,05994	0,05451
0,0	0,16500	0,16352	0,13772	0,09393	0,08696
- 0,2	0,23872	0,23596	0,19637	0,14272	0,13474
- 0,4	0,32896	0,32368	0,26768	0,20807	0,19971
- 0,6	0,43383	0,42391	0,35138	0,29000	0,28178
- 0,8	0,5511	0,53346	0,44712	0,38725	0,37951
- 1,0	0,67859	0,64966	0,55423	0,49790	0,49078
- 1,2	0,81409	0,77091	0,67166	0,61981	0,61335

- 1,4	0,95540	0,89644	0,79800	0,75086	0,74504
- 1,6	1,10003	1,02575	0,93148	0,88891	0,88368
- 1,8	1,24519	1,15782	1,06990	1,03164	1,02694
- 2,0	1,38802	1,29084	1,21057	1,17637	1,17217
- 2,2	1,52601	1,42239	1,35053	1,32023	1,31650
- 2,4	1,65720	1,55005	1,48699	1,46047	1,4572
- 2,6	1,78041	1,67187	1,61765	1,59482	1,59200
- 2,8	1,89518	1,78667	1,74100	1,72172	1,71932
- 3,0	2,00169	1,89403	1,85631	1,84034	1,83835

Tableau Rés .6 : Valeurs de u (ρ_s / ρ_t) pour différentes valeurs de u (d/λ). Les rugosités sont telles que $r_1 = 1 = c_1$ et r_2 variable.

Nous remarquons que pour chacune des valeurs de d telle que $0,2 \leq u$ (d/λ) $\leq 1,0$, la valeur de u (ρ_s / ρ_t) double pratiquement quand r_2 passe de 0,01 à 10.

Fixons maintenant $r_1 = 1 = c_1$ et faisons varier la rugosité r_2 . On choisira les valeurs $r_2 = 0,01; 0,05; 0,1; 0,5; 1$ et traçons $\rho_s / \rho_t = f(d/\lambda)$ en mode linéaire puis en mode log-log, comme dans le cas précédent. Les résultats sont montrés sur les figures 17 et 18.



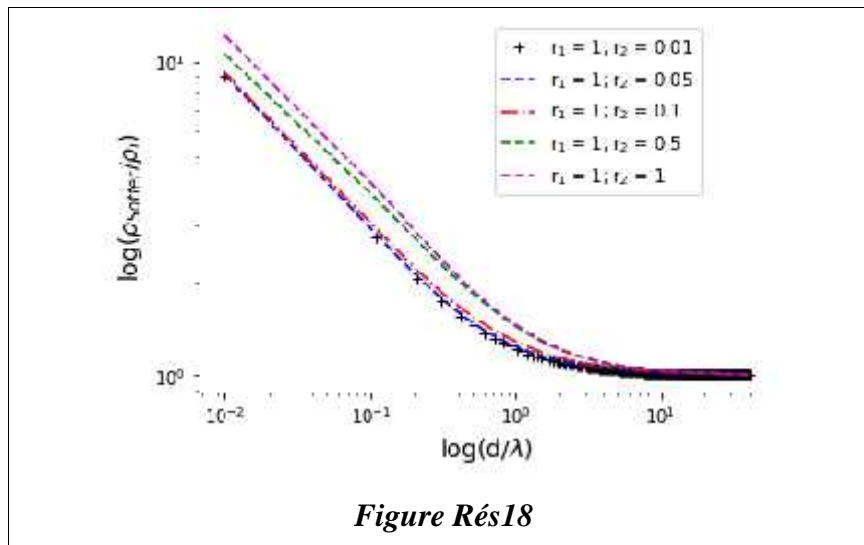


Figure Rés18

Des remarques similaires peuvent être faites sur ces figures, comme cela a été fait précédemment.

Dans ce cas, nous avons également toutes les courbes qui admettent comme asymptote suivant l'axe vertical la droite $d/\lambda = 0,02$, quand d/λ devient très faible et la droite $\rho_s / \rho_t = 1$ pour les valeurs élevées de d/λ . De plus, à mesure que r_2 varie de 0,01 à 1, le rapport ρ_s / ρ_t augmente légèrement pour les valeurs $0,02 < d/\lambda < 4$; mais les courbes relatives à $r_2 = 0,01$, $r_2 = 0,05$ sont totalement confondues. Celle relative à $r_2 = 0,1$ est très de ces deux dernières. En mode log-log, toutes les courbes présentent sur deux décades une variation linéaire; les courbes relatives à $r_2 = 0,5$ et $r_2 = 1$ sont distinctes des trois autres avec des pentes relativement plus importantes. Il semble que dans le cas étudié ($r_1 = 1$, et $0,01 \leq r_2 \leq 1$), la rugosité n'influe pas beaucoup sur l'évolution de la résistivité de la couche mince ρ_s si r_2 est faible. Lorsque r_2 se rapproche de $r_1 = 1$, on constate une évolution de ρ_s plus ou moins importante.

Néanmoins, comme dans le cas étudié précédemment ($r_1 = 10$), là aussi le cas ($r_1 = 1; r_2 = 1$) est caractérisé par un rapport des résistivités ρ_s / ρ_t le plus élevé et ce, dans une large gamme de valeurs de d/λ (entre environ 0,02 et 4). A titre d'exemple, comparons les courbes correspondant aux couples ($r_1 = 1; r_2 = 1$) et ($r_1 = 1; r_2 = 0,01$), pour deux valeurs constantes de ρ_s / ρ_t :

$$\checkmark \text{ Si } \rho_s / \rho_t = 3, \text{ alors } \begin{cases} d/\lambda = 0,2 \text{ pour } r_1 = 1; r_2 = 1 \\ d/\lambda = 0,1 \text{ pour } r_1 = 1; r_2 = 0,01 \end{cases}$$

✓ Si $\rho_S / \rho_t = 8$, alors $\begin{cases} d/\lambda = 0,026 \text{ pour } r_1 = 1; r_2 = 1 \\ d/\lambda = 0,013 \text{ pour } r_1 = 10; r_2 = 0,01 \end{cases}$

On voit là également sur ces deux exemples, que lorsque la rugosité est multipliée par 100 (on passe de $r_2 = 0,01$ à $r_2 = 1$) et pour la même valeur de ρ_S / ρ_t (c'est-à-dire de ρ_S), l'épaisseur *apparente* de la couche mince est multipliée par 2. Ces résultats sont similaires à ceux obtenus plus haut dans le cas $r_1 = 10$ et r_2 variable, sauf que le doublement dans ce dernier cas se fait pour une rugosité 1000 fois plus élevée.

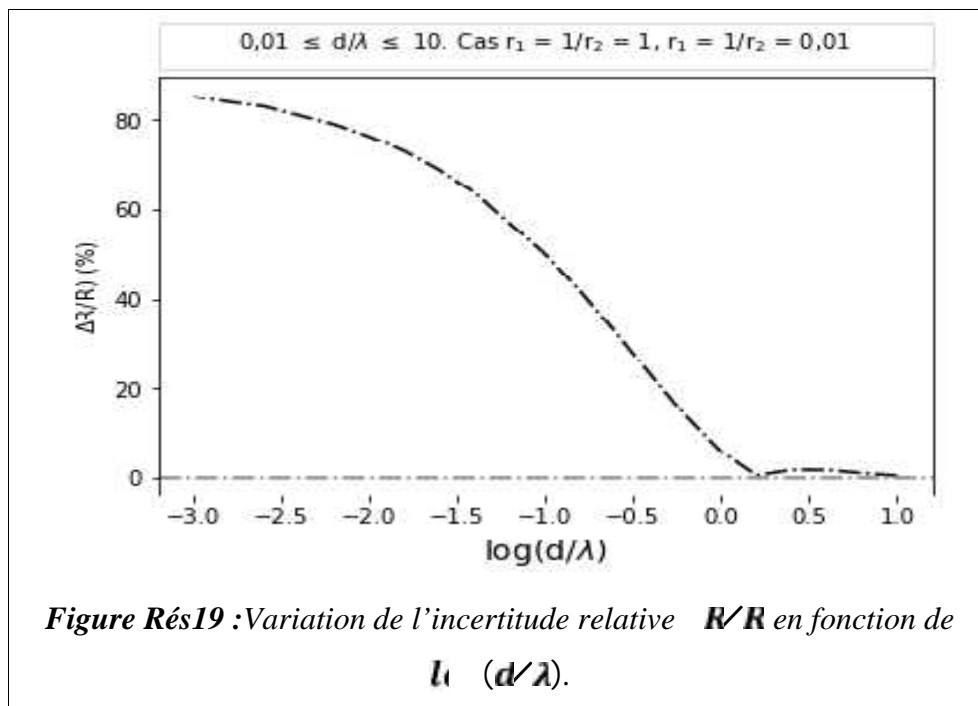
Pour mieux illustrer la relation entre $(\rho_S / \rho_t)_{r_2=1}^{r_1=1}$ et $(\rho_S / \rho_t)_{r_2=0,0}^{r_1=1}$, nous avons -d'une part- tracé la variation relative $R/R = f[l_u(d/\lambda)]$, et d'autre part tracé $(\rho_S / \rho_t)_{r_2=1}^{r_1=1} = f[(\rho_S / \rho_t)_{r_2=0,0}^{r_1=1}]$. Ces résultats sont montrés, respectivement, sur les figures 19 et 20 (la Figure Rés 20 montre également d'autres exemples avec différentes valeurs du couple (r_1, r_2)).

Sur la Figure Rés19 (représentation de l'incertitude relative $R/R = f[l_u(d/\lambda)]$), $R = \left| 2(\rho_S / \rho_t)_{r_2=0,0}^{r_1=1} - (\rho_S / \rho_t)_{r_2=1}^{r_1=1} \right|$, où ici $(\rho_S / \rho_t)_{r_2=0,0}^{r_1=1}$ est la valeur calculée selon l'équation de Soffer (équation 18, chapitre 3) et prise dans le tableau correspondant N°6, et $(\rho_S / \rho_t)_{r_2=1}^{r_1=1}$ la valeur calculée selon la même équation et donnée dans la colonne 1 du tableau N°6, et $R = (\rho_S / \rho_t)_{r_2=1}^{r_1=1}$. Remarque : Les valeurs déterminées et consignées dans les Tableaux Rés 5 et 6 sont identiques à celles données par Sambles et Elsom [42].

$l_u(d/\lambda)$	$r_2 = 1$	$r_2 = 0,5$	$r_2 = 0,2$	$r_2 = 0,1$	$r_2 = 0,0$	$r_2 = 0,0$	$r_2 = 0,0$
1,0	0,01639	0,01608	0,01424	0,01120	0,00911	0,00829	0,00816
0,8	0,02626	0,02576	0,02279	0,01788	0,01453	0,01321	0,01300
0,6	0,04229	0,04146	0,03660	0,02863	0,02323	0,02112	0,02079
0,4	0,06795	0,06656	0,05849	0,04566	0,03719	0,03391	0,03340
0,2	0,10703	0,10463	0,09123	0,07159	0,05921	0,05451	0,05378
0,0	0,16205	0,15777	0,13633	0,10888	0,09267	0,08665	0,08572
- 0,2	0,23321	0,22563	0,19385	0,15945	0,14050	0,13361	0,13255
- 0,4	0,31845	0,30565	0,26300	0,22412	0,20398	0,19679	0,19570
- 0,6	0,41405	0,39420	0,34254	0,30218	0,28227	0,27526	0,27420
- 0,8	0,51551	0,48764	0,43049	0,39123	0,37257	0,36606	0,36507

- 1,0	0,61863	0,58285	0,52399	0,48765	0,47082	0,46498	0,46410
- 1,2	0,72019	0,67735	0,61980	0,58739	0,57267	0,56759	0,56682
- 1,4	0,81813	0,76942	0,71510	0,68699	0,67443	0,67011	0,66946
- 1,6	0,91152	0,85813	0,80789	0,78401	0,77352	0,76991	0,76937
- 1,8	1,00020	0,94317	0,89714	0,87713	0,86849	0,86554	0,86509
- 2,0	1,08449	1,02467	0,98256	0,96590	0,95886	0,95646	0,95610
- 2,2	1,16497	1,10305	1,06431	1,05045	1,04474	1,04282	1,04253
- 2,4	1,24229	1,17879	1,14284	1,13124	1,12662	1,12507	1,12483
- 2,6	1,31707	1,25240	1,21868	1,20886	1,20509	1,20384	1,20365
- 2,8	1,38986	1,32431	1,29234	1,28390	1,28080	1,27978	1,27963
- 3,0	1,46111	1,39491	1,36428	1,35691	1,35431	1,35347	1,35335

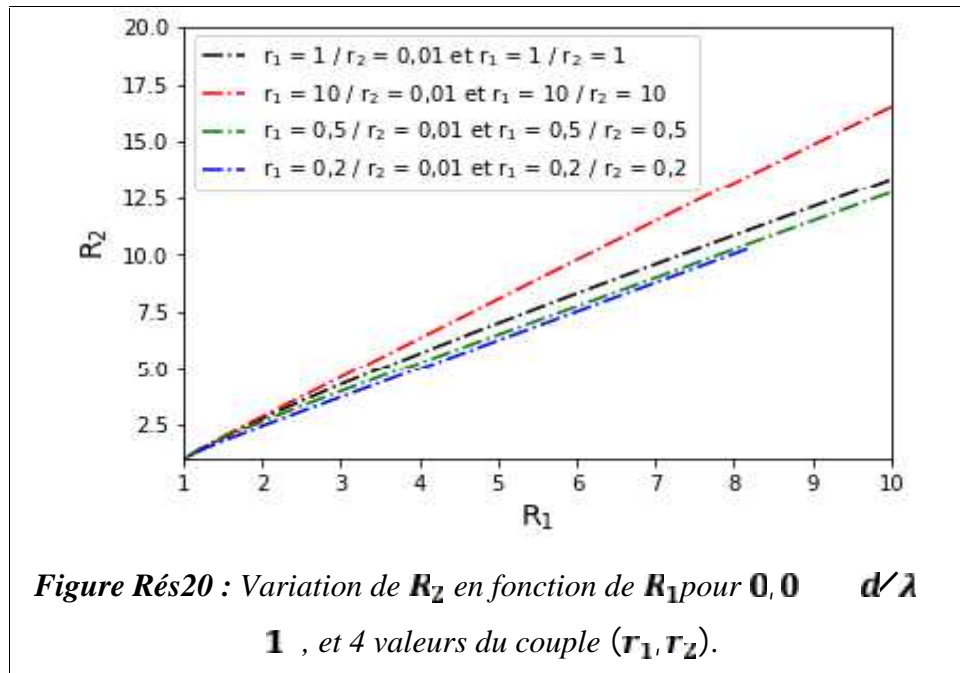
Tableau Rés .7 : Valeurs de u (ρ_s / ρ_t) pour différentes valeurs de u (d/λ). Les rugosités sont telles que $r_1 = 1 = c_1$ et r_2 variable.



La ligne horizontale en gris (-.-.-) en $y = 0$, montre que cette incertitude est voisine de zéro pour $0,2 \leq u(d/\lambda) \leq 1$, c'est-à-dire pour $1,58 \leq d/\lambda \leq 10$. En dehors de cet intervalle de valeurs de d/λ , cette incertitude est décroissante.

$$\text{Posons } R_1 = \left(\rho_s / \rho_t \right)_{r_1=0,2;0,5;1;1}^{r_2=0,0} \text{ et } R_2 = \left(\rho_s / \rho_t \right)_{r_1=0,2;0,5;1;1}^{r_2=0,2;0,5;1;1} .$$

Le tracé de $R_2 = f(R_1)$, pour $0,01 \leq d/\lambda \leq 10$ est représenté sur la *Figure Rés 20*, où on découvre que cette courbe est une droite dans chacune des quatre différentes situations.



On peut donc écrire : $R_2 = C \cdot R_1$, où C est la pente donnée pour chaque droite dans le tableau ci-dessous.

R_1	R_2	C
$(s / i)_{r_1=0,2}^{r_2=0,0}$	$(s / i)_{r_1=0,2}^{r_2=0,2}$	1,10
$(s / i)_{r_1=0,5}^{r_2=0,0}$	$(s / i)_{r_1=0,5}^{r_2=0,5}$	1,07
$(s / i)_{r_1=1}^{r_2=0,0}$	$(s / i)_{r_1=1}^{r_2=1}$	1,20
$(s / i)_{r_1=1}^{r_2=0,0}$	$(s / i)_{r_1=1}^{r_2=1}$	1,50

Tableau Rés .8 : Valeur de la pente C de la droite $R_2 = f(R_1)$ pour différentes valeurs du couple (r_1, r_2) et pour $0,01 \leq d/\lambda \leq 10$

On constate, comme attendu, que lorsque la rugosité d'une des surfaces augmente (r_1), la pente C augmente.

A titre d'exemple, une couche mince dont les deux surfaces sont caractérisées par le couple $(r_1; r_2) = (1; 1)$ aura une résistivité **1,2** fois plus importante que la même couche caractérisée par le couple $(r_1; r_2) = (1; 0,01)$. De même, une couche mince dont les deux surfaces sont caractérisées par le couple $(r_1; r_2) = (10; 10)$ aura une résistivité **1,5** fois plus importante que la même couche caractérisée par le couple $(r_1; r_2) = (10; 0,01)$.

Maintenant, on s'intéresse à la représentation de la variation de la résistivité de la couche mince (par rapport à la résistivité de volume ρ_v), due à l'effet de la rugosité des deux surfaces, en fonction de d/λ . Cette variation de la résistivité est notée ρ_S et elle est donnée par : $\rho_S = \rho_S - \rho_v$. Les paramètres variables sont les rugosités r_1 et r_2 des deux surfaces de la couche mince. Le tracé se fera pour quatre couches métalliques des métaux Ag, Cu, Au et Al.

1. $r_1 = 0,5$; $r_2 = 0,01$; $\rho_v = 1$

Les Figures Rés 21 et 22 montrent la variation de ρ_S avec d/λ pour les quatre couches minces métalliques, tracée en mode linéaire et en mode log-log, respectivement dans les cas $(r_1, r_2) = (0,5; 0,01)$ et $(r_1, r_2) = (0,5; 10)$.

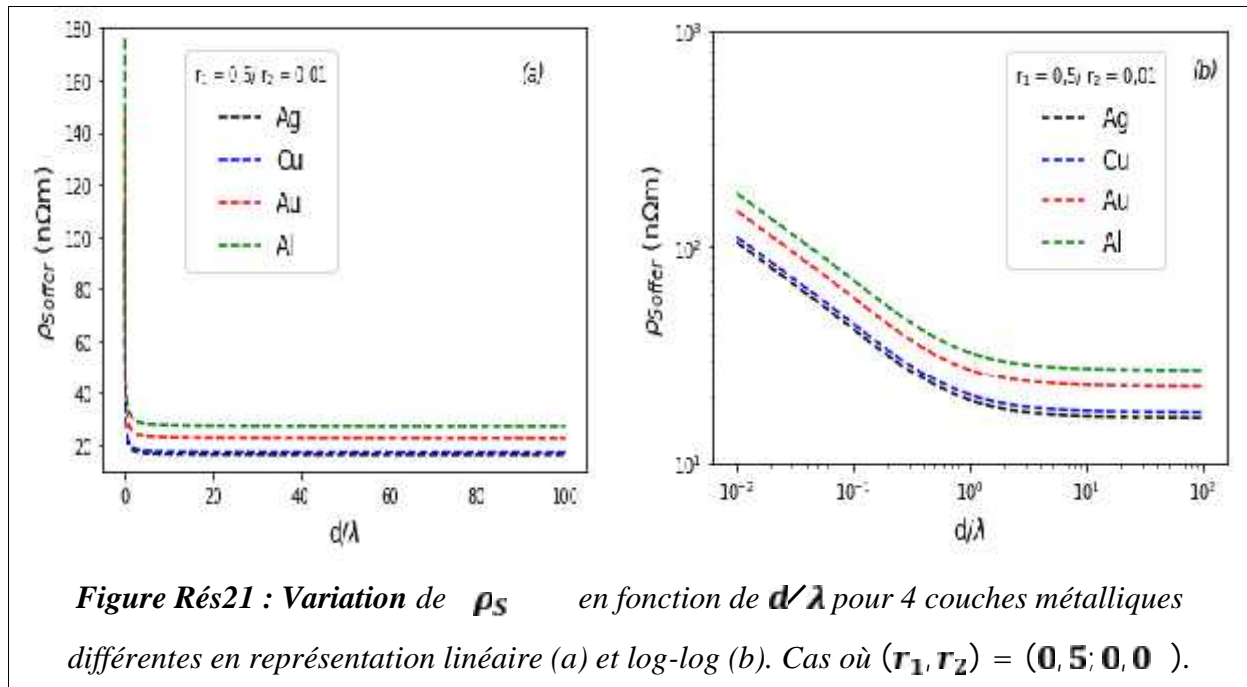


Figure Rés21 : Variation de ρ_S en fonction de d/λ pour 4 couches métalliques différentes en représentation linéaire (a) et log-log (b). Cas où $(r_1, r_2) = (0,5; 0,01)$.

Ces courbes montrent toutes une évolution identique de la variation de résistivité ; ρ_S diminue rapidement lorsque l'épaisseur augmente et sature à peu près pour

$d/\lambda = 10$. Quand $d/\lambda = 1$, ρ_S augmente rapidement pour atteindre des valeurs élevées (on le voit bien sur la représentation log-log).

On remarque que la courbe relative à Ag (---) est presque confondue avec celle relative à Cu (---). De plus, la courbe relative à Al (---) est celle qui présente la variation ρ_S la plus élevée, cela est dû au fait que $\rho_t(\text{Al}) > \rho_t(\text{Cu}) > \rho_t(\text{Ag}) > \rho_t(\text{Au})$ (à $T = 298 \text{ K}$). Néanmoins, les quatre courbes ont la même allure.

La comparaison entre les *Figures Rés 21* et *22*, montre que si les courbes conservent pratiquement la même allure, on constate que le fait d'augmenter la rugosité d'une surface (r_2 passe de 0,01 à 10) et de maintenir la rugosité de l'autre surface à la même valeur ($r_1 = 0,5$), induit une augmentation non négligeable de la résistivité de la couche mince correspondante.

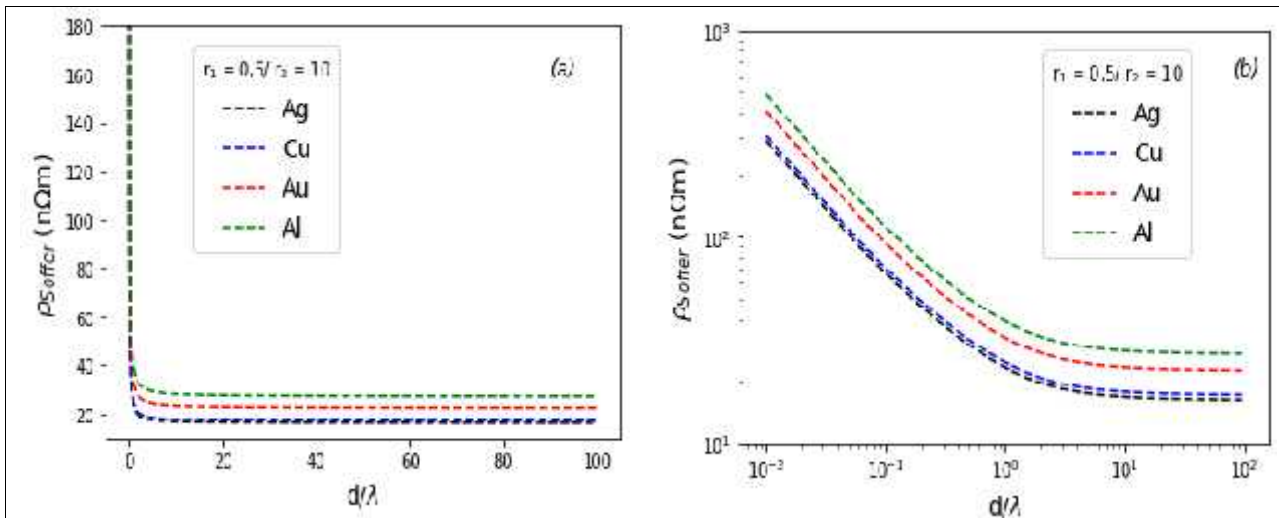


Figure Rés22 : Variation de ρ_S en fonction de d/λ pour 4 couches métalliques différentes en représentation linéaire (a) et log-log (b). Cas où $(r_1, r_2) = (0,5; 1)$.

2. $r_1 = 1 = c$ et $r_2 = 0,0 ; 2$

Dans ce cas, les résultats sont montrés sur les figures 23 et 24, respectivement en mode linéaire et log-log. Ils concernent comme plus haut, la représentation des cas $(r_1, r_2) = (1; 0,01)$ et $(r_1, r_2) = (1; 2)$.

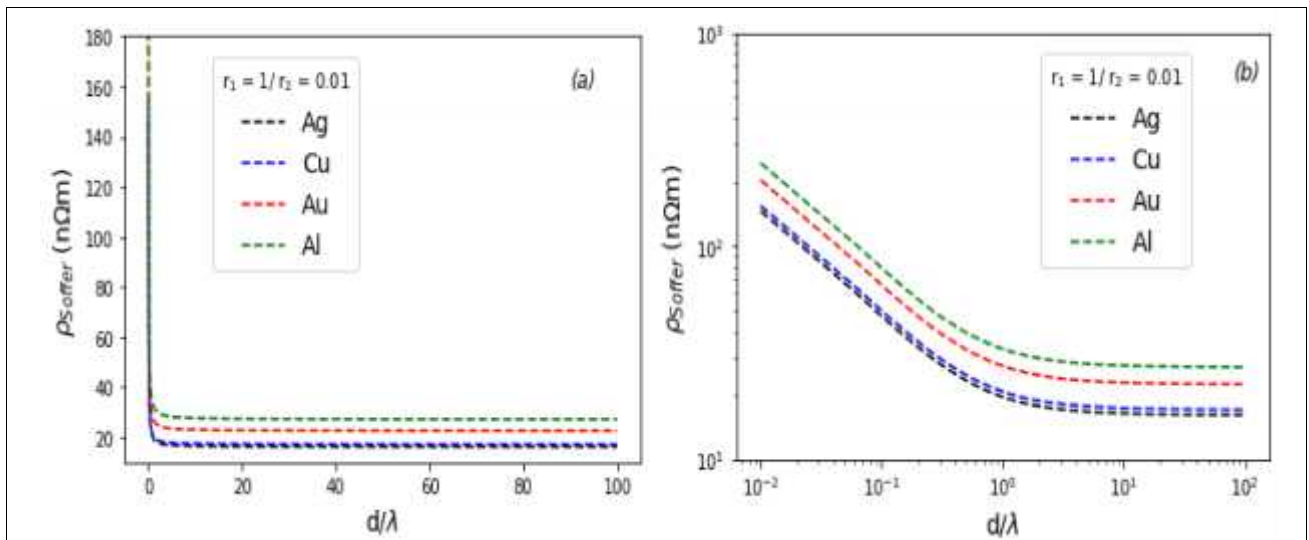


Figure Rés23 : Variation de ρ_s en fonction de d/λ pour 4 couches métalliques différentes en représentation linéaire (a) et log-log (b). Cas où $(r_1, r_2) = (1; 0,0)$.

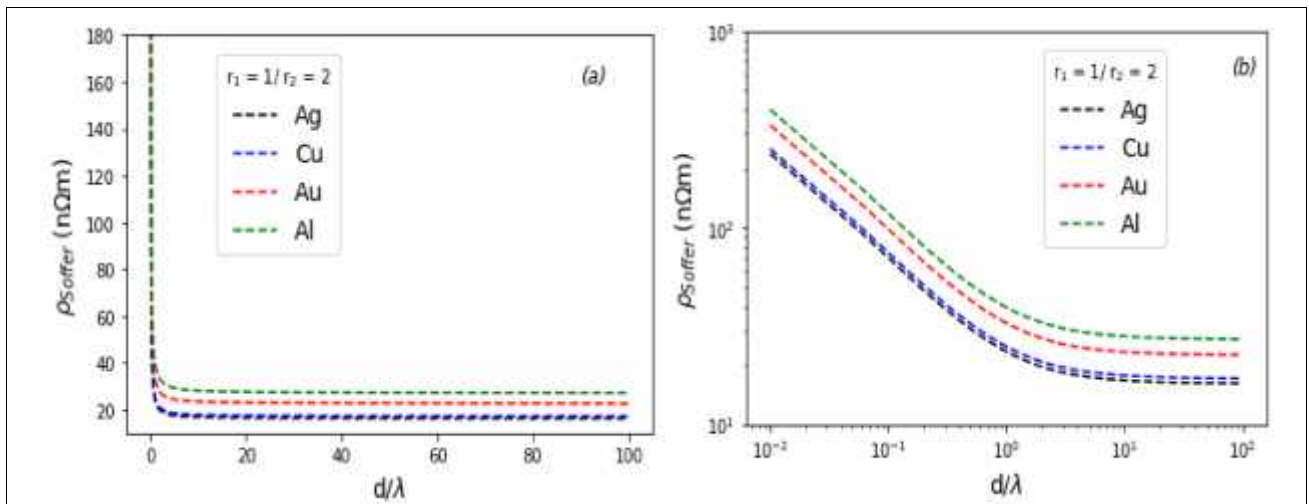


Figure Rés24: Variation de ρ_s en fonction de d/λ pour 4 couches métalliques différentes en représentation linéaire (a) et log-log (b). Cas où $(r_1, r_2) = (1; 2)$.

Sur ces dernières figures, nous retrouvons pratiquement les mêmes caractéristiques que présentent les quatre courbes que dans le cas précédent.

3. $r_1 = 1 = c$, et $r_2 = 0,0 ; 1$

Les tracés des courbes relatives à ce cas, sont montrés sur les *Figures Rés25* et *26* ; elles ressemblent à celles présentées ci-avant en (1) et (2).

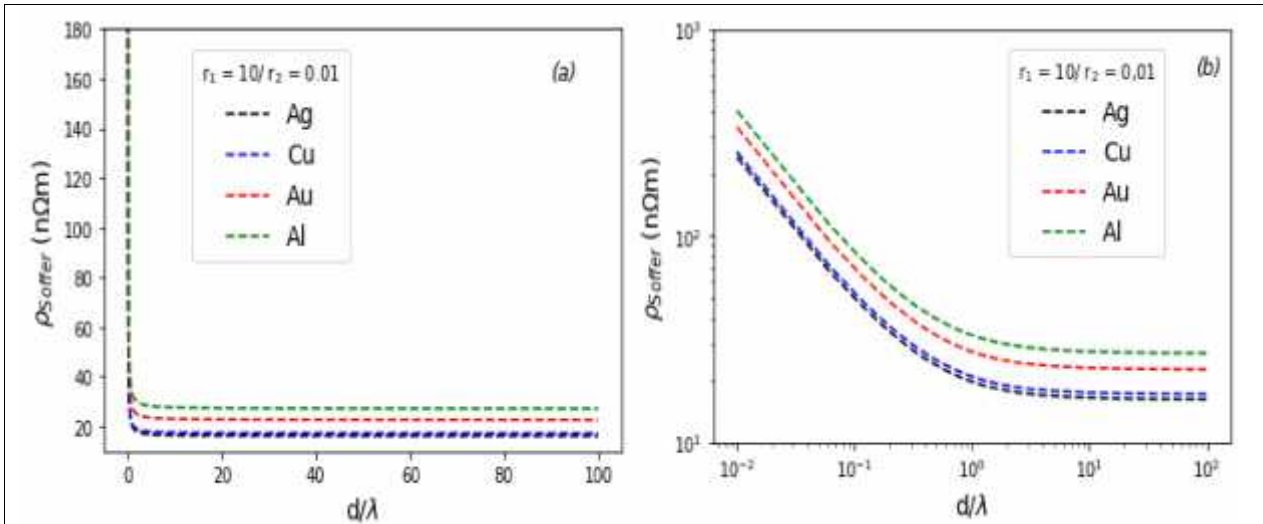


Figure Rés25: Variation de ρ_S en fonction de d/λ pour 4 couches métalliques différentes en représentation linéaire (a) et log-log (b). Cas où $(r_1, r_2) = (1 ; 0,01)$.

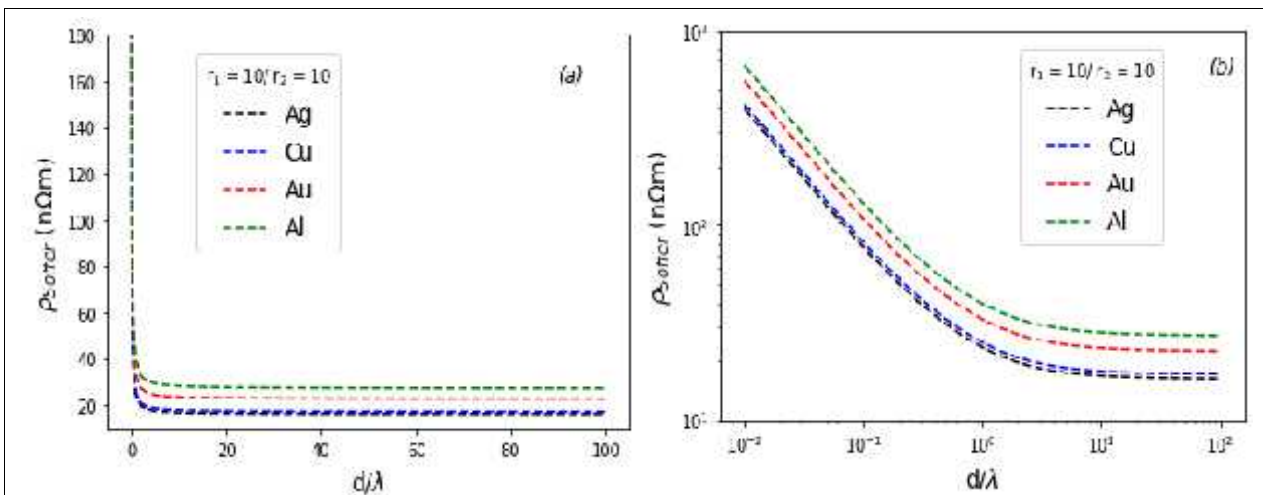


Figure Rés26: Variation de ρ_S en fonction de d/λ pour 4 couches métalliques différentes en représentation linéaire (a) et log-log (b). Cas où $(r_1, r_2) = (1 ; 1)$.

Nous allons maintenant calculer la valeur de la résistivité causée par la rugosité de surface (ρ_S) pour différentes valeurs de r_1 et r_2 , et pour trois valeurs de d/λ , dans le cas de la couche métallique Ag et de la couche métallique Al (c'est-à-dire celle qui présente la plus faible valeur de la résistivité de volume ρ_l , et celle qui a le plus fort ρ_l parmi les quatre couches). On fera ensuite une étude comparative des résultats obtenus.

Le tableau suivant donne les valeurs de la résistivité de volume ρ_l pour les quatre métaux, à $T = 298 K$.

Métal	$\rho_l (n\Omega m)$
Ag	16,17
Cu	17,12
Au	22,55
Al	27,09

Tableau Rés .9 : Valeur de la résistivité de volume de métaux purs à $T = 298 K$ (D'après [51]).

On rappelle que $\rho_S = \rho_S - \rho_l$. Dans les tableaux ci-après, nous avons reporté les valeurs de ρ_S et ρ_S selon les différentes valeurs de d/λ , r_1 et r_2 .

a. $d/\lambda = 0,1$ et $r_1 = 0,5$

		r_2	0,01	0,1	0,5	1	10
Métal	Ag	$\rho_S (n\Omega m)$	42,00	44,22	55,95	61,88	66,68
		$\rho_S (n\Omega m)$	25,83	28,05	39,78	45,71	50,51
	Al	$\rho_S (n\Omega m)$	70,37	74,08	93,73	103,67	111,7
		$\rho_S (n\Omega m)$	43,28	46,99	66,64	76,58	84,61

b. $d/\lambda = 1$ et $r_1 = 0,5$

		r_2	0,01	0,1	0,5	1	10
Métal	Ag	$\rho_S (n\Omega m)$	19,53	20,60	23,03	23,25	23,33
		$\rho_S (n\Omega m)$	03,36	04,43	06,86	07,08	07,16
	Al	$\rho_S (n\Omega m)$	32,73	34,50	38,58	38,96	39,09
		$\rho_S (n\Omega m)$	05,64	07,41	11,49	11,87	12,00

c. $d/\lambda = 1$ et $r_1 = 0,5$

		r_2	0,01	0,1	0,5	1	10
<i>Métal</i>	<i>Ag</i>	ρ_S ($n\Omega m$)	16,47	16,58	16,77	16,78	16,78
		ρ_S ($n\Omega m$)	0,3	0,41	0,6	0,61	0,61
	<i>Al</i>	ρ_S ($n\Omega m$)	27,58	27,78	28,09	28,11	28,12
		ρ_S ($n\Omega m$)	0,49	0,69	1,0	1,02	1,03

d. $d/\lambda = 0,1$ et $r_1 = 1$

		r_2	0,01	0,1	0,5	1	10
<i>Métal</i>	<i>Ag</i>	ρ_S ($n\Omega m$)	47,08	49,70	61,88	67,20	72,17
		ρ_S ($n\Omega m$)	30,91	33,53	45,71	51,03	56,00
	<i>Al</i>	ρ_S ($n\Omega m$)	78,87	83,26	103,67	112,58	120,91
		ρ_S ($n\Omega m$)	51,78	56,17	76,58	85,49	93,82

e. $d/\lambda = 1$ et $r_1 = 1$

		r_2	0,01	0,1	0,5	1	10
<i>Métal</i>	<i>Ag</i>	ρ_S ($n\Omega m$)	19,70	20,78	23,25	23,48	23,56
		ρ_S ($n\Omega m$)	03,53	04,61	07,08	07,31	07,39
	<i>Al</i>	ρ_S ($n\Omega m$)	33,00	34,81	38,96	39,34	39,48
		ρ_S ($n\Omega m$)	05,91	07,72	11,87	12,25	12,39

f. $d/\lambda = 1$ et $r_1 = 1$

		r_2	0,01	0,1	0,5	1	10
<i>Métal</i>	<i>Ag</i>	ρ_S ($n\Omega m$)	16,48	16,59	16,78	16,79	16,8
		ρ_S ($n\Omega m$)	0,31	0,42	0,61	0,62	0,63
	<i>Al</i>	ρ_S ($n\Omega m$)	27,6	27,8	28,11	28,13	28,14
		ρ_S ($n\Omega m$)	0,51	0,71	1,02	1,04	1,05

g. $d/\lambda = 0,1$ et $r_1 = 1$

		r_2	0,01	0,1	0,5	1	10
<i>Métal</i>	<i>Ag</i>	ρ_S ($n\Omega m$)	50,06	53,02	66,68	72,17	77,14
		ρ_S ($n\Omega m$)	33,89	36,85	50,51	56,00	60,97
	<i>Al</i>	ρ_S ($n\Omega m$)	83,87	88,83	111,70	120,91	129,24
		ρ_S ($n\Omega m$)	56,78	61,74	84,61	93,82	102,15

h. $d/\lambda = 1$ et $r_1 = 1$

		r_2	0,01	0,1	0,5	1	10
<i>Métal</i>	<i>Ag</i>	ρ_S ($n\Omega m$)	19,75	20,84	23,33	23,56	23,64
		ρ_S ($n\Omega m$)	3,58	4,67	7,16	7,39	7,47
	<i>Al</i>	ρ_S ($n\Omega m$)	33,1	34,91	39,09	39,48	39,61
		ρ_S ($n\Omega m$)	6,01	7,82	12,0	12,39	12,52

i. $d/\lambda = 1$ et $r_1 = 1$

		r_2	0,01	0,1	0,5	1	10
<i>Métal</i>	<i>Ag</i>	ρ_S ($n\Omega m$)	16,48	16,60	16,78	16,80	16,80
		ρ_S ($n\Omega m$)	0,31	0,43	0,61	0,63	0,63
	<i>Al</i>	ρ_S ($n\Omega m$)	27,61	27,8	28,12	28,14	28,15
		ρ_S ($n\Omega m$)	0,52	0,71	1,03	1,05	1,06

Dans toutes les situations étudiées et que résument les tableaux ci-avant, on remarque que ρ_S (*A*) est toujours supérieure à ρ_S (*A*); il en est évidemment de même pour ρ_S . Les deux résistivités augmentent assez rapidement quand les valeurs de r_2 sont faibles puis saturent à partir d'une certaine valeur de ce coefficient, en fonction des valeurs de d/λ et de r_1 .

Nous représentons ci-après la variation de $\rho_S = f(r_2)$ pour Ag et Al, et pour les valeurs de d/λ et de r_1 indiquées sur les figures correspondantes.

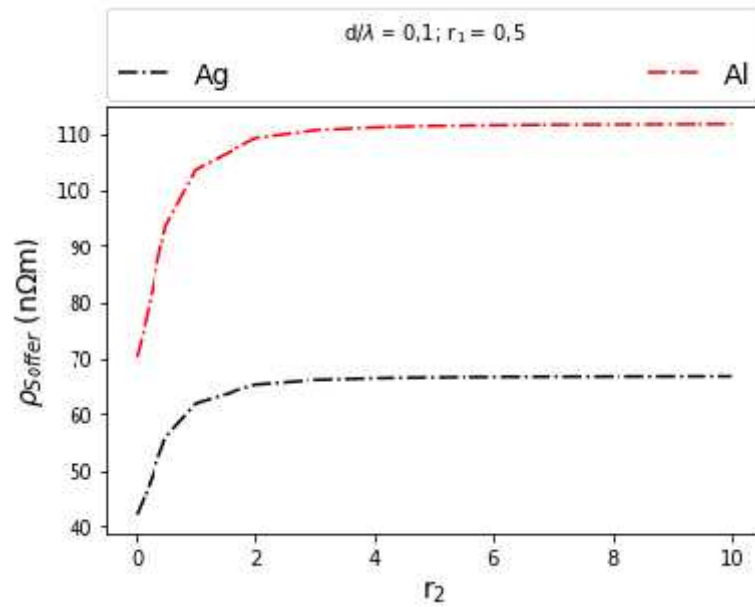


Figure Rés27 : Variation de la résistivité de Soffer avec la rugosité de la 2^{ème} surface de deux couches minces (Ag et Al), pour $d/\lambda = 0,1$ et $r_1 = 0,5$.

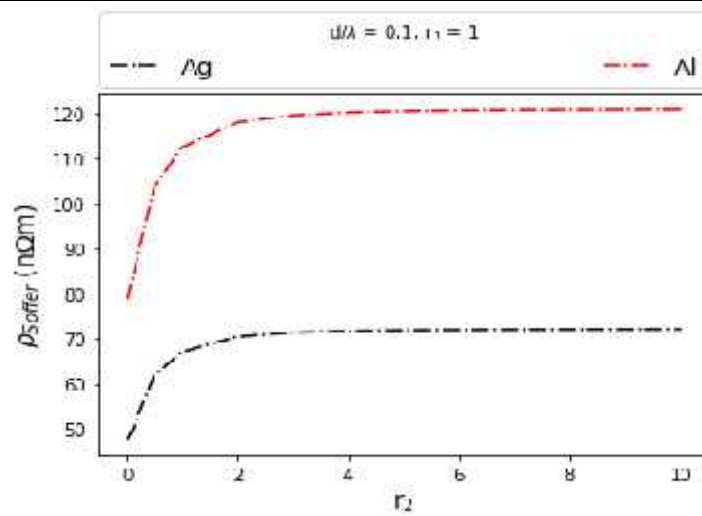


Figure Rés28: Variation de la résistivité de Soffer avec la rugosité de la 2^{ème} surface de deux couches minces (Ag et Al), pour $d/\lambda = 0,1$ et $r_1 = 1$.

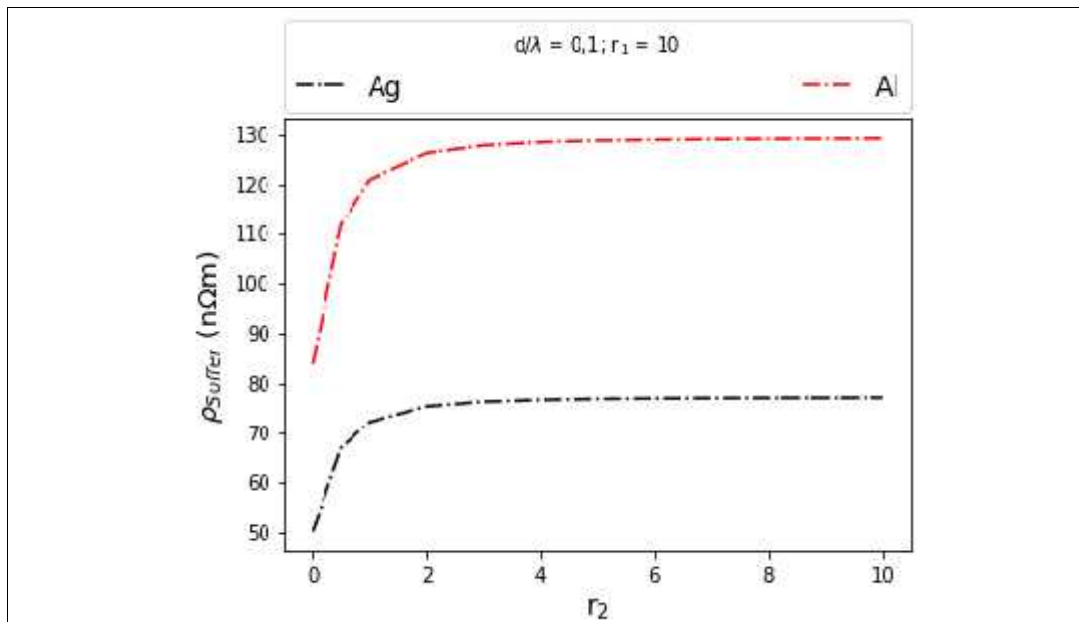


Figure Rés29 : Variation de la résistivité de Soffer avec la rugosité de la 2^{ème} surface de deux couches minces (Ag et Al), pour $d/\lambda = 0,1$ et $r_1 = 1$.

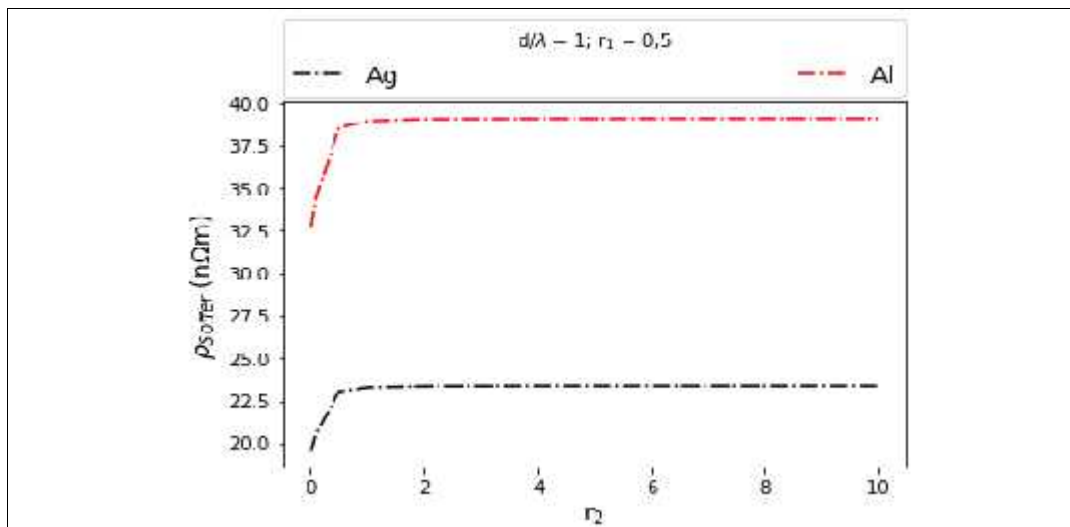


Figure Rés30 : Variation de la résistivité de Soffer avec la rugosité de la 2^{ème} surface de deux couches minces (Ag et Al), pour $d/\lambda = 1$ et $r_1 = 0,5$.

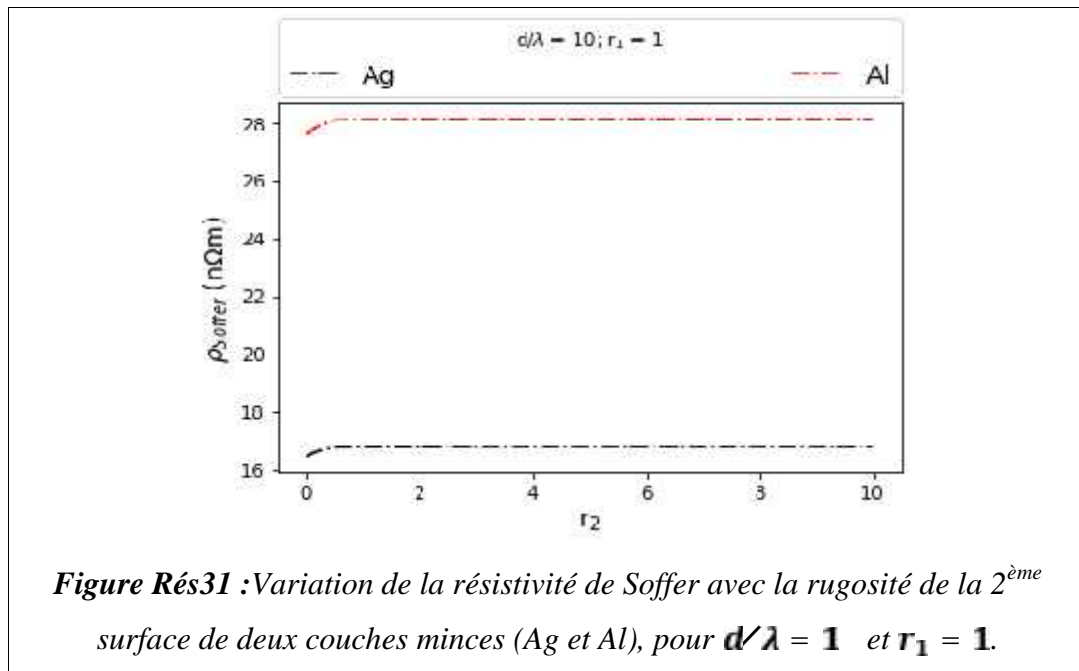


Figure Rés31 : Variation de la résistivité de Soffer avec la rugosité de la 2^{ème} surface de deux couches minces (Ag et Al), pour $d/\lambda = 1$ et $r_1 = 1$.

Nous remarquons, sur toutes ces figures (de la Figure Rés 27 à la Figure Rés 31), que la variation de la résistivité ρ_S de Al est toujours beaucoup plus importante que celle de Ag, pour $d/\lambda = 0,1; 1; 10$ et pour les valeurs de $r_1 = 0,5; 1$ et 10 . Pour chacune des deux types de couches métalliques (Ag ou Al), ρ_S sature à une valeur constante pour environ $r_2 > 2$ dans les cas $d/\lambda = 0,1$ et $r_1 = 0,5; 1; 1$. Par contre, cette saturation de ρ_S se produit pour $r_2 > 1$ dans les cas $d/\lambda = 1$ et $r_1 = 0,5; 1; 1$.

Les cas $d/\lambda = 1$ et $r_1 = 0,5; 1; 1$ sont caractérisés par le fait que la résistivité ρ_S est constante pour Ag et Al à partir de $r_2 = 0,5$ comme le montre la Figure Rés31.

Si on fixe le deuxième coefficient de rugosité à une valeur médiane $r_2 = 5$, on peut estimer la différence entre ρ_S (Al) et ρ_S (Ag) dans chacun des cas étudiés. Ces résultats sont consignés dans le tableau ci-dessous. On pose $\Delta\rho_S = \rho_S$ (Al) - ρ_S (Ag).

Valeurs de d/λ et r_1		Valeurs de d/λ et r_1	
$d/\lambda = 0,1$ et $r_1 = 0,5$	44,9	$d/\lambda = 10$ et $r_1 = 0,5$	11,34
$d/\lambda = 0,1$ et $r_1 = 1$	48,59	$d/\lambda = 10$ et $r_1 = 1$	11,34
$d/\lambda = 0,1$ et $r_1 = 10$	51,92	$d/\lambda = 10$ et $r_1 = 10$	11,35
$d/\lambda = 1$ et $r_1 = 0,5$	15,75	Tableau Rés .10 : Différence entre la résistivité de Soffer d'une couche mince Al et	
$d/\lambda = 1$ et $r_1 = 1$	15,91		

$d/\lambda = 1$ et $r_1 = 10$	15,97	<i>d'une couche mince Ag</i>
-------------------------------	-------	------------------------------

On constate que pour $d/\lambda = 0,1$, ρ_M augmente sensiblement quand la rugosité r_1 augmente. Il en est de même dans le cas $d/\lambda = 1$, mais avec des valeurs de la résistivité plus faibles. Lorsque $d/\lambda = 10$, cette augmentation n'a plus lieu et la résistivité sature à une valeur beaucoup plus faible.

2 Le modèle de Mayadas - Shatzkes

Rappelons que ce modèle développé au chapitre 3, donne l'expression de la résistivité d'une couche mince polycristalline en fonction de la résistivité de volume (ou résistivité à l'intérieur des grains cristallins).

Dans une première étape, nous modéliserons cette résistivité dans le cas où l'on ne tient compte que de l'effet des réflexions des électrons aux joints de grain, en négligeant l'effet des surfaces ou en considérant que l'épaisseur de la couche mince est « infinie » ; nous noterons la résistivité correspondante ρ_M . Dans une deuxième étape, nous tiendrons compte de l'effet conjugué des surfaces (modèle FS) et des joints de grain (modèle MS) ; la résistivité correspondante sera notée ρ_M .

Influence des joints de grain (seuls) sur la résistivité

Rappelons que la résistivité s'écrit dans ce cas (équation 19) :

$$\rho_M = \rho_t f(\alpha) = \rho_t \left[1 - \frac{3}{2}\alpha + 3\alpha^2 - 3\alpha^3 \ln \left(1 + \frac{1}{\alpha} \right) \right]^{-1}$$

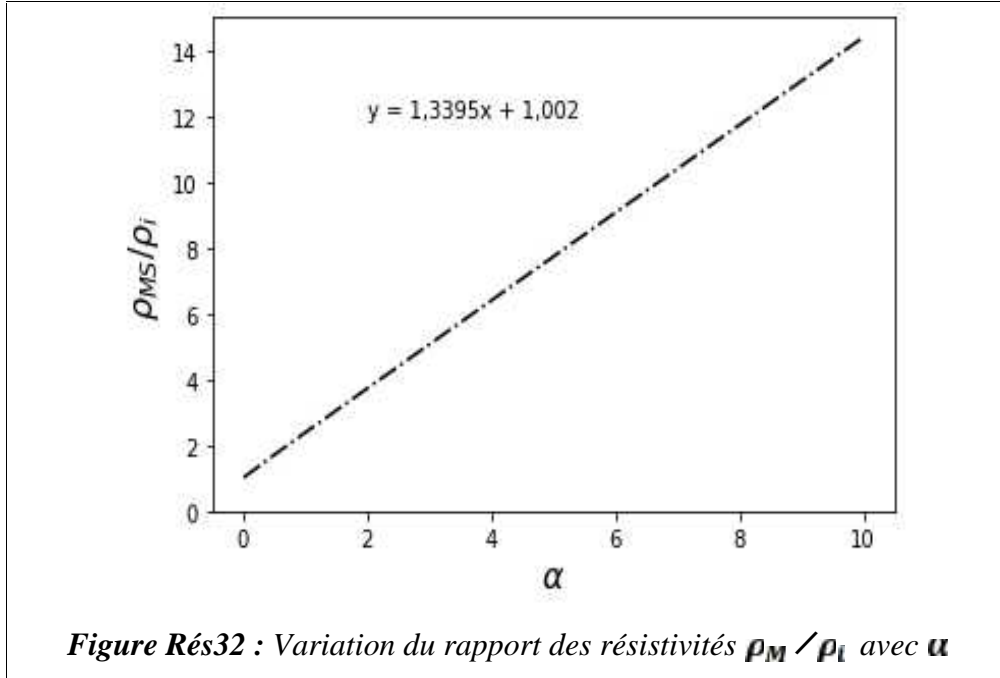
Où $\alpha = \frac{\lambda}{\bar{D}} \frac{R}{1-R}$, avec λ le libre parcours moyen des électrons dans les grains (ou dans la couche de même nature mais monocristalline) ; $0 < R < 1$ le coefficient de réflexion aux joints de grain ; \bar{D} le diamètre moyen des grains.

Le tracé de la courbe ρ_M / ρ_t , c'est-à-dire de $f(\alpha)$, en fonction de α est représenté sur la *Figure Rés32*, pour $0 < \alpha < 10$.

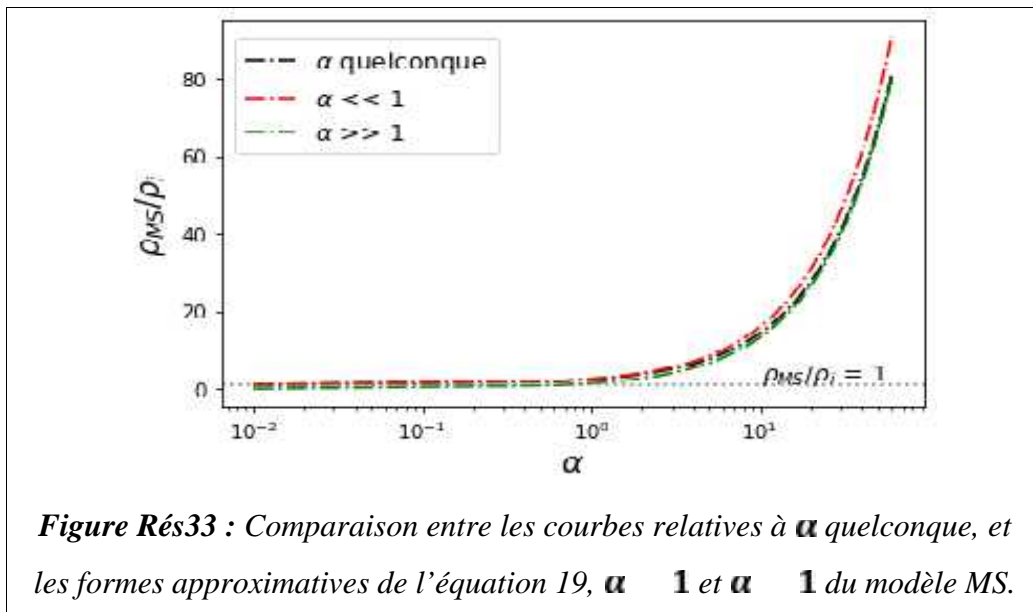
On constate que cette courbe est une droite de pente $p = 1,3395$ et d'ordonnée à l'origine $y_0 = 1,002$. Son équation peut être écrite de façon simple : $\frac{\rho_M}{\rho_t} = \frac{4}{3}\alpha + 1$.

Cependant, l'équation générale $\rho_M / \rho_i = f(\alpha)$ peut être réécrite sous une des formes

$$\text{suivantes suivant la valeur de } \alpha : \frac{\rho_M}{\rho_i} = \begin{cases} 1 + \frac{1}{2}\alpha, & \alpha < 1 \\ \frac{4}{3}\alpha, & \alpha > 1 \end{cases}$$



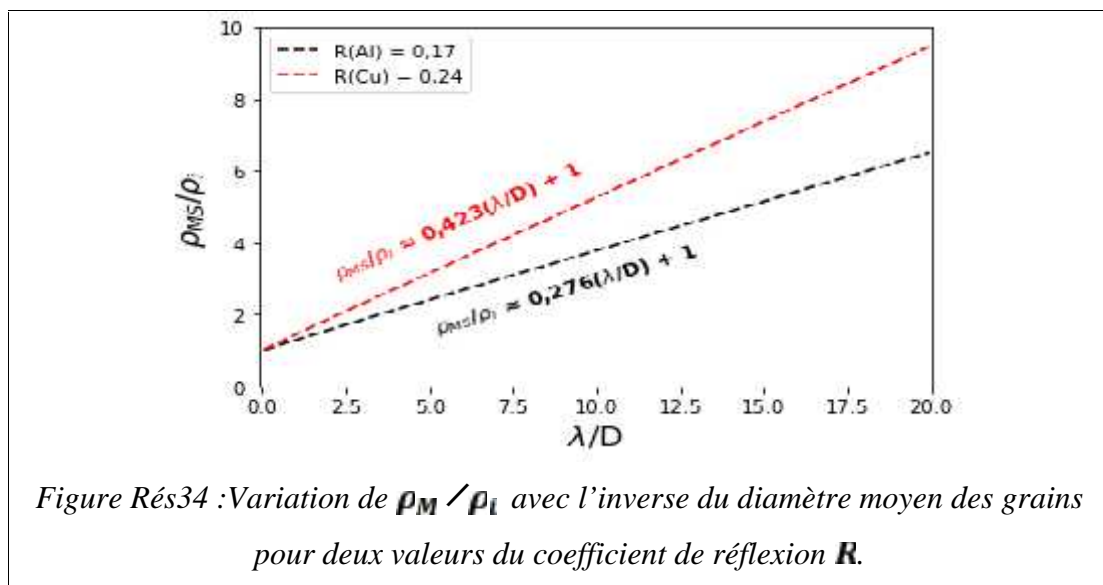
Sur la Figure Rés 33, nous avons représenté $\rho_M / \rho_i = f(\alpha)$ dans les cas où α est quelconque (équation 19), $\alpha < 1$ et $\alpha > 1$. Cette représentation est faite en $\ln(\alpha)$ pour mieux discerner les différences entre les trois courbes, et jusqu'à des valeurs élevées de α .



On remarque sur cette figure, que si pour les très faibles valeurs de α les courbes « α quelconque » et « $\alpha = 1$ » sont confondues, les courbes « α quelconque » et « $\alpha = 1$ » sont pratiquement confondues pour $\alpha > 30$. De telles observations ont été faites par Lim *et al.* dans leur étude de couches minces polycristallines de Cu déposées par faisceau ionique sur des substrats Si [48].

Influence du coefficient de réflexion R

Considérons le cas d'une couche mince polycristalline de Cu caractérisée par un coefficient de réflexion $R = 0,24$ et une couche Al de même nature caractérisée par $R = 0,17$, tel que reporté par Mayadas *et al.* [49]. Nous avons représenté sur la *Figure Rés34* la variation de la fonction $\rho_M / \rho_t = f\left(\frac{\lambda}{D}\right)$ pour ces deux valeurs de R .



On constate sur cette figure que la couche Cu présente une variation linéaire de la résistivité électrique plus importante et plus rapide que celle de la couche Al, en raison de son coefficient de réflexion aux joints de grain qui est 1,4 fois plus grand. Si on suppose que

l'équation $\frac{\rho_M}{\rho_t} = \frac{4}{3} \alpha + 1$ est valable, on peut écrire :

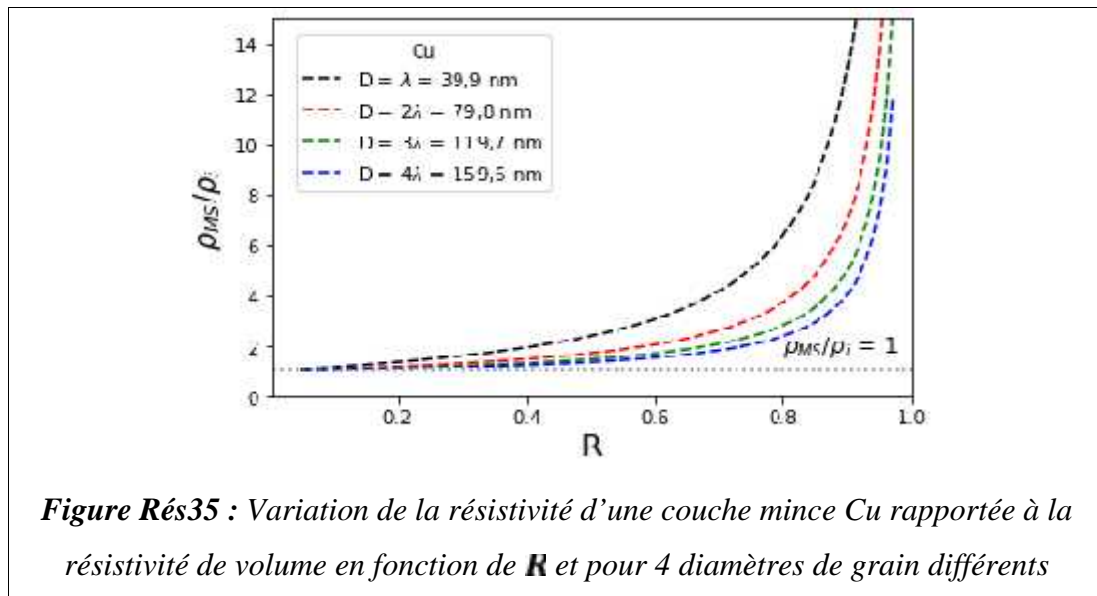
$$\frac{\rho_M}{\rho_t} = \frac{4 \lambda R}{3 D (1-R)} + 1 \quad \begin{cases} 0,421 \left(\frac{\lambda}{D}\right), p \\ 0,273 \left(\frac{\lambda}{D}\right), p \end{cases}$$

Pour avoir une idée sur les dimensions des grains dans chacune des deux couches métalliques étudiées, supposons que $\rho_M / \rho_t = 2$; d'après les courbes de la *Figure Rés 34*,

cela correspond à $\frac{\lambda}{\bar{D}} = \begin{cases} 2,23, p \\ 3,55, p \end{cases}$. Sachant que, d'après Gall [46], les libres parcours moyens à la température ambiante sont $\lambda(C) = 39,9 \text{ nm}$ et $\lambda(A) = 18,9 \text{ nm}$, on en déduit : $\bar{D}(C) = 17,9 \text{ nm}$ et $\bar{D}(A) = 5,3 \text{ nm}$. Ces valeurs de \bar{D} sont relativement faibles. On voit bien que pour diminuer la résistivité de telles couches métalliques, on a intérêt à augmenter le diamètre des grains (les coefficients de réflexion R étant connus), c'est-à-dire diminuer la densité de joints de grain ; cela passe par exemple par des traitements thermiques contrôlés que peuvent subir ces couches.

Influence du diamètre des grains

Nous avons aussi comparé l'influence du diamètre \bar{D} des grains sur la variation de résistivité d'une couche mince Cu et d'une couche mince Al en fonction de R . Les résultats sont respectivement montrés sur les *Figures Rés36 : et 37*.



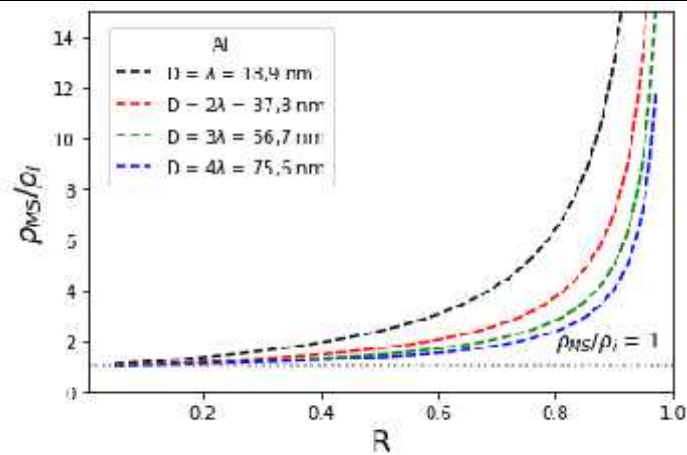


Figure Rés36 : Variation de la résistivité d'une couche mince Al rapportée à la résistivité de volume en fonction de R et pour 4 diamètres de grain différents

Les courbes relatives aux deux couches métalliques Cu et Al révèlent une évolution identique de la résistivité électrique pour $0 < R < 1$. Comme prévu, quelle que soit la valeur de \bar{D} , $\rho_M / \rho_t = 1$ lorsque $R = 0$, et $\rho_M / \rho_t \rightarrow \infty$ quand $R \rightarrow 1$. De plus, ρ_M / ρ_t augmente rapidement pour $R = 0,2$ à mesure que \bar{D} diminue ; l'augmentation la plus rapide a lieu pour $\bar{D} = \lambda$ que ce soit pour la couche Cu ou la couche Al. Cela est expliqué par le fait lorsque \bar{D} diminue, la densité des joints de grain augmente et les réflexions sont beaucoup plus nombreuses ; cet effet est plus renforcé si R augmente également. A titre d'exemple, fixons R à une valeur médiane ($R = 0,5$) et calculons ρ_M / ρ_t pour les quatre différentes valeurs de \bar{D} . Les résultats sont consignés dans le tableau ci-après.

\bar{D}	ρ_M / ρ_t
$0,5\lambda$	3,72
λ	2,37
2λ	1,72
$2,3\lambda$	1,61
$2,8\lambda$	1,50
3λ	1,45
4λ	1,35
$4,5\lambda$	1,32
$4,8\lambda$	1,30
5λ	1,29

Tableau Rés .11 : Valeurs du diamètre moyen \bar{D} et valeurs correspondantes du rapport des résistivités ρ_M / ρ_l .

La courbe $\rho_M / \rho_l = f(\bar{D})$ est tracée sur la *Figure Rés 38* : pour les couches minces métalliques Cu et Al, dans le cas $R = 0,5$.

Cette figure montre que la résistivité diminue sensiblement avec l'augmentation de \bar{D} , comme le prévoit le modèle théorique MS. En effet, comme mentionné plus haut, lorsque D augmente, la couche mince tend à devenir moins polycristalline car la densité des joints de grain diminue et sa résistivité diminue. Cette diminution se fait par segments linéaires plus larges dans le cas Cu. Les pentes de ces segments sont différentes dans les deux cas Cu et Al, en raison du fait que le libre parcours moyen $\lambda_C = 2\lambda_A$.

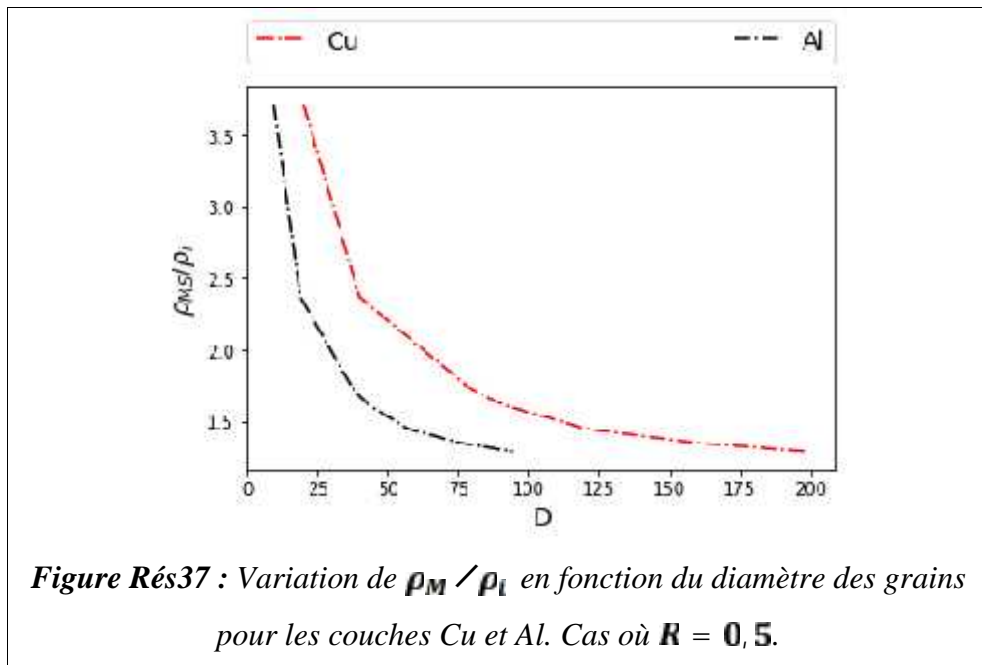


Figure Rés37 : Variation de ρ_M / ρ_l en fonction du diamètre des grains pour les couches Cu et Al. Cas où $R = 0,5$.

Influence conjuguée des joints de grain et des surfaces sur la résistivité

Le modèle correspondant à ce cas est le modèle combiné MS + FS que nous avons appelé modèle MSS au chapitre 3. La résistivité relative à ce modèle s'écrit (équation 21 du chapitre 3) :

$$\frac{1}{\rho_M} = \frac{1}{\rho_l} - \frac{6}{\pi \rho_l} (1-p) \int_0^{\pi/2} d \int_1^{\infty} \frac{c_1 \cdot 2\phi}{H^2(x, \phi)} \left(\frac{1}{x^3} - \frac{1}{x^5} \right) \frac{1 - e^{-\kappa H(x, \phi)}}{[-\kappa \cdot (x, \phi)]} d$$

Où ρ_M est la résistivité de la couche mince étudiée plus haut (effet des joints de grain seuls), p est le coefficient de réflexion spéculaire du modèle FS, $\kappa = d/\lambda$ et $H(x, \phi) =$

$1 + \frac{u}{c \left(1 - \frac{1}{x^2}\right)^{1/2}}$, où $x = c_1^{-1} \theta$, θ étant l'angle que font la vitesse \vec{v} de l'électron incident et la direction Oz (perpendiculaire aux surfaces de la couche).

Le script Python écrit pour calculer ρ_M utilise la fonction *dblquad* du module *Scipy* (Scientific Python) pour calculer la double intégrale dans l'équation ci-haut. Nous avons joint ce script en annexe.

Tracé de la variation du rapport ρ_M / ρ_I en fonction de $\kappa = d/\lambda$.

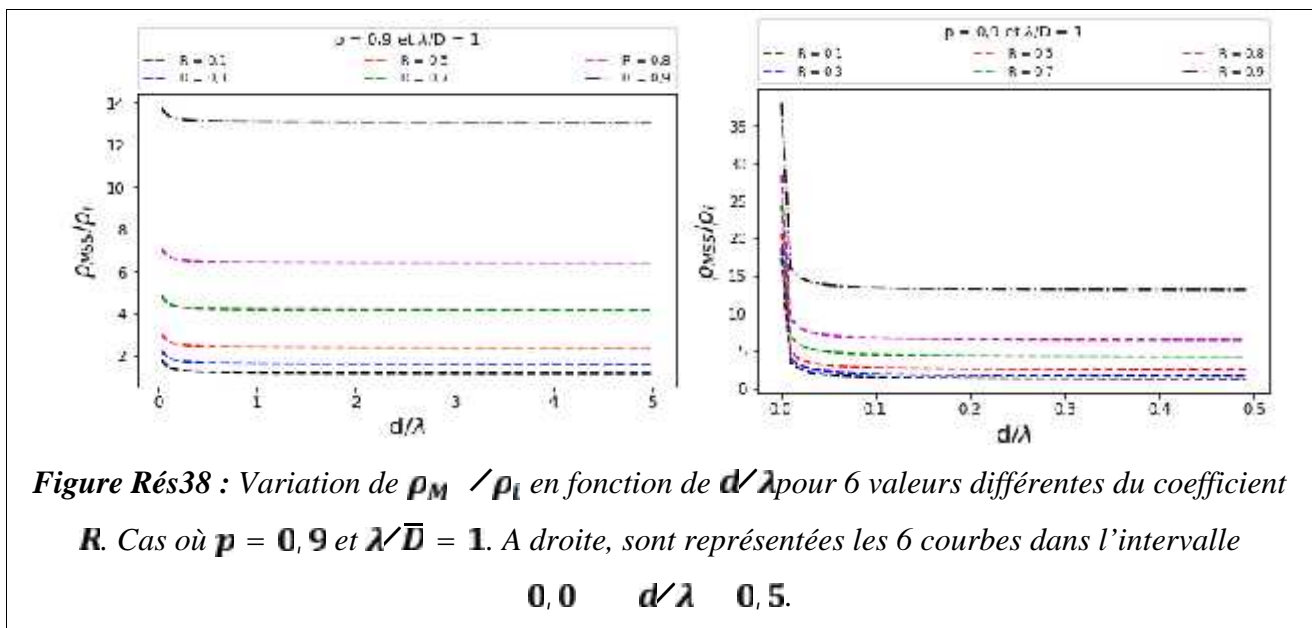


Figure Rés38 : Variation de ρ_M / ρ_I en fonction de d/λ pour 6 valeurs différentes du coefficient R . Cas où $p = 0,9$ et $\lambda/\bar{D} = 1$. A droite, sont représentées les 6 courbes dans l'intervalle $0,0 \leq d/\lambda \leq 0,5$.

Pour cela, nous allons fixer $K = \lambda/\bar{D} = 1$. Si on considère une couche métallique Cu avec $\lambda(Cu) = 39,9 \text{ nm}$, alors on suppose que les grains ont un diamètre moyen $\bar{D} = 39,9 \text{ nm}$. Le même raisonnement pour une couche métallique Al, conduit à $\bar{D} = 18,9 \text{ nm}$. On considère ensuite plusieurs valeurs du coefficient de réflexion aux joints de grain, soit : $R = 0,1; 0,3; 0,5; 0,7; 0,8; 0,9$. Les résultats sont montrés sur la figure Rés40.

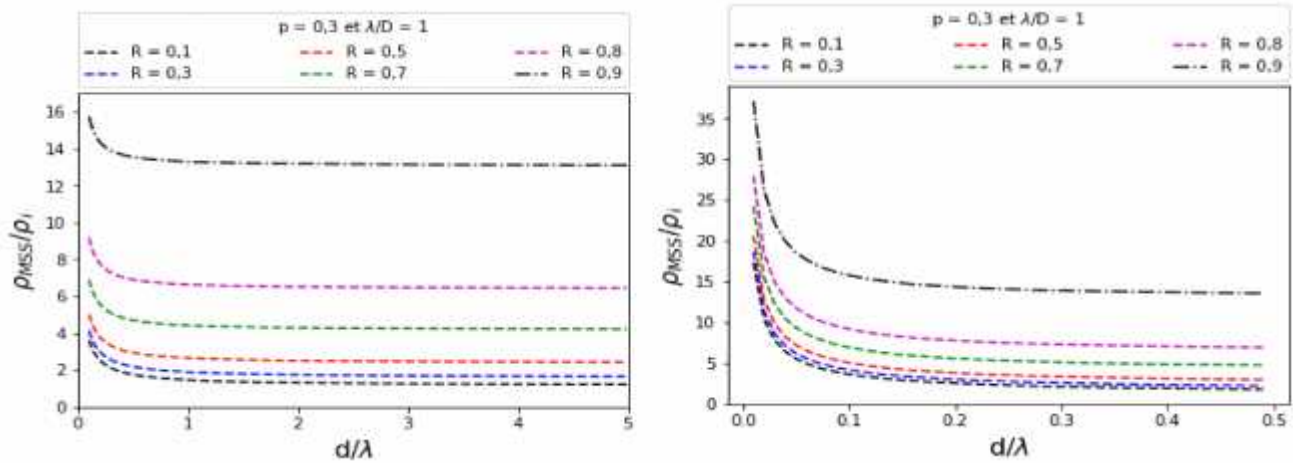


Figure Rés39 : Variation de ρ_M / ρ_l en fonction de d/λ pour 6 valeurs différentes du coefficient R . Cas où $p = 0,3$ et $\lambda/D = 1$. A droite, sont représentées les 6 courbes dans l'intervalle $0,0 \leq d/\lambda \leq 0,5$.

L'examen des courbes des figures Rés 39 et Rés 40 montre que :

1. Lorsque $d/\lambda \rightarrow 0$, ρ_M / ρ_l augmente très rapidement et admet l'axe vertical en 0 comme asymptote ;
2. Pour $p = 0,9$, $\rho_M / \rho_l (R = 0,9)$ est un peu plus faible que $\rho_M / \rho_l (R = 0,9)$ pour $p = 0,3$ (voit les tableaux 9 et 10) ;
3. ρ_M / ρ_l atteint une valeur minimale qui est constante au-delà d'une certaine valeur de d/λ , de l'ordre de 0,5 dans le cas de la figure Rés 39 et de l'ordre de 2 dans le cas de la figure Rés 40 .
4. Au fur et à mesure que R augmente, la résistivité MSS augmente et l'écart entre les rapports ρ_M / ρ_l à saturation devient plus important. Les deux tableaux ci-dessous donne les valeurs numériques de cet écart dans les deux cas ($p = 0,3$ et $p = 0,9$).

R	ρ_M / ρ_l		$\rho_M (A)$ ($n\Omega m$)	$\rho_M (C)$ ($n\Omega m$)	$\rho_M (A)$ ($n\Omega m$)	$\rho_M (A)$ ($n\Omega m$)
0,1	1,26	0,37	20,37	21,57	28,41	34,13
0,3	1,63		26,36	27,90	36,76	44,16
0,5	2,4	1,8	38,80	41,09	54,12	65,02
0,7	4,2		67,91	71,90	94,71	113,78
0,8	6,4	6,8	103,49	109,57	144,32	173,38
0,9	13,2		213,44	225,98	297,66	357,59

Tableau Rés .12 : Evaluation de l'écart entre les rapports ρ_M / ρ_i à saturation et valeurs de ρ_M pour 4 couches métalliques de différente nature. Cas où $p = 0,3$ et R variable.

Si on ne considère que les deux valeurs extrêmes de R , soient $R = 0,1$ et $R = 0,9$, l'écart est donné par : $\rho_M / \rho_i(R = 0,9) - \rho_M / \rho_i(R = 0,1) = 11,94$. Ce qui se traduit par les variations suivantes de ρ_M pour les quatre couches métalliques :

Couche métallique	Ag	Cu	Au	Al
$\rho_M (R = 0,9) - \rho_M (R = 0,1) (n\ m)$	193,07	204,41	269,25	323,46

L'écart absolu le plus important est celui constaté pour Al, mais l'augmentation relative de la résistivité a pratiquement la même valeur pour les quatre couches métalliques, soit de l'ordre de 947%.

R	ρ_M / ρ_i		$\rho_M (A)$ ($n\Omega m$)	$\rho_M (C)$ ($n\Omega m$)	$\rho_M (A)$ ($n\Omega m$)	$\rho_M (A)$ ($n\Omega m$)
0,1	1,25	0,38	20,21	21,40	28,19	33,86
0,3	1,63		26,36	27,90	36,76	44,16
0,5	2,3	1,85	37,19	39,38	51,86	65,31
0,7	4,15		67,10	71,05	93,58	112,42
0,8	6,4	6,6	103,49	109,57	144,32	173,38
0,9	13,0		210,21	222,56	293,15	352,17

Tableau Rés .13: Evaluation de l'écart entre les rapports ρ_M / ρ_i à saturation et valeurs de ρ_M pour 4 couches métalliques de différente nature. Cas où $p = 0,9$ et R variable.

Les mêmes observations peuvent être faites comme dans le cas précédent, en notant que les valeurs de ρ_M / ρ_i et de ρ_M ne sont pratiquement pas différentes, ce qui signifie que le paramètre spéculaire p influe peu sur la résistivité de la couche pour des valeurs de l'épaisseur telles que $d/\lambda > 1$. Cette influence de p ne se manifeste que pour des valeurs $d/\lambda < 1$, c'est-à-dire pour des épaisseurs faibles de la couche mince.

Les deux grandes différences entre les figures Rés 39 et Rés 40 sont :

1. Le fait que la résistivité atteint une valeur constante pour une valeur plus faible de d/λ (donc de l'épaisseur d de la couche), dans le cas $p = 0,9$;

2. Dans le cas $p = 0,9$, la résistivité de la couche mince augmente très rapidement pour des valeurs $d/\lambda \rightarrow 1$. En d'autres termes, lorsque p a une valeur proche de 1 ($p = 0,9$ par exemple), la résistivité $\rho_M \rightarrow \rho_M$ comme le montre l'équation 21 du chapitre 3, rappelée plus haut : l'effet des surfaces est donc atténué.

Si on ne considère que les deux valeurs extrêmes de R , soient $R = 0,1$ et $R = 0,9$, l'écart entre les rapports correspondants des résistivités (minimales) est donné par : $[\rho_M / \rho_l(R = 0,9) - \rho_M / \rho_l(R = 0,1)]_m = 11,75$. Ce qui se traduit par les variations suivantes de $(\rho_M)_m$ pour les quatre couches métalliques :

Couche métallique	Ag	Cu	Au	Al
$[\rho_M (R = 0,9) - \rho_M (R = 0,1)]_m$ (nΩm)	190,00	201,16	265,00	318,31

Tableau Rés .14: Valeur du rapport des écarts pour les 4 couches métalliques. Cas où $p = 0,9 / \lambda/\bar{D} = 1$.

a. $p = 0,9$ et $\lambda/\bar{D} = 0,5$

Dans ce cas, les grains sont supposés avoir un diamètre moyen deux fois plus grand que le libre parcours moyen. Ce qui signifie un diamètre $\bar{D} = 79,8 \text{ nm}$ pour Cu et $\bar{D} = 37,8 \text{ nm}$ pour Al. La variation de $\rho_M = f(R)$ est montrée sur la figure Rés 42 pour les mêmes valeurs de R : $R = 0,1; 0,3; 0,5; 0,7; 0,8; 0,9$.

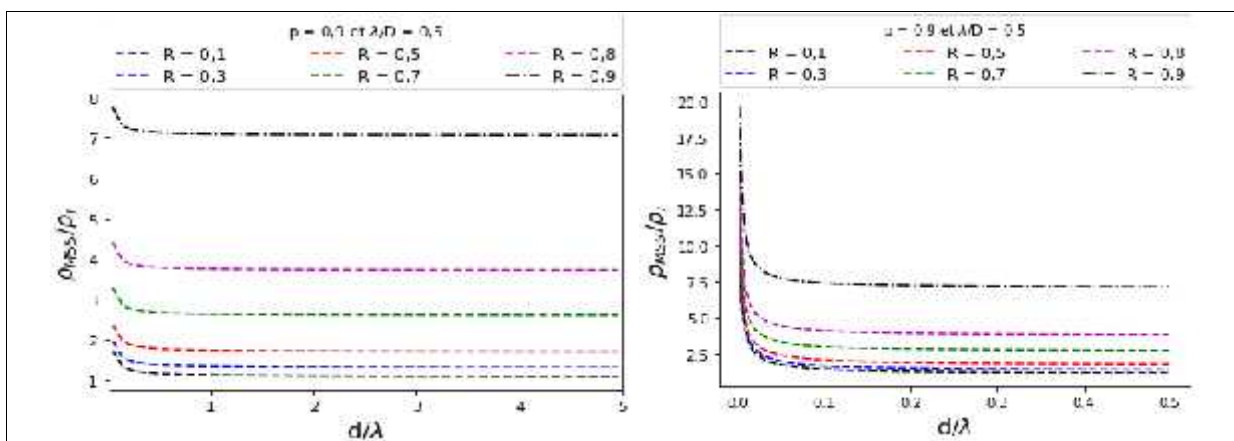
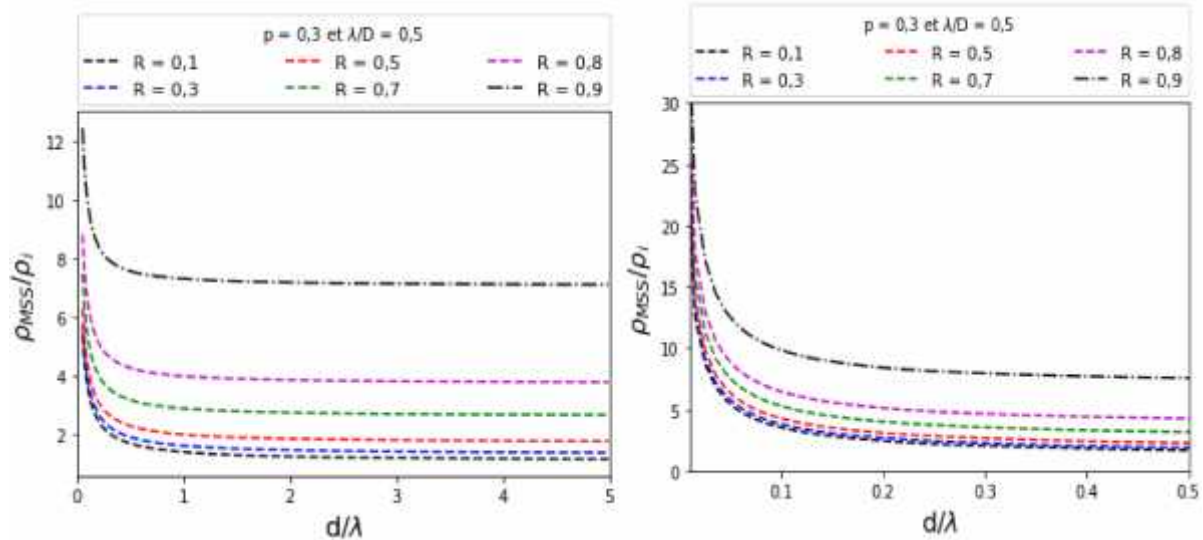


Figure Rés40 : Variation de ρ_M / ρ_l en fonction de d/λ pour 6 valeurs différentes du coefficient R . Cas où $p = 0,9$ et $\lambda/\bar{D} = 0,5$. A droite, sont représentées les 6 courbes dans l'intervalle $0,0 \leq d/\lambda \leq 0,5$.

b. $p = 0,3$ et $\lambda/\bar{D} = 0,5$

Dans ce cas, on considère une valeur plus faible du paramètre spéculaire ($p = 0,3$ au lieu de $0,9$) et on conserve une même valeur du diamètre des grains ($\bar{D} = 2\lambda$). La représentation de courbes $\rho_M = f(R)$ est montrée sur la figure Rés 42.

- ✓ Comparons les figures Rés 39 ($p = 0,9$ et $\lambda/\bar{D} = 1$) et 42 ($p = 0,9$ et $\lambda/\bar{D} = 0,5$), puis les figures Rés 40 ($p = 0,3$ et $\lambda/\bar{D} = 1$) et 43 ($p = 0,3$ et $\lambda/\bar{D} = 0,5$). On constate que pour une même valeur de R , la résistivité d'une couche mince caractérisée par $\bar{D} = 2\lambda$ est inférieure à la résistivité d'une couche mince caractérisée par $\bar{D} = \lambda$. Ce qui montre bien que lorsque les grains deviennent plus grands, et quel que soit la valeur de R , la résistivité diminue parce que la densité des joints de grain diminue et donc les réflexions correspondantes sont moins nombreuses : la couche devient moins polycristalline et plus monocristalline.
- ✓ Quand \bar{D} passe de λ à 2λ :
 - $(\rho_M / \rho_t)_m$ passe d'une valeur de $13,0$ à $7,1$ pour $R = 0,9$ et dans le cas $p = 0,9$, soit une variation $[(\rho_M / \rho_t)_m] = 5,9$.
 - $(\rho_M / \rho_t)_m$ passe d'une valeur de $13,2$ à $7,15$ pour $R = 0,9$ et dans le cas $p = 0,3$, soit une variation $[(\rho_M / \rho_t)_m] = 6,05$. La différence entre les deux cas n'est pas très importante.
- ✓ Les mêmes observations et remarques faites dans le cas des figures Rés 39 et Rés 40 sont aussi valables pour les figures Rés 41 et Rés 42.



✓ **Figure Rés41 :** Variation de ρ_M / ρ_i en fonction de d/λ pour 6 valeurs différentes du coefficient R . Cas où $p = 0,3$ et $\lambda/D = 0,5$. A droite, sont représentées les 6 courbes dans l'intervalle $0,0 \leq d/\lambda \leq 0,5$.

Evaluons, d'après les figures Rés 41 et Rés 42, l'écart entre les rapports $(\rho_M / \rho_i)_m$ pour toutes les valeurs de R , puis les valeurs ρ_M des quatre couches types : Cu, Ag, Au et Al. Ces résultats sont consignés dans les tableaux Rés 15 et Rés 18.

R	$(\rho_M / \rho_i)_m$		$\rho_{M m} (A)$ ($n\Omega m$)	$\rho_{M m} (C)$ ($n\Omega m$)	$\rho_{M m} (A)$ ($n\Omega m$)	$\rho_{M m} (A)(n\Omega m)$
0,1	1,18	0,21	19,08	20,20	26,61	31,97
0,3	1,39		22,48	23,80	31,34	37,65
0,5	1,75	0,99	28,30	29,96	39,46	47,41
0,7	2,74		44,30	46,91	61,79	74,23
0,8	3,75	3,40	60,64	64,20	84,56	101,59
0,9	7,15		115,61	122,41	161,23	193,70

Tableau Rés .15 : Evaluation de l'écart entre les rapports $(\rho_M / \rho_i)_m$ et les valeurs de ρ_M pour 4 couches métalliques de différente nature. Cas où $p = 0,3 / \lambda/\bar{D} = 0,5$ et R variable.

Si on ne considère que les deux valeurs extrêmes de R , soient $R = 0,1$ et $R = 0,9$, l'écart entre les rapports des résistivités correspondants est donné par :

$$= [\rho_M / \rho_i(R = 0,9) - \rho_M / \rho_i(R = 0,1)]_m = 5,97.$$

Ce qui se traduit par les variations suivantes de $(\rho_M)_m$ pour les quatre couches métalliques :

Couche métallique	Ag	Cu	Au	Al
$[\rho_M (R = 0,9) - \rho_M (R = 0,1)]_m (n\Omega m)$	96,53	102,20	134,62	161,73

Tableau Rés .16 : Valeur du rapport des écarts pour les 4 couches métalliques.

Cas où $p = 0,3 / \lambda/\bar{D} = 0,5$.

En tenant compte des valeurs du tableau Rés 12 et des valeurs du tableau Rés 15, le rapport des écarts de résistivités est le suivant :

Couche métallique	Ag	Cu	Au	Al
$r = \frac{[\rho_M (R = 0,9) - \rho_M (R = 0,1)](p = 0,3 / \lambda/\bar{D} = 1)}{[\rho_M (R = 0,9) - \rho_M (R = 0,1)](p = 0,3 / \lambda/\bar{D} = 0,5)}$	2	2	2	2

Tableau Rés .17 : Valeur du rapport des écarts pour les 4 couches métalliques

Conclusion : Quelle que soit le type de couche métallique (Ag, Cu, Au ou Al), ces données montrent que l'écart considéré est multiplié par 2 lorsque le diamètre des grains est divisé par 2.

R	$(\rho_M / \rho_l)_m$		$\rho_{M m} (A)$ (nΩm)	$\rho_{M m} (C)$ (nΩm)	$\rho_{M m} (A)$ (nΩm)	$\rho_{M m} (A)(n\Omega m)$
0,1	1,10	0,25	17,8	18,83	24,80	29,80
0,3	1,35		21,83	23,11	30,44	36,57
0,5	1,70	0,90	27,49	29,10	38,33	46,05
0,7	2,60		42,04	44,51	58,63	70,43
0,8	3,80	3,30	61,45	65,06	85,69	102,94
0,9	7,10		114,80	121,55	160,10	192,34

Tableau Rés .18 : Evaluation de l'écart entre les rapports $(\rho_M / \rho_l)_m$ et les valeurs de ρ_M pour 4 couches métalliques de différente nature. Cas où $p = 0,9 / \lambda/\bar{D} = 0,5$ et R variable.

Si on ne considère que les deux valeurs extrêmes de R , soient $R = 0,1$ et $R = 0,9$, l'écart entre les rapports des résistivités correspondants est donné par :

$$= [\rho_M / \rho_i(R = 0,9) - \rho_M / \rho_i(R = 0,1)]_m = 6$$

Ce qui se traduit par les variations suivantes de ρ_M pour les quatre couches métalliques :

Couche métallique	Ag	Cu	Au	Al
$\rho_M (R = 0,9) - \rho_M (R = 0,1)$ (n m)	97,02	102,72	135,30	162,54

Tableau Rés .19 : Valeur du rapport des écarts pour les 4 couches métalliques.

Cas où $p = 0,9 / \lambda/\bar{D} = 0,5$.

Ces valeurs ne sont pas très différentes de celles du tableau Rés15 (Cas où $p = 0,3 / \lambda/\bar{D} = 0,5$).

Là également, et en tenant compte des valeurs du tableau Rés13 et des valeurs du tableau Rés17, le rapport r des écarts de résistivités (minimales) est le suivant :

Couche métallique	Ag	Cu	Au	Al
$r = \frac{[\rho_M (R = 0,9) - \rho_M (R = 0,1)](p = 0,9 / \lambda/\bar{D} = 1)}{[\rho_M (R = 0,9) - \rho_M (R = 0,1)](p = 0,9 / \lambda/\bar{D} = 0,5)}$	1,96	1,96	1,96	1,96

Tableau Rés .20 : Valeur du rapport des écarts pour les 4 couches métalliques

Ces données montrent l'effet de R sur la résistivité quand λ/\bar{D} passe de 0,5 à 1; à titre d'exemple, l'écart considéré est multiplié par presque 2 (comme le montre également le tableau Rés 15) pour une couche mince Ag lorsque le diamètre des grains est divisé par 2.

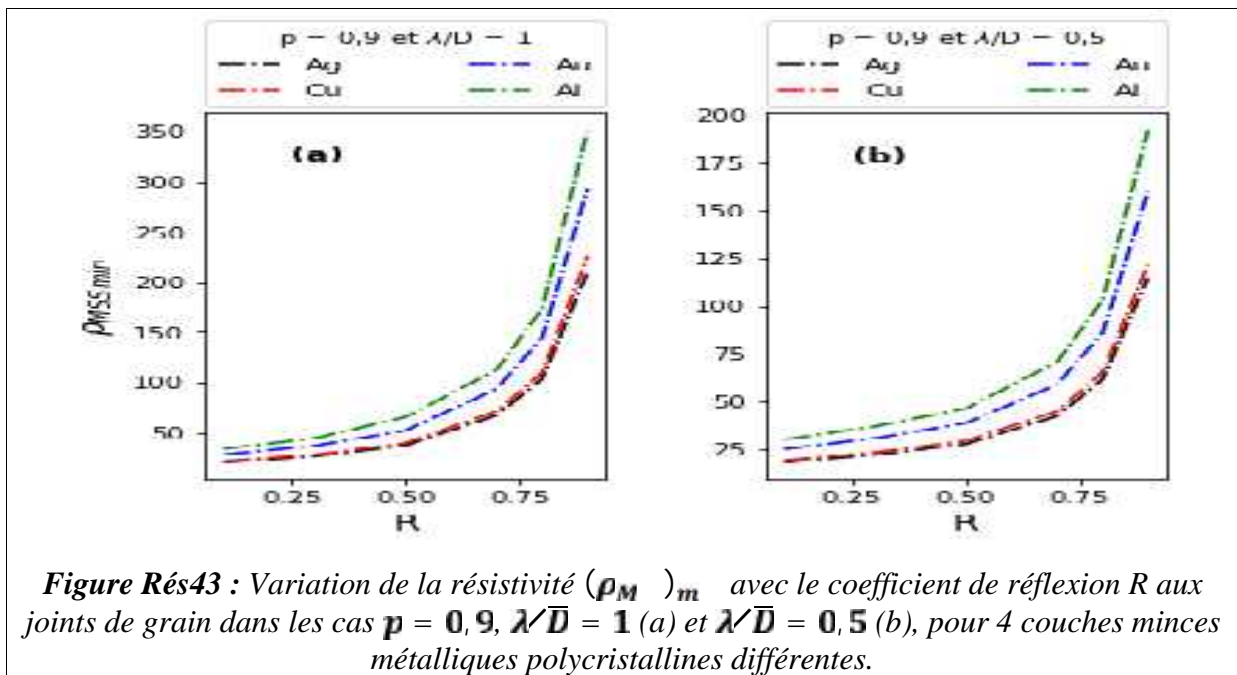
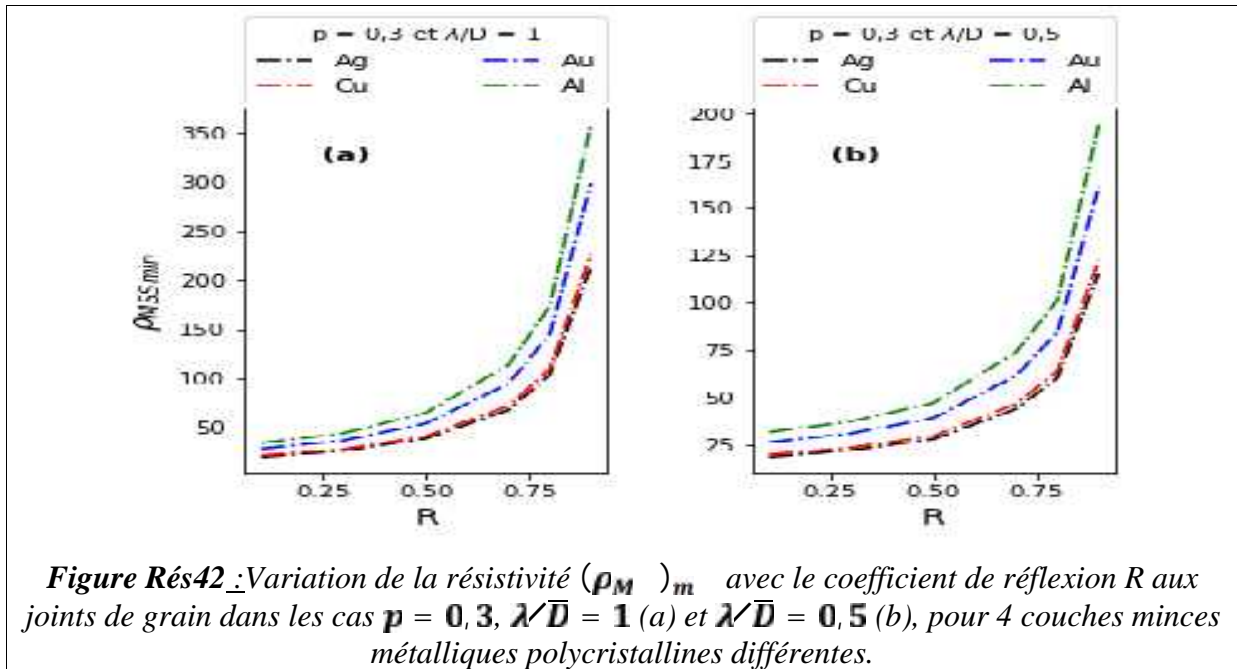
Pour clore cette étude, et afin de mieux illustrer ces différentes observations, nous allons représenter la fonction $(\rho_M)_m = f(R)$ dans les cas :

- $p = 0,3 e \begin{cases} \lambda/\bar{D} = 1 \\ \lambda/\bar{D} = 0,5 \end{cases}$ Figure Rés 42

- $p = 0,9 e \begin{cases} \lambda/\bar{D} = 1 \\ \lambda/\bar{D} = 0,5 \end{cases}$ Figure Rés 43

La comparaison de ces courbes montre que, dans le cas (b), lorsque le diamètre \bar{D} des grains devient égal à 2λ , la résistivité diminue par rapport au cas (a) quelle que soit la couche

mince. Avec la remarque que c'est toujours la couche Al qui montre une évolution plus importante de la résistivité, et que les courbes relatives à Ag et Cu sont presque totalement confondues et évoluent donc de la même façon.



Les mêmes observations que dans le cas de la figure Rés 43 peuvent être faites dans le cas de la figure Rés 44 : l'évolution de la fonction $(\rho_M)_m = f(R)$ n'est quasiment pas affectée par l'augmentation du paramètre spéculaire (c'est-à-dire quand p passe de 0,3 à 0,9).

Donc, ρ n'est pas un facteur primordial dans ce cas ; c'est plutôt le diamètre des grains qui a une plus grande influence sur la valeur de la résistivité.

Conclusion

Nous avons utilisé dans ce mémoire deux grandes théories pour décrire quantitativement la résistivité d'une couche mince métallique ; ce sont la théorie de Fuchs-Sondheimer (FS) et la théorie de Mayadas-Shatzkes (MS). La première permet d'expliquer la résistivité de couches minces monocristallines où les surfaces limites jouent un rôle fondamental et servent de « diffuseurs » des électrons qui se déplacent. Ces phénomènes de diffusion (ou réflexion) des électrons sur ces surfaces peuvent être de nature spéculaire ou diffuse ; c'est la valeur d'un paramètre caractéristique, le paramètre spéculaire $0 < p < 1$, qui renseigne sur la nature de ces réflexions. La théorie MS a introduit le caractère microstructural polycristallin d'une couche mince en tenant compte, dans un premier temps, uniquement des réflexions sur les joints de grain, et ensuite cette théorie a intégré l'effet des surfaces, ce qui a donné lieu à une théorie plus complète que nous avons notée MSS. Des variantes aux deux théories sont ensuite apparues comme celle de Soffer ou de Chawla que nous avons utilisées.

A l'aide de scripts écrits en langage de programmation Python, nous avons pu simuler ou modéliser les différentes équations mathématiques auxquelles ont abouti tous ces modèles théoriques et nous avons fait une étude plus détaillée afin de mieux cerner le comportement de la résistivité en fonction du paramètre spéculaire p et du coefficient de réflexion aux joints de grain R . Pour cela, nous avons considéré des couches de différentes épaisseurs d et de différentes tailles des grains \bar{D} ; nous avons appliqué les résultats obtenus à quatre couches différentes réalisées à partir de métaux de surface de Fermi sphérique comme Ag, Cu, Au et Al.

Nous pensons que notre étude a introduit une certaine originalité en examinant des détails qui ne sont pas réellement rapportés dans la littérature.

Nous espérons à l'avenir compléter cette étude par un traitement purement quantique en faisant appel au formalisme de Kubo[51] appliqué à la résistivité d'une couche mince métallique, à la théorie des perturbations et aux fonctions de Green.

*Annexe A : Quelques
exemples
d'application des
modèles*

Dans cette annexe, nous allons donner quelques exemples d'application des différents modèles théoriques de modélisation de la résistivité électrique à différents types de couches minces métalliques.

1 Diffusion de surface dans les couches minces monocristallines

Des tentatives ont été faites pour étudier la diffusion sur les surfaces limites d'une couche mince (CM) sans présence de diffusion sur les joints de grain (j_g) et cela, en utilisant des CM métalliques déposée par épitaxie. On sait que la difficulté principale dans la croissance d'une CM par épitaxie sur un substrat isolant, est le désaccord de maille qui peut conduire à une mauvaise adhérence de la couche et à la croissance d'îlots isolés et à une épaisseur non uniforme. Un exemple typique est la croissance de Au sur du mica où des CM de ce métal n'ont pu être obtenus par épitaxie que pour une gamme intermédiaire d'épaisseurs [52].

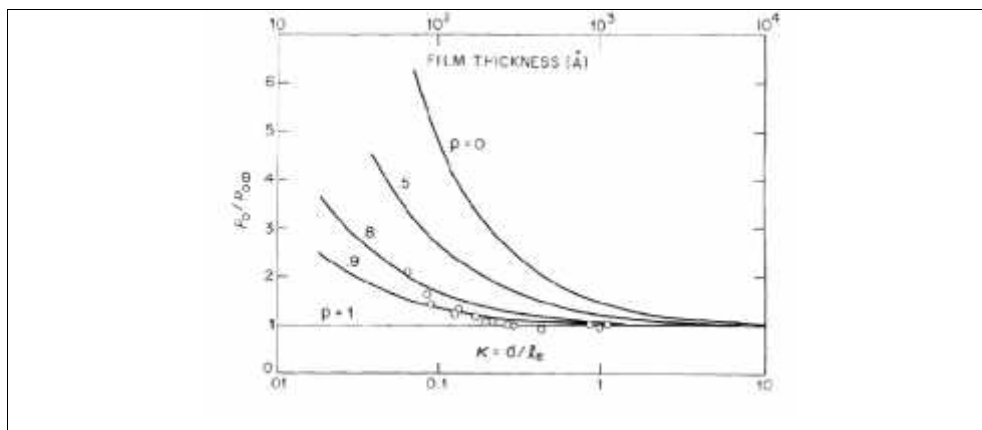


Figure Annexe A. 1 : Représentation de la résistivité normalisée (ρ_v / ρ_{∞}) en fonction de l'épaisseur d'une CM de CoSi_2 normalisée (d / l_e). L'épaisseur est notée d , le libre parcours moyen l_e , la résistivité de la CM ρ_0 et celle d'une couche d'épaisseur infinie ρ_{∞} . Les ronds représentent les valeurs expérimentales (D'après [53]).

Par ailleurs, une porosité importante a été observée pour des couches assez minces, et les couches d'épaisseur supérieure à 160 nm étaient polycristallines. Une étude faite par Hensel et al. [53] est un exemple réussi de cette approche. Ces auteurs ont utilisé des CM du composé CoSi_2 déposées par épitaxie sur un substrat Si, et dont l'épaisseur varie entre 6 et 110 nm. Ils ont conclu que la résistivité du film dépendait très peu de l'épaisseur du film,

c'est-à-dire que *la diffusion de surface était principalement spéculaire*. Ils ont ajusté les valeurs de la résistivité résiduelle à basse température au modèle de diffusion de surface FS et ont donné une estimation du paramètre de diffusion de diffusion spéculaire p , de l'ordre de 0,9. Cette valeur représente une moyenne des paramètres au niveau de la surface couche/substrat et couche/air. Les résultats sont montrés sur la figure Annexe A.1. L'augmentation de la résistivité observée pour leurs échantillons les plus minces a été attribuée à la détérioration de la qualité du film.

Dans leurs travaux sur du cuivre (Cu) déposé par épitaxie sur un substrat Si(100), Krastevet *al.* [54] ont observé une diffusion sur les surfaces de leurs CM de nature entièrement diffuse, qui peut être due aux impuretés et défauts présents.

Dans des CM de Cu(100) déposées par épitaxie sur des substrats MgO(100) à 80°C, Chawla et Gall [55] ont observé une diffusion *partiellement spéculaire* aux interface Cu/Air et Cu/MgO pour des couches d'épaisseur comprise entre 20 nm et 1,5 μm . Les auteurs ont rapporté une valeur du coefficient spéculaire $p = 0,6 \pm 0,1$ à température ambiante, et $p = 0,7 \pm 0,1$ à $T = 77 \text{ K}$ (température N₂ liquide). Cependant, aucune corrélation des résultats avec la microstructure des échantillons n'a été présentée dans cette étude, pour expliquer ces résultats.

Dans une étude portant sur la dépendance de la résistivité vis-à-vis de la température sur des CM d'or (Au(111)) déposées sur des substrats de saphir Al₂O₃(0001), Kästle et *al.* [55] ont montré que le modèle de FS était le plus approprié pour décrire la variation de la résistivité avec la température pour des épaisseurs variant entre 2 et 50 nm .

2 Diffusion combinée sur les surfaces et les joints de grain de couches minces polycristallines

Dans leur modèle de diffusion des électrons sur les joints de grain pour Mayadas et Shatzkes ont supposé qu'il y avait une relation entre la taille des grains et l'épaisseur de la CM film et n'ont pas étudié expérimentalement la microstructure de leurs échantillons. Samble et *al.* [52] ont étudié la résistivité de couches Au monocristallines et polycristallines et les ont caractérisées par diffraction des rayons X (XRD), microscopie électronique à balayage (SEM) et diffraction par réflexion des électrons de haute énergie (RHEED). Expérimentalement, ils n'ont pu décrire que qualitativement (et non quantitativement) la taille des grains, et ont donc adapté également leurs résultats sur la résistivité aux modèles MS et Soffer, en supposant que l'épaisseur dépendait de la taille des grains.

Attekumet *al.* [56] ont étudié la dépendance vis-à-vis de la température de l'effet de taille (*size effect*) de la résistivité dans des couches d'or (Au) évaporé où ils ont constaté que l'augmentation de cette résistivité était presque constante sur une large plage de températures. Les auteurs ont trouvé un excellent ajustement entre les résultats de la dépendance de la résistivité en fonction de la température et le modèle MS, mais ont trouvé des écarts avec le modèle (Soffer + MS). Il a été conclu que la diffusion aux joints de grains expliquait l'effet de taille de la résistivité dans leurs couches minces Au, et que l'effet de la diffusion de surface était dû à un changement de la température effective de Debye.

L'étude de couches minces de Cu déposées sur des substrats Si(100) polarisés ou non, par pulvérisation à l'aide d'un canon à ions Ar (technique IBD, pour *Ion Beam Deposition*), révèlent une dépendance de différentes natures de leur résistivité par rapport à leur épaisseur [57]. Elle a également tenté d'évaluer les effets de l'épaisseur du film d , de la taille moyenne des grains \bar{D} , des impuretés et des défauts morphologiques sur l'augmentation de résistivité des couches de Cu, en plus de la diffusion de surface du modèle FS et de la diffusion aux joints de grains MS.

Lorsque le modèle théorique a été confronté aux résultats expérimentaux, il s'est révélé que les couches de Cu déposées à une tension de polarisation du substrat $V_s = -50 V$ ont montré que leur résistivité électrique était en bon accord avec la courbe théorique à condition que l'épaisseur $d = 2,3\bar{D}$ de et pour $p = 0$ et $R = 0,24$. Pour les films de Cu déposés sans tension de polarisation du substrat ($V_s = 0 V$), il y avait un léger écart entre la courbe théorique et la résistivité mesurée pour $d < 100 \text{ nm}$; cet effet a été attribué aux impuretés présentes dans les couches de Cu. Par conséquent, il s'est avéré que l'effet des impuretés sur la résistivité électrique ne pouvait pas être négligé. Il a également été confirmé que les défauts morphologiques, tels qu'une structure colonnaire obtenue lorsque $V_s = 0 V$, provoquait une forte augmentation de la résistivité même au-dessus de l'épaisseur de 100 nm.

Day *et al.* [58] ont pu obtenir sur deux types de couches de titane (Ti) déposées par pulvérisation cathodique avec deux tailles de grains différentes, sans et avec une polarisation du substrat $V_s = -115 V$. La taille des grains fut déterminée par XRD, mais la microstructure des couches n'est pas mentionnée. Ces auteurs rapportent une résistivité électrique dépendante de l'épaisseur d des couches exposées à l'air ambiant, résultat selon eux de l'adsorption des espèces O_2 et H_2O aux joints de grain. Leurs résultats expérimentaux furent ajustés en utilisant le modèle combine (FS + MS), avec $p = 0$ et $R = 0,1$.

Annexe B :
Définition de la
rugosité d'une
surface

Pour définir le profil d'une surface, on doit déterminer ses composantes de rugosité, d'ondulation et de forme. Sur le plan pratique, le profil relevé doit généralement être redressé car la surface analysée est rarement horizontale. Ce redressement peut être obtenu par soustraction de la droite des moindres carrés ou par ce qu'on appelle un filtrage passe-haut. On obtient alors le profil total à partir duquel on sépare rugosité et ondulation par filtrage. Les filtres, de rugosité ou d'ondulation, sont caractérisés par leur longueur d'onde de coupure (cut-off) notée λ , mesurée suivant la direction générale du profil ; elle est numériquement égale à la longueur d'onde du filtre choisi pour les profils de rugosité et d'ondulation (par exemple 0,8 mm). La longueur d'évaluation, L , sert à évaluer le profil brut ; elle peut contenir une ou plusieurs longueurs de base. Par exemple, sur la figure 1, la longueur $L = 5\lambda$.

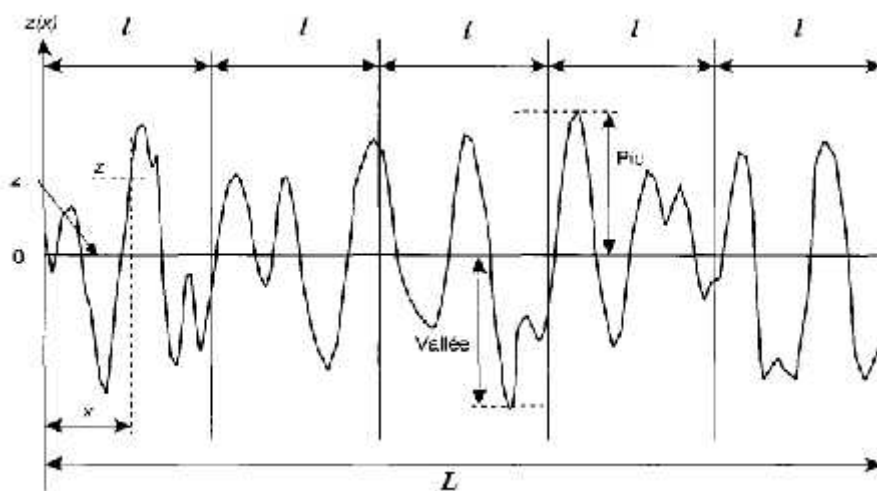


Figure Annexe B. 1 : Profil de surface caractérisé par : longueur d'évaluation L , 5 longueurs de base (cut-off) λ . Les pics et les vallées sont définis par rapport à la ligne moyenne. (D'après A. Cornet et J.-P. Devile, *Physique et Ingénierie des surfaces*, EDP Sciences, France (1998))

Les principaux paramètres d'amplitude sont :

✓ L'écart arithmétique moyen : $R_a = \frac{1}{L} \int_0^L |z(x)| dx$

✓ *L'écart quadratique moyen* : $R_q = \sqrt{\frac{1}{L} \int_0^L z^2(x) dx}$

Annexe C :
Exemples de scripts
Python

1 Script relatif au modèle de Fuchs-Sondheimer

```
1. from scipy import integrate
2. from pylab import *
3. valeurs_k = []
4. for k in arange(0.1, 100, 0.01):
5.     valeurs_k.append(k)
6.     valeurs_R = []
7.     valeurs_integrale = []
8.     for l in range(1):
9.         p1 = float(input("Donner la valeur de p1 :"))
10.        p2 = float(input("Donner la valeur de p2 :"))
11.        valeurs_i = []
12.        valeurs_r = []
13.        for k in valeurs_k:
14.            y = lambda x: (((x**-3-x**-5)*2*(1-p1*p2*exp(-k*x))*(1-exp(-k*x)) - (p1+p2)*(1-exp(-k*x))**2)/(1-p1*p2*exp(-2*k*x)))
15.            i = integrate.quad(y, 1, np.inf)
16.            j = i[0]
17.            g = i[1]
18.            valeurs_i.append(i[0])
19.            print("Pour k=", k, ", la valeur de l'intégrale est:", round(j, 4))
20.            R = (1-(3*j/(4*k)))** -1 # R est le rapport des résistivités
21.            valeurs_r.append(R)
22.            valeurs_R.append(valeurs_r)
23.            valeurs_integrale.append(valeurs_i)
24.            valeurs_R2 = []
25.            valeurs_r2 = []
26.            for k in valeurs_k:
27.                R2 = 1 + 3*(1 - 0.5*(p1 + p2))/(8*k)
28.                valeurs_r2.append(R2)
29.            valeurs_R2.append(valeurs_r2)
30.            plot(valeurs_k, valeurs_R[0], linestyle='dashed', label = "Courbe conforme à l'équation générale (Chawla et al.)", color='k')
31.            #plot(valeurs_k, valeurs_R[1], linestyle='dashed', label = "p1 = 0.05, p2 = 0", color = 'b')
32.            #plot(valeurs_k, valeurs_R[2], linestyle='dashed', label = "p1 = 0.07, p2 = 0", color = 'r')
33.            #plot(valeurs_k, valeurs_R[3], linestyle='dashed', label = "p1 = 0.09, p2 = 0", color = 'g')
34.            #plot(valeurs_k, valeurs_R[4], linestyle='dashed', label = "p1 = 0.10, p2 = 0", color = 'm')
35.            plot(valeurs_k, valeurs_R2[0], linestyle='dashed', label = "Courbe correspondant à d/r" + "\lambda$ >> 1", color='r')
36.            plt.xlabel("d/r" + "\lambda$", fontsize = 16)
37.            plt.ylabel(r"$\rho_{FS}$ / r" + "\rho_i$", fontsize = 16)
38.            xlim(0.58, 50)
39.            ylim(1, 2.5)
40.            legend(loc='lower left', bbox_to_anchor=(0,1.02,1, 0.2), title="$p_1$ = 0 , $p_2$ = 0.16 ", fontsize=8, mode="expand", borderaxespad=0)
```

2 Script relatif au modèle de Mayadas-Shatzkes

```
1. from scipy import integrate
2. from pylab import *
3. valeurs_k = []
4. valeurs_a = []
5. valeurs_R = []
6. valeurs_integrale = []
7. for k in arange( 0.005, 5, 0.001):
8.     valeurs_k.append(k)
9.     p = 0.5
10.    print("\n\n")
11.    for l in range(3):
12.        a = float (input("Donner la valeur de alpha :"))
13.        valeurs_r = []
14.        valeurs_i=[]
15.        for k in valeurs_k:
16.            y = lambda phi,x:(((cos(phi)*cos(phi))/(((1+(a/(cos(phi))*(1-
17.                (1/x**2)**(1/2))))**2))*((x**-3)-(x**-5))*(1-exp(-k*x*(1+(a/(cos(phi))*(1-
18.                (1/x**2)**(1/2)))))))/(1-p*exp(-k*x*(1+(a/(cos(phi))*(1-(1/x**2)**(1/2)))))))
19.            i = integrate.dblquad(y, 1, np.inf, lambda x: 0, lambda y: pi/2)
20.            j = i[0]
21.            g = i[1]
22.            valeurs_i.append(j)
23.            print("Pour k=", k,"Pour a=", a, "la valeur de l'intégrale est:", j )
24.            R = (((1-1.5*a + 3*(a**2) - 3*(a**3)*log(1 + a**-1)) - (6*(1 - p)/(pi*k)**j)**-1 # R est
25.                le rapport des résistivités
26.            valeurs_r.append(R)
27.            valeurs_integrale.append(valeurs_i)
28.            valeurs_R.append(valeurs_r)
29.            print(len(valeurs_R[0]))
30.            print(len(valeurs_R[1]))
31.            print(len(valeurs_R[2]))
32.            print(len(valeurs_k))
33.            xlim(0, 3)
34.            #ylim(0, 15)
35.            plot(valeurs_k, valeurs_R[0], linestyle = 'dashed', label = "a = 1, R = 0,23" , color='k')
36.            plot(valeurs_k, valeurs_R[1], linestyle = 'dashed', label = "a = 5, R = 0,6" , color = 'b')
37.            plot(valeurs_k, valeurs_R[2], linestyle = 'dashed', label = "a = 10, R = 0,75" , color = 'r')
38.            plt.xlabel("d/"r"$\lambda$", fontsize = 16)
39.            plt.ylabel(r"$\rho_{MSS}$/"r"$\rho_i$", fontsize = 16)
40.            legend(loc='lower left',bbox_to_anchor=(0,1.02,1, 0.2), title="", fontsize=8,
41.                mode="expand", borderaxespad=0, ncol = 3)
```

BIBLIOGRAPHIE

- [1]. J. J. Thomson, *Proc. Cambridge Philos. Soc.* **11**, 120(1901)
- [2]. F. Chen et D. Gardner, *IEEE Electron Device Lett.* **19**, 508(1998)
- [3]. P. Kapur et J. P. McVittie, *IEEE Trans. Electron Devices***49**, 590(2002)
- [4]. V. Zhirnov, R. K. Cavin, D. J. C. Herr et T. A. Wooldridge, *IEEE Trans. Semicond. Manuf.* **15**, 157(2002)
- [5]. P. Kapur, J. P. McVittie et K. C. Saraswat, *IEEE Int. Interconnect Tech. Conf.*, 233(2001)
- [6]. K. Fuchs, *Proc. Cambridge Philos. Soc.***34**, 100(1938)
- [7]. E. H. Sondheimer, *Adv. Phys.***1**, 1(1952)
- [8]. A. F. Mayadas et M. Shatzkes, *Phys Rev. B***1**, 1382(1970)
- [9]. C.R. Pichard, C.R. Tellier et A.J. Tosser, *Electrocomp. Sci. Techn.***7**, 235(1981)
- [10]. C. R. Tellier et A. J. Tosser, *Thin Solid Films***44**, 141(1977)
- [11]. C. R. Tellier, C. Boutrit et A. J. Tosser, *Thin Solid Films***44**, 201(1977)
- [12]. K. Seshan, *Handbook of Thin-Film Deposition Processes and Techniques*, Ed. Noyes Publications, New York (2002)
- [13]. H.R. Khan, *Handbook of Thin-Film Technology*, Ed. Springer Berlin (2015)
- [14]. K.S. Sree Harsha, *Principles of Physical Vapor Deposition of Thin Films*, Ed. Elsevier (2005)
- [15]. O.S.I. Fayomi, I.G. Akande, O.P. Abioye et O.B. Fakehinde, *Procedia Manuf.***35**, 1007(2019)]
- [16]. *Thin Films: Preparation, Characterization, Applications*, Eds: M.P.Soriaga, J. Stickney, L.A. Bottomley, et K. Youn-Geun, Ed. Springer Berlin (2002)
- [17] K. Oura, M. Katayama, A. V. Zotov, V. G. Lifshits et A. A. Saranin, *Surface Science: An Introduction (Advanced Texts in Physics)*, Ed. Springer Berlin (2003)
- [18]. G.H. Gilmer et M.H. Grabow *JOM***39**, 19(1987)
- [19]. N. W. Ashcroft et N. D. Mermin, *Physique des Solides*, Ed. EDP Sciences, Paris (2002)

- [20]. E. Grüneisen, *Ann. Phys. (Leipzig)* **16**, 530(1933)
- [21]. H. Ibach et H. Lüth, *Solid-State Physics – An introduction to principles of material science*, Ed. Springer (4^{ème} édition) (2009)
- [22]. Y. Quéré, *Physique des matériaux*, Ecole Polytechnique- Ed. Ellipse, Paris (1988)
- [23]. C. Kittel, *Physique de l'état solide*, Ed. Dunod Paris (8^{ème} édition) (2019)
- [24]. S. Salinas, *Introduction to Statistical Physics*, Ed. Springer New York (2001)
- [25]. L.E. Reichl, *A Modern Course in Statistical Physics*, Ed. Wiley-VCH Berlin (2009)
- [26] P. Kiréev, *La Physique des Semi-conducteurs*, Ed. Mir, Moscou(1975)
- [27]. K. Fuchs, *Proc. Cambridge Philos. Soc.***34**, 100(1938)
- [28]. E. H. Sondheimer, *Adv. Phys.***1**, 1(1952)
- [29]. J. E. Parrott, *Proc. Phys. Soc.* **85**, 1143(1965)
- [30]. J. M. Ziman, *Electrons and Phonons*, Oxford University Press, London (1962)
- [31]. S. B. Soffer, *J. Appl. Phys.* **38**, 1710(1967)
- [32]. J. C. Hensel, R. T. Tung, J. M. Poate et F. C. Unterwald, *Phys. Rev. Lett.***54**, 1840(1985)
- [33]. J.S. Chawla et D. Gall, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 252101(2009)
- [34]. H. Marom et M. Eizenberg, *J. Appl. Phys.***99**, 123705(2006)
- [35]. J. R. Sambles et K C Elsom, *J. Phys. D:Appl. Phys.***15**, 1459(1982)
- [36]. S. M. Rosnagel et T. S. Kuan, *J. Vac. Sci. Technol. B***22**, 240(2004)
- [37]. J. M. Rickman and K. Barmak, *J. Appl. Phys.***112**, 012704(2012)
- [38]. A. F. Mayadas et M. Shatzkes, *Phys Rev. B***1**, 1382(1970)
- [39]. T. Sun, *Thèse de PhD, University of Central Florida -Orlando*, (2009)
- [40]. Y. Kitaoka, T. Tono, S. Yoshimoto, T. Hirahara, S. Hasegawa et T. Ohba, *Appl. Phys. Lett.***95**, 052110 (2009)
- [41]. C.R. Pichard, C.R. Tellier et A.J. Tosser, *Electrocomp. Sci. Techn.***7**, 235(1981)
- [42]. K. Chopra, *Thin Film Phenomena*, McGraw Hill, New York (1965)
- [43]. C. R. Tellier et A. J. Tosser, *Thin Solid Films***44**, 141(1977)
- [44]. C. R. Tellier, C. Boutrit et A. J. Tosser, *Thin Solid Films***44**, 201(1977)

- [45]. C. R. Pichard, C. R. Tellier et A. J. Tosser, *J. Phys. D***12**, 101(1979)
- [46]. D. Gall, *J. Appl. Phys.* 119, 085101(2016)
- [47]. J.R. Sambles et K.C. Elsom, *J. Phys. D: Appl. Phys.***15**, 1459(1982)
- [50]. D.R. Lide, *CRC Handbook of Physics and Chemistry*, 90^{ème} edition, CRC Press (2009)
- [48]. J.-W. Lim, K. Mimura et M. Isshiki, *Appl. Surf. Sci.***217**, 95(2003)
- [49]. A.F. Mayadas, R.Feder et R. Rosenberg, *J. Vac. Sci. Technol.***6**, 690(1969)
- [50]. D.R. Lide, *CRC handbook of Physic and Chemistry*, 90^{ème} edition, CRC Press (2009)
- [51]. R. Kubo, *J. Phys. Soc. Jpn.***12**, 570(1957) &
- [52]. J. R. Sambles, K. C. Elsom et D. J. Jarvis, *Phil. Trans. Roy. Soc. London A***304**, 365(1982)
- [53]. J. C. Hensel, R. T. Tung, J. M. Poate et F. C. Unterwald, *Phys. Rev. Lett.***54**, 1840(1985)
- [54]. E. T. Krastev, L. D. Voice, and R. G. Tobin, *J. Appl. Phys.***79**, 6865(1996)
- [55]. G. Kästle, H.-G. Boyen, A. Schröder, A. Plettl et P. Ziemann, *Phys. Rev. B***70**, 165414(2004)
- [56]. P.M. T. M. van Attekum, P. H. Woerlee, G. C. Verkade et A. A. M. Hoeben, *Phys. Rev. B***29**, 645(1984)
- [57]. J.-W. Lim et M. Isshiki, *J. Appl. Phys.***99**, 094909(2006)
- [58]. M. E. Day, M. Delfino, J. A. Fair et W. Tsai, *Thin Solid Films***254**, 285(1995)