VIBRATIONS THERMIQUES DU RESEAU ET PHONONS

www.9alami.com

Introduction:

Les atomes sont placés de manière très ordonnée dans un cristal. Ce sont les forces inter-atomiques qui leurs confèrent leur arrangement spécifique. Ces forces jouent les mêmes rôles que les ressorts dans un système "masse- ressort". Par conséquent, si on déplace légèrement un atome de sa position initiale et qu'on le relâche, il se mettra à osciller, comme un pendule. Etant donné que cet atome est relié aux autres par les forces électrostatiques qui agissent entre eux, les autres atomes du cristal se mettront eux aussi à vibrer, d'où le nom de vibration cristalline; Il y aura alors propagation d'une onde de déformation dans un solide.

L'étude des différents modes de propagation de ces ondes est un sujet complexe qui faite partie de la "physique de l'état solide". Certains de ces modes sont directement reliés à la propagation du son dans un solide.

L'origine de ces vibrations peut être thermique (l'effet de la température) ou encore sous forme d'excitation électromagnétique (rayonnement infrarouge par exemple).

Le phonon est une notion de la mécanique quantique faisant appel au concept de dualité onde-corpuscule. Si l'étude des phonons prend une part importante dans la physique de la matière condensée, c'est qu'ils jouent un rôle important dans un grand nombre de propriétés des solides dont : La capacité calorifique ou capacité à échanger la chaleur ; La conductivité thermique, ou capacité à conduire la chaleur ; La conductivité électrique, ou capacité à conduire le courant ; La capacité à propager le son ; L'effet des vibrations du réseau sur l'interaction effective entre deux électrons d'un métal est à la base de la compréhension de la supraconductivité. Les vibrations du réseau peuvent jouer un rôle dans la réponse d'un solide en présence d'une radiation (X, visible, neutrons…) ;

Traitement classique des vibrations du réseau

Introduction:

Les atomes d'un cristal ne sont pas fixes. Sous l'effet de la température ou d'une excitation électromagnétique, ils oscillent par rapport à une position d'équilibre (stable). Si un noyau se déplace, il en résulte une modification du nuage électronique qui est due à un effet d'écran (force de rappel de la part des atomes voisins pour le ramener à cette position).

Si les amplitudes d'oscillation sont faibles, on dit qu'elles sont harmoniques c'est-à-dire que les forces sont proportionnelles aux déplacements (loi de Hooke).

Définitions:

Le mouvement est parallèle à la direction de propagation si l'onde est longitudinale (voir figure 1). Le mouvement est perpendiculaire à la direction de propagation si l'onde est transversale (voir figure 2).

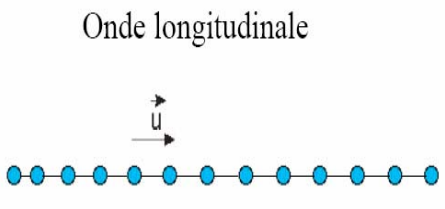


Figure 1

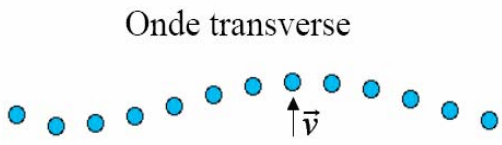


Figure 2

A- Cas d'un atome par maille élémentaire (chaîne monoatomique):

Nous considérons les cristaux dont la maille élémentaire contient un seul atome de masse m, et de distance inter-atomique entre les atomes les plus proches voisins est a.

Quand on parle de la direction, on parle des plans (nommés plans atomiques) perpendiculaires à la direction du propagation de l'onde qu'on caractérise par le vecteur d'onde de norme K.

Nous pouvons apprendre beaucoup de choses sur les forces reliant les différents plans atomiques à partir de la relation entre la pulsation ω et la norme du vecteur d'onde K.

Soit $u_n(t)$ le déplacement de l'atome s par rapport à son point d'équilibre (voir figure 3).
Comme première approximation, nous considérons les atomes comme étant reliés entre eux par des ressorts et on fait l'hypothèse de petites oscillations.
On se propose ici d'étudier le nième atome et ses deux proches voisins (s-1) et (s+1) i^{ème} atomes.

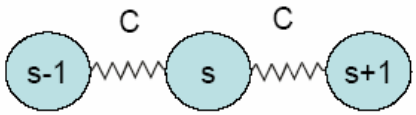


Figure 3

On appliquant le principe fondamental de la dynamique sur l'atome s on aura :

$$F = Ma = M\frac{d^2u_s}{dt^2} \qquad (1)$$

$F_s = \left[C(u_{s+1}(t) - u_s(t)\right] + \left[C(u_{s-1}(t) - u_s(t)\right]$ où C est la constante du ressort.

On a la somme des contributions du ressort de droite et du ressort de gauche.
Alors l'équation devient:

$$F = Ma = M\frac{d^2u_s(t)}{dt^2} = C(u_{s+1}(t) + u_{s-1}(t) - 2u_s(t)) \qquad (2)$$

Essayons la solution qui dépend seulement du temps :

$$u_s(t) = u_s e^{-i\omega t} \qquad \Rightarrow \qquad \frac{d^2u_s(t)}{dt^2} = -\omega^2 u_s e^{-i\omega t}$$

Donc :

$$-M\omega^2 u_s = C(u_{s+1} + u_{s-1} - 2u_s)$$

Essayons la solution de la forme :

$$u_s = ue^{iKsa}$$

Remplaçant là dans l'équation de ω en fonction de la constante C, on aura alors :

$$\Leftrightarrow \quad -\omega^2 Mue^{iksa} = C\left(ue^{ik(s+1)a} + ue^{ik(s-1)a} - 2ue^{iksa}\right)$$

$$\Leftrightarrow \quad -\omega^2 Mue^{iksa} = Cue^{iksa}\left(e^{ika} + e^{-ika} - 2\right)$$

$$\Leftrightarrow \quad -\omega^2 M = C\left(2\cos(ka) - 2\right)$$

$$\Leftrightarrow \quad -\omega^2 M = C\left(2\cos(ka) - 2\right)$$

$$\Leftrightarrow \qquad \omega^2 = \frac{2C}{M}\left(1-\cos(ka)\right)$$

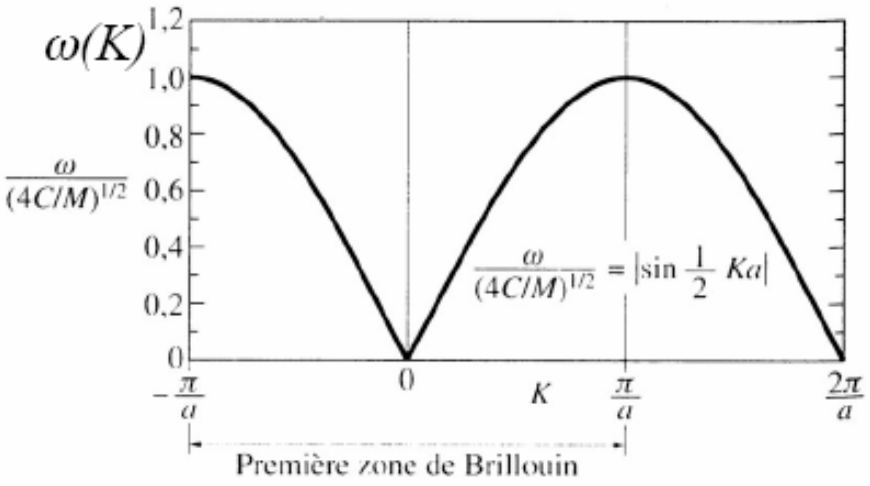
Et comme : $\cos(2\theta) = 1 - 2\sin^2(\theta)$ Alors $\omega^2 = \frac{4C}{M}\left(\sin^2\left(\frac{1}{2}ka\right)\right)$

D'où $\omega(k) = \sqrt{\frac{4C}{M}}\left|\sin\left(\frac{1}{2}ka\right)\right|$ (3)

Puisque : $\omega_0 = \sqrt{\frac{C}{M}}$ Alors on peut écrire : $\omega(k) = \omega_0 2\left|\sin\left(\frac{ka}{2}\right)\right|$ (4)

C'est la relation de dispersion. La représentation graphique de ω en fonction de k est donnée par la figure 4:

Ω_k se compose de demi-arches de sinusoïde.



Figur4a

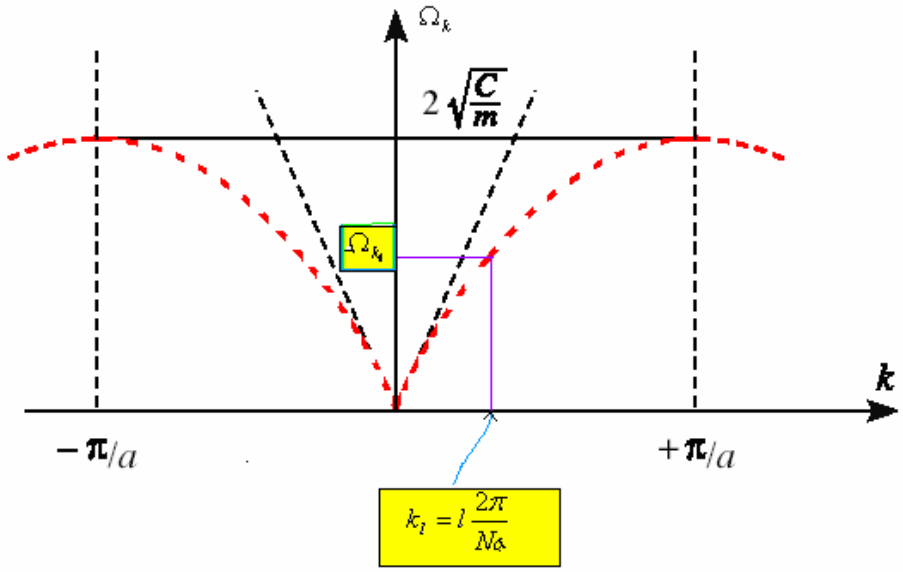


Figure 4b

Remarques :

La constante de rappel, la masse des atomes et la distance entre voisins sont des valeurs prises égales à l'unité.

$$\omega_{max} = \omega\left(\frac{\pi}{a}\right) = 2\sqrt{\frac{k}{m}}$$

Cas particulier :

L'onde se propage vers la droite comme vers la gauche, d'où le domaine de k à considérer peut être spécifié par :

$$-\pi \le ka \le \pi \qquad \text{Ou bien} \qquad -\frac{\pi}{a} \le k \le \frac{\pi}{a}$$

Ce domaine de valeurs de k s'appelle la première zone de Brillouin du réseau linéaire. D'où les valeurs extrêmes de k dans cette zone sont : $k_{max} = \pm\frac{\pi}{a}$

Première zone de Brillouin :

On a : $u_s = ue^{i\left(k+\frac{2\pi}{a}\right)sa} = ue^{iksa}e^{i\left(\frac{2\pi}{a}\right)sa} = ue^{iksa}$

k et k + G correspondent à des déplacements équivalents, avec $G = \frac{2\pi}{a}$.

$\Rightarrow$ $\boxed{\omega(k+G) = \omega(k)}$

ω(K) est périodique dans l'espace réciproque

*Exemple.

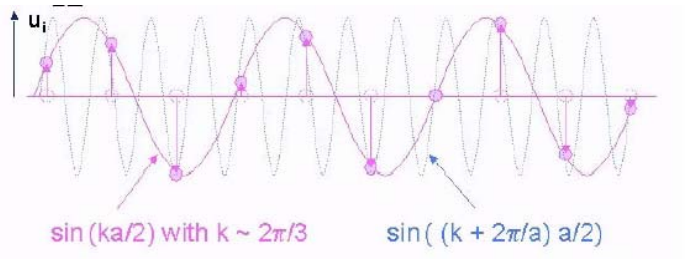


Figure 5

Vitesse de groupe :

Par définition la vitesse de groupe est donnée par la relation :

$$v_g = \frac{d\omega}{dk} \qquad (5)$$

Dans le cas d'une chaîne monoatomique et partir de la relation de dispersion on obtient:

$$v_g = \sqrt{\frac{Ca^2}{M}}\cos\left(\frac{1}{2}ka\right)$$

Pour k ≅ 0, on retrouve le modèle élastique :

Le développement limité de sinus au voisinage de k = 0 : $\sin\left(\frac{ka}{2}\right) \approx \frac{ka}{2}$

Donc : $\omega(k) = \sqrt{\frac{4C}{M}}.\frac{ka}{2}$

$$= \sqrt{\frac{4C}{M4}}ka \quad = \sqrt{\frac{C}{M}}ka$$

D'où : $\omega^2 = \left(\frac{C}{M}a^2\right)k^2$ et comme $\omega(k) = v_g k$

Alors $v_g = \sqrt{\frac{Ca^2}{M}}$ (6)

Quelques vitesses de groupe particulier sous forme de schéma graphique:

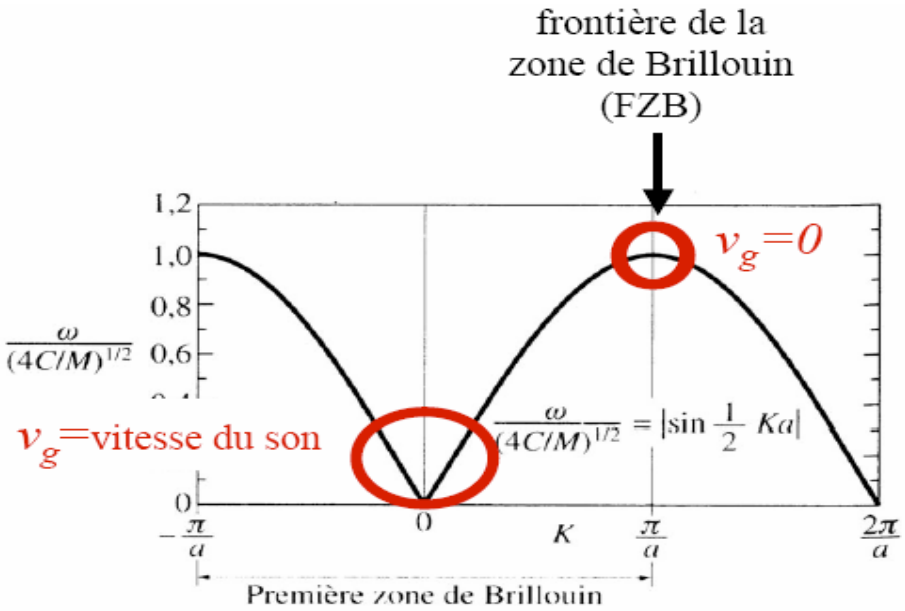


Figure 6

Remarques importantes :

Un phonon n'est pas une véritable particule car son existence traduit un état de vibration collective des atomes du cristal.

Revenons à la loi d dispersion (relation de dispersion) :

$$\Omega_k = 2\sqrt{\frac{C}{m}}\left|\sin\frac{ka}{2}\right|$$

- $\Omega_k = 0$ pour $k = 0$.
- Pour k très petit, c'est-à-dire $k << \frac{1}{a}$: $\Omega_k \approx \sqrt{\frac{C}{m}}ak = V_s k$ où $V_s = \sqrt{\frac{C}{m}}a$;

Ω_k varie linéairement avec k.

La condition $k << \frac{1}{a}$ exprime que la longueur d'onde $\lambda = \frac{2\pi}{k}$ associée au mode considéré est très grande devant le paramètre du réseau a.

Pour de telles λ, la vitesse de phase $V_\varphi = \frac{\Omega_k}{k} = V_s$ est indépendante de k : le milieu n'est pas donc dispersif.

Ceci implique qu'un paquet d'ondes où n'interviennent que de faible k, se propage sans déformation à la vitesse V_s.

Comme les ondes acoustiques ont des $\lambda >> a$; V_s est alors la vitesse du son dans le cristal.

Alors on a :

$$q_n(t) = \frac{1}{\sqrt{N'}}\left\{\sum_k \alpha_k e^{ik(x_n - V_s t)} + \alpha_k^* e^{-ik(x_n - V_s t)}\right\}$$

Le déplacement du n-iéme atome est donc une fonction $g\left(t-\frac{x_n}{V_s}\right)$, par conséquent :

$$q_0\left(t-\frac{x_n}{V_s}\right)=q_n(t)$$

C'est-à-dire que l'oscillation de l'atome n et la même que celle de l'atome en n!0, mais décalé du temps que met l'onde à parcourir la distance $x_n = n.a$ qui sépare en moyenne les deux atomes (en x_0 et x_n).

- Si $k \approx \frac{1}{a}$, la structure discontinue de la chaîne intervient et la pulsation Ω_k croit moins vite avec k que dans le cas précédent des remarques.

Le milieu est alors dispersif et le paquet d'ondes se délace à la vitesse de groupe $V_g = \frac{d\Omega_k}{dk} \neq V_\varphi$.

- Quand k s'approche des limites de la 1ére zone de Brillouin ($k \to \pm\frac{\pi}{a}$), la vitesse V_g tend vers 0. Il n'y a plus de propagation de l'onde élastique.
- $V_g = \left.\frac{d\Omega_k}{dk}\right)_{\frac{\pi}{a}} = \sqrt{\frac{C}{m}}a.\cos\frac{\pi}{a} = 0$
- Le modèle simple à une dimension que nous avons développé a permis de dégager des notions physiques importantes :

1. Le quanta d'énergie phonon associé aux modes propres de vibration du réseau.

2. Dispersion du milieu.

Dans la réalité, le réseau cristallin est tridimensionnel. Ainsi un mode propre de vibration est caractérisé par un véritable vecteur d'onde $\vec{k}$.

Par conséquent Ω_k dépend de l'intensité de $\vec{k}$ mais aussi de sa direction.

Il peut se produire (comme dans un cristal ionique) que les nœuds soient par des atomes différents régulièrement (plus d'un atome par maille). C'est ce qu'on propose d'étudier dans la partie suivante.

B- Cas de deux atomes par maille élémentaire (chaîne diatomique):

Introduction :

Dans cette partie les définitions et les remarques sont presque équivalentes à celles de la chaîne monoatomique, la seule différence se remarquera au niveau du nombre des équations du mouvement.

Equations du mouvement et relations de dispersion :

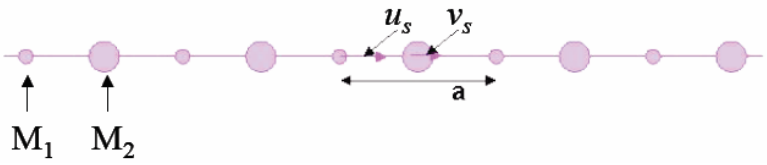


Figure 7

Nous n'envisageons que les ondes se propageant dans une seule direction de symétrie telle qu'un plan d'atomes ne contienne qu'un seul type d'ions.
En utilisant la relation et les solutions du cas monoatomique présenter dans le cas I), on obtient:
Les équations de mouvement pour tous les atomes de la chaîne :

$$M_1 \frac{d^2u_s(t)}{dt^2} = C\left(v_s(t) + v_{s-1}(t) - 2u_s(t)\right)$$

$$M_2 \frac{d^2v_s(t)}{dt^2} = C\left(u_{s+1}(t) + u_s(t) - 2v_s(t)\right)$$

Les solutions sont de types : $u_s(t) = ue^{i(ksa-\omega t)}$; $v_s(t) = ve^{i(ksa-\omega t)}$

$$\Rightarrow \qquad -\omega^2 M_1 u = Cv(1+e^{-ika}) - 2Cu$$

$$\Rightarrow \qquad -\omega^2 M_2 v = Cu(1+e^{ika}) - 2Cv$$

Le système d'équations linéaires homogènes à deux inconnues u, v, n'a une solution non triviale que si le déterminant des coefficients de u et v s'annule :

$$\begin{vmatrix} 2C - M_1\omega^2 & -C(1+e^{-ika}) \\ -C(1+e^{ika}) & 2C - M_2\omega^2 \end{vmatrix} = 0$$

$$\Rightarrow \qquad M_1M_2\omega^4 - 2C(M_1+M_2)\omega^2 + 2C^2(1-\cos ka) = 0 \qquad (7)$$

Pour k petit : cos (ka) ≅ 1-$\frac{1}{2}$ k^2a^2 +…

$$\Leftrightarrow \qquad M_1M_2\omega^4 - 2C(M_1+M_2)\omega^2 + C^2k^2a^2 = 0$$

$$\Leftrightarrow \qquad \omega_{\pm}^{\,2} \approx \frac{2C(M_1+M_2) \pm \sqrt{4C^2(M_1+M_2)^2 - 4M_1M_2C^2k^2a^2}}{2M_1M_2}$$

$$\Leftrightarrow \qquad \omega_{\pm}^{\,2} \approx \frac{2C(M_1+M_2) \pm 2C(M_1+M_2)\sqrt{1 - \frac{4M_1M_2C^2k^2a^2}{4C^2(M_1+M_2)^2}}}{2M_1M_2}$$

$$\Leftrightarrow \qquad \omega_{\pm}^{\,2} \approx \frac{2C(M_1+M_2) \pm 2C(M_1+M_2)\left(1-\frac{1}{2}\frac{M_1M_2k^2a^2}{(M_1+M_2)^2}\right)}{2M_1M_2}$$

$$\Leftrightarrow \qquad \omega_{\pm}^{\,2} \approx \frac{2C(M_1+M_2) \pm \left(2C(M_1+M_2)-\frac{M_1M_2Ck^2a^2}{(M_1+M_2)}\right)}{2M_1M_2}$$

Deux séries de solutions :
1. solutions (-) : mode vibrationnel acoustique.
2. solutions (+) : mode vibrationnel optique.

$$\omega^2_{+} \approx \frac{2C(M_1+M_2)}{M_1M_2} - \frac{CK^2a^2}{2(M_1+M_2)} \qquad (8)\ \textbf{(Mode optique)}$$

$$\omega^2_{-} \approx \frac{C}{2(M_1+M_2)}K^2a^2 \qquad (9)\ \textbf{(Mode acoustique)}$$

La représentation graphique qui résume ces relations :

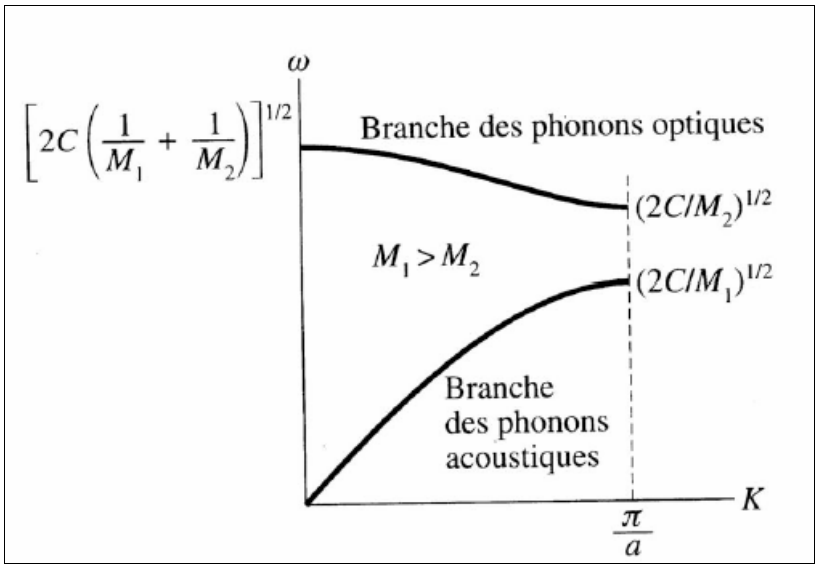


Figure9

Pour $K = \frac{\pi}{a}$; cos Ka = cos π = -1

On revient à (7) et on obtient les solutions réelles possibles suivantes:

$$\omega^2 = \frac{C(M_1+M_2) \pm \sqrt{C^2(M_1+M_2)^2 - 4C^2M_1M_2}}{M_1M_2}$$
$$= \frac{C(M_1+M_2) \pm C(M_1-M_2)}{M_1M_2}$$

D'où $\omega^2_{+} = \frac{2C}{M_2}$ (10) et $\omega^2_{-} = \frac{2C}{M_1}$ (11)

Première zone de Brillouin :

Le domaine de la première zone de Brillouin est $-\frac{\pi}{a} \le k \le \frac{\pi}{a}$, où a est la période du réseau.

Pour $k_{max} = \pm\frac{\pi}{a}$ les racines sont : $\omega^2 = \frac{2C}{M_1}$; $\omega^2 = \frac{2C}{M_2}$

La représentation graphique de la relation de dispersion est donnée par :

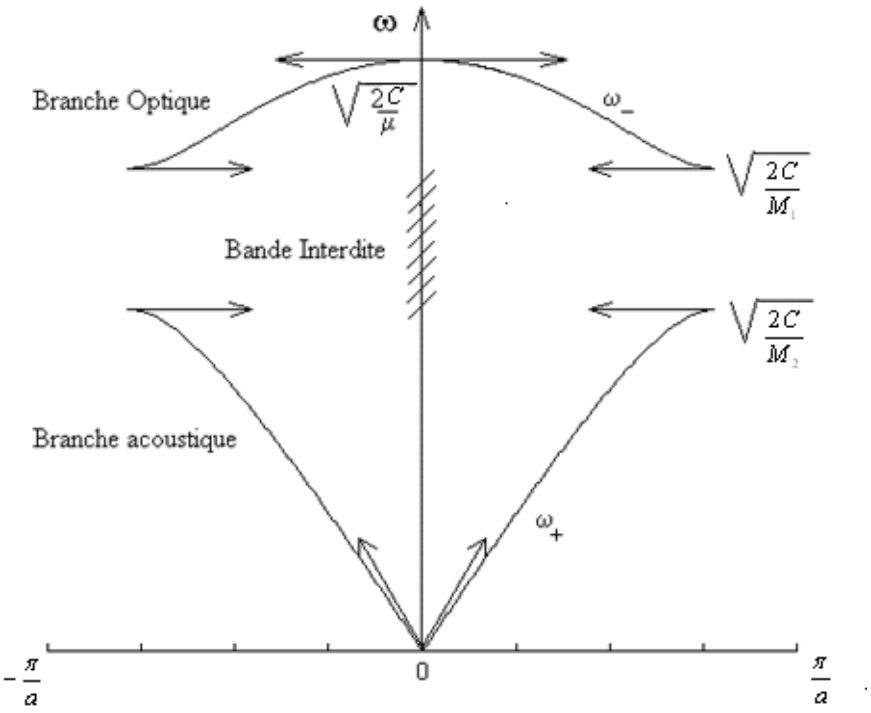


Figure10

Avec $\mu = \frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2}$

$$\Omega_{1k} = \Omega_{acous} \quad \text{et} \quad \Omega_{2k} = \Omega_{opt.}$$

On définit μ la masse réduite : $\left(\frac{1}{\mu} = \frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2}\right)$

On remarque que les Ω_{1k} coïncident avec Ω_k de la deuxième partie qui caractérise les pulsations de phonons pour un cristal unidimensionnel où l'atome a une masse $M = M_1 + M_2$

Si Ka<<1 : $\Omega^2_{1k} = \frac{C}{M_1 + M_2}\frac{k^2a^2}{2}$

$$\Omega^2_{2k} = 2\frac{C}{\mu}$$

$\Omega_{1k} \xrightarrow{k\to\infty} 0$ et $\Omega_{2k} \neq 0$

Ω_{1k} est associée aux vibrations acoustiques et Ω_{2k} est associée aux modes de vibrations optiques.

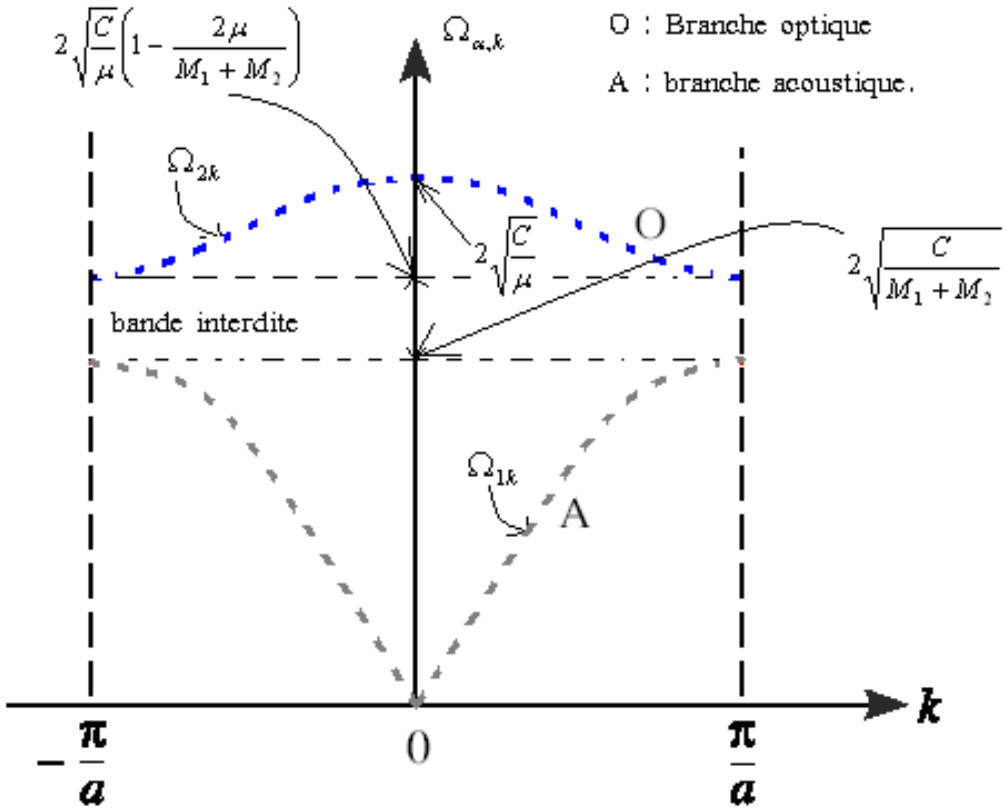


Figure 8

On remarque que les solutions ondulatoires n'existent pas dans la bande interdite dans le cas d'un réseau diatomique.

Cas particulier :

$M_1 >> M_2$: $2\sqrt{\frac{C}{M_1+M_2}} \to 2\sqrt{\frac{C}{M_1}}$ $\left(k=\frac{\pi}{a}\right) \Rightarrow$ Branche acoustique.

$2\sqrt{\frac{C}{\mu}} \to 2\sqrt{\frac{C}{M_2}}$ $(k=0) \Rightarrow$ Branche optique.

$2\sqrt{\frac{C}{\mu}}\left(1-\frac{2\mu}{M_1+M_2}\right) \to 2\sqrt{\frac{C}{M_2}}$ $\left(k=\frac{\pi}{a}\right) \Rightarrow$ Branche optique.

Dans une branche acoustique, les deux atomes de la même maille oscillent dans le même sens; par contre pour une branche optique, les deux atomes de la même maille oscillent dans des sens opposés avec des amplitudes dépendant de leurs masses.
Dans la maille des cristaux ioniques, les vibrations "optiques" donnent naissance à une variation importante du moment dipolaire électrique de la maille : ce qui justifie l'appellation de cette branche de vibration.

Quantité de mouvement d'un phonon

Il faut toutefois bien réaliser que les phonons d'un réseau ne portent pas de quantité de mouvement. On peut démontrer ce résultat à une dimension, on a en effet

$$p = m\frac{d}{dt}\sum_{n=1}^{N} u_n(t)$$

Où $u_n(t)$ est donné par :

$$u_n(t) \approx a_1 \exp\left[i\left(k_1 na - i\omega_1 t\right)\right]$$

Et

$$k_1 = \frac{2\pi}{a}\frac{l}{N}$$

En remplaçant dans l'expression de ci-dessus, il vient :

$$p \cong -i\omega_1 M \exp\left(-i\omega_1 t\right)\sum_{n=1}^{N}\exp\left(ik_1 na\right)$$

La somme est une série géométrique qui s'annule pour toutes les valeurs k_l compatibles avec les conditions aux bords de la chaîne linéaire. On a ainsi démontré, dans le cas classique, que la quantité de mouvement associée au mode normal k_l, donc au phonon k_l, s'annule.

Dans le cas où $k_1 = 0$, les amplitudes sont les mêmes pour tous les ions du cristal, la quantité de mouvement résultante est non nulle. $k_1 = 0$ corresponds à une translation globale du cristal, ce n'est pas un mode propre du vibration.

Toutefois, c'est le déplacement en bloc du cristal qui assure la conservation de la quantité de mouvement lors d'une interaction entre une particule (ou un rayonnement) et le cristal.

Ce calcul à une dimension se généralise immédiatement à 3 dimensions, de même que lorsque les vibrations du réseau sont décrites de manière quantique.