

MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE

UNIVERSITÉ MOULOUD MAMMARI DE TIZI-OUZOU
FACULTÉ DES SCIENCES
DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE

DOCTORAT
SPÉCIALITÉ : PHYSIQUE
OPTION : PHYSIQUE DES MATÉRIAUX

Présentée par :

RABIA Mohammed Saïd

Thème :

**Diffusion d'ondes vibratoires dans les nanostructures
cristallines désordonnées quasi-tridimensionnelles**

le 06/11/2008, devant le jury composé de :

| | | | | |
|---------|------------|------------------------|-----------------------|------------|
| Mouloud | BENAKKI, | Professeur, | U. M. M. T. O, | Président |
| Saïd | BOUARAB, | Professeur, | U. M. M. T. O, | Rapporteur |
| Nadir | BELDJOUDI, | Maître de Conférences, | U. M. M. T. O, | Examineur |
| Arezki | MOKRANI, | Maître de Conférences, | Université de Nantes, | Examineur |
| Rachid | TIGRINE, | Maître de Conférences, | U. M. M. T.O, | Examineur |
| Omar | LAMROUS, | Professeur, | U. M. M. T. O, | Invité |

Remerciements

Je remercie infiniment le professeur Saïd BOUARAB d'avoir accepté de diriger ce travail de thèse et d'en être le rapporteur. Comme tout pari sur l'avenir, celui-ci comportait des risques mais j'espère que le voici rassuré. Merci de m'avoir fait confiance et de m'avoir soutenu lorsque cela était nécessaire. Merci de votre gentillesse.

Je remercie également le professeur Mouloud BENAKKI qui a bien voulu présider le jury de thèse. Je voudrais, par la même occasion, lui exprimer toute ma gratitude pour ses incessants encouragements.

J'ai accompli cette thèse au Laboratoire de Mécanique des Structures et Energétique. J'aimerais remercier le professeur Amar BOUZZOUNI, directeur de cette structure, et tous les collègues pour leur aide et leur écoute qui ont été un élément important de la réussite de ce travail. Merci en particulier aux collègues post graduants pour leur patience.

Mes remerciements vont également au professeur Hamid BOUZAR, au professeur Omar LAMROUS, au docteur Arezki MOKRANI ainsi qu'au docteur Rachid TIGRINE qui m'ont fait l'honneur de participer au Jury. Je leur suis fort reconnaissant.

Enfin, je n'oublierais pas de remercier mon épouse et mes enfants pour leur compréhension. Merci.

Sommaire

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

Chapitre 1 :

THÉORIE DE LA MÉTHODE DE RACCORDEMENT

| | |
|---|----|
| 1. 1 - Introduction..... | 4 |
| 1. 2 - Etude dynamique..... | 7 |
| 1. 2. 1 - Déplacements vibrationnels..... | 9 |
| 1. 2. 2 - Equations du mouvement..... | 9 |
| 1. 3 - Propriétés du spectre vibrationnel..... | 11 |
| 1. 4 - Phonons de surface et résonance..... | 14 |
| 1. 4. 1 - Phonons de surface..... | 14 |
| 1. 4. 2 - Résonance et densité spectrale des déplacements de surface..... | 15 |
| 1. 4. 3 - Propriétés de la matrice de diffusion..... | 18 |
| 1. 4. 4 - Singularités de Van Hove..... | 20 |
| 1. 5 - Organigramme de la méthode..... | 21 |

Chapitre 2 :

DYNAMIQUE VIBRATIONNELLE DU RÉSEAU PARFAIT

| | |
|--|----|
| 2. 1 - Introduction..... | 23 |
| 2. 2 - Modes Propageants..... | 24 |
| 2. 2. 1 - Etapes préliminaires..... | 24 |
| 2. 2. 2 - Ecriture des équations du mouvement..... | 25 |
| 2. 2. 3 - Matrice dynamique - Equations propres..... | 28 |
| 2. 2. 4 - Relations de dispersion..... | 30 |
| 2. 2. 5 - Bande passante du système..... | 35 |
| 2. 3 - Modes évanescents..... | 37 |

| | |
|---|----|
| 2. 3. 1 - Calcul des facteurs d'atténuation..... | 37 |
| 2. 3. 2 - Tri des valeurs et vecteurs propres | 40 |
| 2. 3. 3 - Représentation spatiale des modes de vibration..... | 41 |
| 2. 4 - Vitesses de groupe des modes propageants..... | 46 |
| 2. 4. 1 - Méthode des différences finies..... | 46 |
| 2. 4. 2 - Méthode perturbative..... | 47 |
| 2. 4. 3 - Courbes des vitesses de groupe..... | 48 |
| 2. 5 - Conclusion..... | 50 |

Chapitre 3 :

DIFFUSION DE PHONONS PAR LES DÉFAUTS DE VOLUME

| | |
|---|----|
| 3. 1 - Introduction..... | 52 |
| 3. 2 - Description du modèle..... | 54 |
| 3. 3 - Mise en forme du problème..... | 55 |
| 3. 3. 1 - Déplacements..... | 57 |
| 3. 3. 2 - Coefficients de transmission et de réflexion..... | 58 |
| 3. 3. 3 - Matrice dynamique du défaut..... | 59 |
| 3. 4 - Résultats numériques et discussions..... | 61 |
| 3. 4. 1 - Défaut de substitution..... | 61 |
| 3. 4. 1. 2 - Défaut de ressort..... | 67 |
| 3. 4. 1. 3 - Angle d'incidence quelconque..... | 72 |
| 3. 4. 1. 4 - Défaut séparé..... | 75 |
| 3. 4. 1. 3 - Séquences de défauts..... | 78 |
| 3. 4. 1. 5 - Défaut étendu..... | 80 |
| 3. 4. 2 - Défaut interstitiel..... | 81 |
| 3. 4. 3 - Défaut lacunaire..... | 86 |
| 3. 5 - Conclusion..... | 87 |

Chapitre 4 :

ETATS D'ENERGIE LOCALISÉS AU VOISINAGE DU DÉFAUT

| | |
|--------------------------|----|
| 4. 1 - Introduction..... | 89 |
|--------------------------|----|

| | |
|---------------------------------------|----|
| 4. 2 - Principe de calcul..... | 90 |
| 4. 3 - Résultats et discussions..... | 91 |
| 4. 3. 1 - Défaut de substitution..... | 92 |
| 4. 3. 2 - Défaut interstitiel..... | 95 |
| 4. 3. 3 - Défaut lacunaire..... | 96 |
| 4. 4 - Conclusion..... | 97 |

Chapitre 5 :

DENSITÉS SPECTRALES ET DENSITÉS D'ETAT DES PHONONS

| | |
|--|-----|
| 5. 1 - Introduction..... | 98 |
| 5. 2 - La matrice de Green..... | 99 |
| 5. 3 - Densité spectrale du système..... | 101 |
| 5. 4 - Densité spectrale dans la région de volume..... | 102 |
| 5. 5 - Résultats et discussions..... | 103 |
| 5. 5. 1 - Défaut de substitution..... | 103 |
| 5. 5. 2 - Défaut interstitiel..... | 104 |
| 5. 5. 3 - Défaut lacunaire..... | 110 |
| 5. 6 - Conclusion..... | 112 |
| Conclusions & Perspectives1..... | 114 |

Annexes

| | |
|---|-----|
| A1 - Calcul des éléments de la matrice de Green..... | 117 |
| A2 - Approximation harmonique des forces centrales..... | 120 |
| A3 - Déplacements quadratique moyen..... | 123 |
| Bibliographie..... | 125 |

Introduction

Au cours des dernières décennies, la physique en basse dimension a connu un essor expérimental considérable et a inspiré de nombreux développements théoriques [1-3]. Les modèles étudiés permettent, en effet, de pousser les calculs analytiques jusqu'à leur terme, par exemple dans le cadre des modèles intégrables unidimensionnels ou certains modèles désordonnés. Les méthodes expérimentales sont basées sur la spectroscopie des pertes d'énergie électroniques (EELS) [4], les diffusions inélastiques de neutrons (INS) [5] ou par l'atome d'hélium (HAS) [6-10], la microscopie à effet tunnel (Scanning Tunneling Microscope, STM) [11] ou la microscopie à balayage (scanning force tunneling microscopy SFM) [12]. En parallèle, les méthodes théoriques utilisent des simulations dynamiques ou des modèles « masse-ressort » dont l'Hamiltonien est diagonalisé par des techniques standard d'algèbre linéaire.

L'intérêt des systèmes mésoscopiques est maintenant renouvelé à cause des progrès actuels consentis dans le domaine de l'élaboration de composants électroniques de plus en plus miniaturisés. Cette nouvelle technologie permet de structurer artificiellement la matière aux échelles nanométriques ; ce qui ouvre de nombreuses possibilités dans l'étude des phénomènes quantiquement cohérents. Elle suscite également un intérêt fondamental en réalisant des modèles physiques qui permettent d'explorer les caractéristiques des interactions dans des situations quasi-idéales. De nombreux travaux dans le domaine de la recherche industrielle et universitaire sont en cours. Les effets mésoscopiques se manifestent à travers l'interférence quantique. Dans les systèmes désordonnés, les différents chemins (impuretés visités) interfèrent et la conductance devient très sensible à la réalisation concrète du désordre (position des impuretés dans l'échantillon) et aux perturbations qui altèrent la phase des phonons. Ces fluctuations de conductance sont une espèce d'empreinte digitale des échantillons individuels et ont des propriétés d'universalité remarquables [13].

Depuis une quinzaine d'années, le régime mésoscopique fait l'objet d'une activité de recherche très intense. Les phénomènes de diffusion et de localisation induits dans l'étude de tels systèmes, si possible par des méthodes analytiques et exactes, ont de tout temps intéressé les chercheurs [14-17] ; la motivation de base étant la compréhension des limitations que le désordre structurel (impuretés, défauts, etc.) ou autre, peut induire sur les propriétés physiques des mécanismes électroniques. Les nombreuses applications pratiques intéressent aussi bien la métallurgie classique, l'électrochimie, la catalyse que l'électronique...

Les bases du transport cohérent, dit quantique, en régime mésoscopique et leur généralisation aux systèmes multi-canaux ont été introduites par Landauer [18] qui a relié la conductance du système, considéré comme un guide d'ondes perturbé par des défauts, à sa

matrice de diffusion. Depuis, de nombreux auteurs [14-26] ont adopté ce modèle et ont montré que la diffusion multiple introduisant des effets d'interférences occupe une place privilégiée dans la description des phénomènes de transport. Dans ce sens, un grand nombre d'expériences est mené dans différents domaines de la physique afin d'étudier les propriétés des systèmes mésoscopiques désordonnés. Deux différents régimes sont à distinguer : diffusions *élastique* et *inélastique* [18]. La différence essentielle entre les deux est que cette dernière détruit la phase et devient responsable de la dissipation d'énergie, alors que la première qui conserve la phase ainsi que l'énergie, introduit les effets d'interférences dus à la diffusion cohérente entre défauts. La diffusion élastique est un outil essentiel dans l'investigation des propriétés structurelles des matériaux, dans la limite des longueurs d'onde. Les rayons X, par exemple, qui sont largement utilisés dans l'analyse des structures, ont leur limite à l'échelle nanométrique. Ici, les ondes vibratoires peuvent aboutir à une alternative intéressante, au moins dans les cas où les probabilités de diffusion inélastique dues aux diffusions électron-phonon et phonon-phonon peuvent être gardées suffisamment petites.

Dans ce travail, nous étudions la diffusion d'ondes vibratoires dans un cristal infini de faible épaisseur, assimilé à un guide d'onde parfait quasi-tridimensionnel, comportant différents types de défauts ou diffuseurs, dans le cadre de l'approximation harmonique [26,27]. L'analyse présentée intéresse essentiellement la diffusion de phonons par un défaut de structure localisé en volume. Ce faisant, nous avons utilisé un modèle quasi-unidimensionnel dans une direction de symétrie donnée ainsi que la méthode de raccordement [27,28]. Ce modèle mène à des résultats détaillés des vecteurs déplacement atomiques aussi bien à l'intérieur qu'à l'extérieur de la zone du défaut. Cette description peut être appliquée aussi bien à l'échelle atomique que macroscopique. Quant à la technique de raccordement, elle est introduite pour le calcul de la section de diffusion aux inhomogénéités. Elle permet aussi une étude approfondie des phonons localisés [29-31] et de la diffusion de phonons par un défaut de surface en utilisant le même formalisme mathématique qu'en volume [20-24,32].

De grandes similitudes entre la diffusion électronique et la diffusion d'ondes vibratoires peuvent être attendues. Théoriquement, nous devons remplacer l'équation quantique de Schrödinger par l'équation de la dynamique classique de type Newton. Il doit être noté, cependant, que le cas des ondes est plus compliqué. Car nous sommes confrontés à la diffusion de champs vectoriels décrits par les amplitudes Cartésiennes des ondes sur les nœuds du réseau, au lieu de champs scalaires comme dans le cas électronique. Aussi, pour le même faisceau de chaînes ou de plans atomiques, le nombre de canaux disponibles dans le cas vibratoire est beaucoup plus important qu'en électronique, ce qui engendre une riche complexité. Nous montrerons aussi dans ce mémoire que les différentes natures d'ondes vibratoires donnent naissance à nombre de propriétés diffusionnelles intéressantes. Comme dans le cas électronique [17-19], nous trouvons que le spectre de transmission des ondes vibratoires peut être exploité pour identifier les propriétés structurelles du matériau étudié. La

diffusion multiple devient alors très importante ; elle provoque, en effet, toute une variété de structures oscillantes dont certaines présentent des caractéristiques de résonances. En optique comme en électronique, celles-ci peuvent être identifiées aux résonances de Fano ou aux oscillations de Fabry-Pérot. En langage de vibrations mécaniques des surfaces, considérées comme des défauts infinis limitant les cristaux semi-infinis, elles sont dénommées résonances du continuum [33].

Les principales méthodes utilisées dans l'étude des phonons de surface seront abordées brièvement au premier chapitre. Nous insisterons, particulièrement, sur la méthode de raccordement qui constituera notre base d'approche pour résoudre le problème de phonons de volume ou de surface associé à la brisure de symétrie à une dimension. De plus, nous rappellerons quelques notions essentielles de la dynamique de réseaux cristallins extrêmement utiles pour le développement de la théorie du spectre vibrationnel des atomes.

Au chapitre 2, nous décrirons la dynamique réticulaire et les caractéristiques de propagation des ondes dans un guide d'onde parfait quasi tridimensionnel. Le calcul des courbes de dispersion des phonons et l'évanescence du champ vibrationnel seront développés dans le détail. Nous déterminerons également la bande passante du système ainsi que les vitesses de groupes associées à chaque mode de vibration.

Dans le chapitre 3, l'accent sera mis sur l'application directe de la méthode de raccordement. L'étude des défauts de volume, classés par ordre de complexité croissante, qu'ils soient de substitution, interstitiel ou lacunaire, sera largement développée : détermination des coefficients de transmission et de réflexion, calcul des champs déplacement des atomes irréductibles du défaut et de son voisinage immédiat ainsi que la conductance du système. Par suite, nous étudierons l'évolution du spectre de transmission en fonction de la masse de l'impureté et des constantes de forces impliquées dans la région perturbée. Nous prendrons particulièrement en compte l'influence de la variation de l'angle d'incidence sur le spectre de transmission. Nous étendrons, par suite, la méthode de raccordement à différentes configurations de défauts. Nous considérerons les cas de défaut étendu (constitué de plusieurs rangées d'impuretés), de défauts séparés (rangées d'atomes à distance les unes des autres) puis de quelques exemples de séquences de défauts. Comme précédemment, nous nous intéresserons à l'évolution du spectre de transmission induit par chaque catégorie de défaut.

Les états localisés des phonons et le calcul des densités spectrales et des densités d'états constitueront l'objet des derniers chapitres 4 et 5. Ils serviront essentiellement à confirmer l'interprétation des résultats relatifs à la diffusion, en particulier les positions de transmission nulle et les résonances de type Fano.

Nous terminerons par une conclusion générale qui illustrera les principaux résultats obtenus ainsi que les perspectives offertes dans ce domaine qui ouvre de nombreuses voies à la résolution des problèmes de diffusion des composés de faibles dimensions.

Chapitre 1

Théorie de la Méthode de Raccordement

1.1 - Introduction

A l'origine, la théorie classique de la dynamique de réseaux a été formulée par Born et Von Karman [34] en termes de conditions aux limites dites périodiques. Les élaborations modernes de cette théorie, ainsi que ses nombreuses applications, sont discutées en détails dans des références standards telles Born and Huang [35], Liebfried [36], Liebfried and Ludwig [37] et Maradudin, Montroll and Weiss [38]. Cette théorie, pourtant de grande portée pratique, ne concerne cependant que les systèmes infinis. Les effets de surface sur la dynamique de réseaux cristallins ont été entrepris par Ledermann [39]. Son travail démontra l'existence possible d'états vibrationnels dont l'énergie appartient à un intervalle jusque là interdit par les conditions aux limites périodiques. Par suite, la nature de ces "prétendus" modes de surface a été étudiée par Lifshitz et ses collaborateurs [40,41] en utilisant les fonctions de Green. Des techniques similaires ont été employées par Maradudin, Wallis and Dobrzynski [42] dans une analyse de contributions de surface à la chaleur spécifique à basse température.

Les premières études remontent à 1887, lorsque Lord Rayleigh se trouva en présence d'ondes localisées pouvant se propager parallèlement à la surface pour des milieux élastiques isotropes. Ces ondes de surface se caractérisent par une décroissance exponentielle de leur amplitude depuis la surface vers le volume et par la relation de proportionnalité entre la fréquence et le vecteur d'onde. Jusqu'au milieu des années soixante, les applications principales se limitaient à l'étude des ondes sismiques se propageant dans la croûte terrestre.

De nos jours, tous les calculs portant sur les phonons de surface et les résonances dans les cristaux semi-infinis s'obtiennent en recourant à des méthodes essentiellement basées sur les fonctions de Green. Parmi ces méthodes, nous évoquerons, entre autres, la méthode de diagonalisation directe (Slab method) appliquée pour la première fois par Allen et ses collaborateurs en 1971 [43] et la méthode des fonctions de Green, référence par excellence dans le domaine des états localisés de surface, mise au point par Lifshitz and Rosenweig en 1948 [40].

1. 1. 1 - Méthode de diagonalisation directe (slab method)

Sa formulation générale par Clark remonte à 1965. Toutefois, elle n'a été appliquée qu'en 1971 pour la détermination des modes de surface d'un réseau cubique à faces centrées et aux effets induits par une couche adsorbée [43]. Durant les deux dernières décennies, cette méthode est apparue comme pratique et puissante pour l'étude de la dynamique vibrationnelle des surfaces vicinales [44-46]. Elle consiste à limiter les systèmes considérés à un nombre fini de plans atomiques, de structure périodique, suivant une direction cartésienne donnée avec une extension infinie dans les deux autres. En outre, la modélisation mathématique nécessite l'utilisation d'un nombre de plans suffisamment grand afin de garantir l'existence d'une région de volume dans le système. Le calcul analytique de la matrice dynamique ainsi que la recherche de ses valeurs et vecteurs propres donnent accès, en particulier, aux courbes de dispersion, aux déplacements atomiques et aux densités spectrales. Néanmoins, la taille importante de la matrice dynamique rend la résolution plus laborieuse et augmente considérablement le temps de calcul.

1. 1. 2 - Méthode des fonctions de Green

C'est l'outil mathématique par excellence pour étudier les modes localisés induits par un défaut de portée limitée dans l'espace du solide. Utilisée pour la première fois par Lifshitz en 1948 pour étudier les modes localisés de surface, cette méthode s'imposa par la suite comme une technique de référence dans le domaine [42,47-56]. Elle consiste principalement à créer un réseau semi infini à partir d'un réseau illimité, en annulant les interactions entre les atomes situés de part et d'autre d'un plan bissecteur de deux plans atomiques consécutifs. L'effet de cette opération sur la dynamique vibrationnelle du système est considéré comme une perturbation qui transforme la matrice dynamique D du système illimité en une matrice D_0 de forme :

$$D_0 = D + V, \quad (1.1.1)$$

où V représente la matrice de perturbation composée d'une sous matrice non nulle dont l'ordre fini dépend du nombre de plans affectés.

Soit $G(\omega^2)$ la matrice des fonctions de Green (voir annexe A1) définie par :

$$G(\omega^2) = (\omega^2 I - D)^{-1}. \quad (1.1.2)$$

Son équivalent $G_p(\omega^2)$ pour le système perturbé s'écrit :

$$G_p(\omega^2) = (\omega^2 I - (D + V))^{-1} = (\omega^2 I - D) \left[I - G(\omega^2) V \right]^{-1}.$$

D'où la relation matricielle,

$$G_p(\omega^2) = (I - G(\omega^2) V)^{-1} G(\omega^2). \quad (1.1.3)$$

L'ensemble des états vibrationnels du système perturbé est donné par les pôles de $G_p(\omega^2)$. Ils permettent, en général, d'interpréter l'évolution des propriétés dynamiques induites par la surface libre sur le spectre vibrationnel du système.

1. 1. 3 - Méthode de raccordement

Notre approche se base sur la méthode de raccordement, initiée par Feuchtwang en 1967 [28]. Cette méthode, développée par Szeftel et Khater en 1987 [27], offre des avantages certains : non seulement, elle rend compte de façon satisfaisante des courbes de dispersion des phonons [24,57-58] et de résonances de surface, mais elle donne aussi une définition plus générale du concept de résonance et permet une analyse plus transparente du comportement des déplacements au voisinage de singularités de Van Hove [59]. Son exécution requiert la subdivision du cristal en trois régions distinctes, ayant toutes la même périodicité bidimensionnelle le long de la surface :

(i) une région de volume de périodicité bidimensionnelle représentant le cristal parfait sans aucun défaut où les courbes de dispersion sont dérivées en premier lieu. Dans le cas d'une surface, elle est assimilée aux régions G et D de la figure 1.1.

(ii) une région de surface composée d'un nombre de couches atomiques d'adsorbats dans laquelle se manifeste une brisure de symétrie par rapport à la direction normale à la surface. C'est la région M de la figure 1.1.

(iii) une région intermédiaire, entre le volume et la surface du matériau, de largeur croissante avec la portée des interactions entre plans, utilisée pour raccorder les phonons de volume aux conditions imposées par la surface ; d'où l'appellation de « méthode de raccordement ». En ce qui nous concerne, cette région consiste en deux chaînes linéaires, situées de part et d'autre de la région M, qui permettent de raccorder cette dernière aux deux guides d'onde parfaits semi infinis G et D (Fig.1.1).

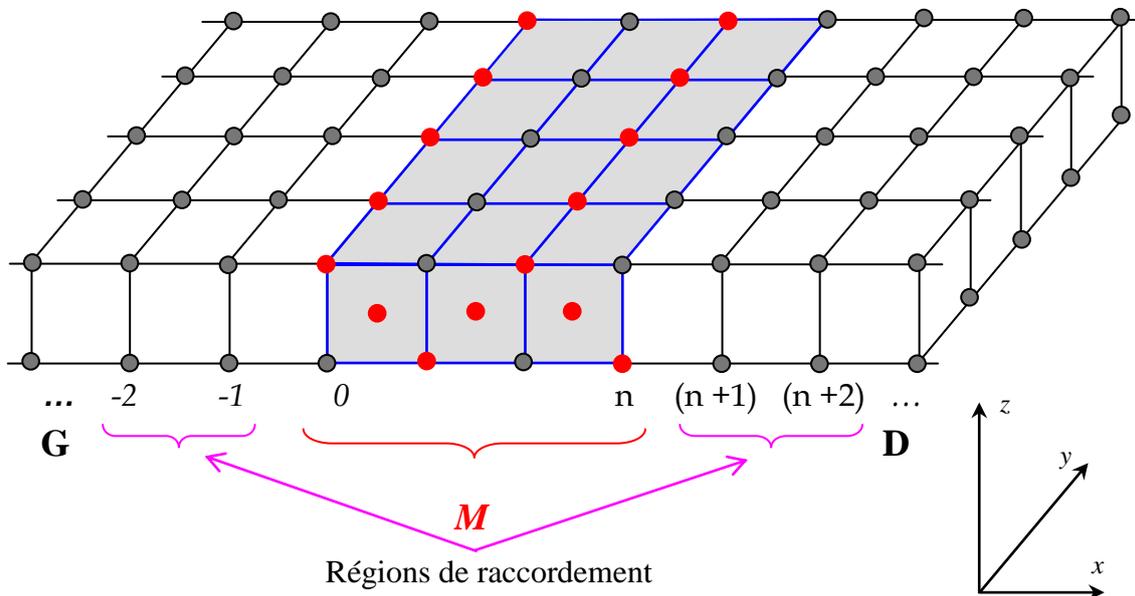


Fig. 1.1 : Représentation schématique des trois régions nécessaires à l'application de la méthode de raccordement : la région du défaut M , les régions de raccordement et les deux guides d'ondes parfaits semi infinis G et D .

1.2 - Etude dynamique

La périodicité d'un cristal est décrite par un ensemble de vecteurs positions \vec{r} qui localisent chaque maille élémentaire du cristal dans l'espace (Fig. 2). Tout vecteur \vec{r} peut être exprimé en termes de trois composantes désignant les vecteurs translation de base, indépendants et non coplanaires, $(\vec{a}_x, \vec{a}_y, \vec{a}_z)$ par la relation [26] :

$$\vec{r}(l, m, n) = l\vec{a}_x + m\vec{a}_y + n\vec{a}_z. \quad (1.2.1)$$

Les vecteurs $\vec{a}_x, \vec{a}_y, \vec{a}_z$ définissent la maille élémentaire primitive qui peut générer la structure du cristal par les translations du réseau. Les entiers (l, m, n) seront désormais notés (L) . Le réseau réciproque tridimensionnel 3D associé est généré par les vecteurs $\vec{b}_x, \vec{b}_y, \vec{b}_z$. Le cristal semi infini est décrit par $n \geq 0$. La région de la surface s'étend de $n=0$ à $n=s$. Le vecteur joignant une origine à la position d'équilibre de l'atome (K) dans la maille (L) est noté $\vec{r}(L, K)$.

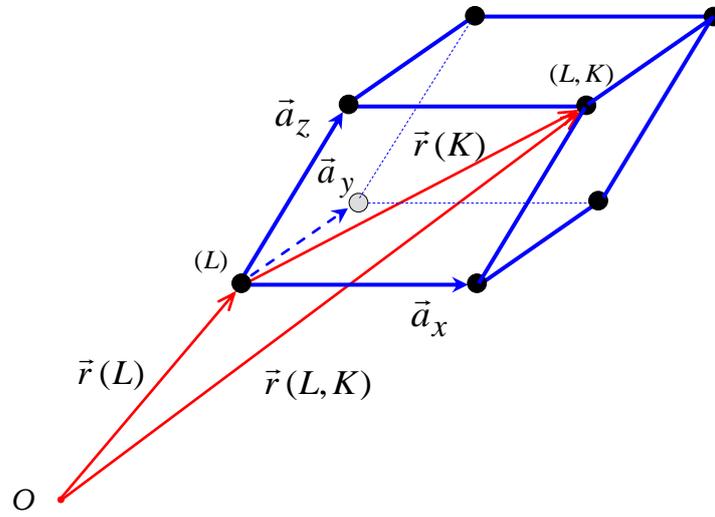


Fig. 1.2 : Définition des paramètres de la maille primitive, du vecteur position \vec{r} , des entiers (l, m, n) notés (L) et du vecteur déplacement d'un atome (K) dans le cas d'un réseau spatial.

La position d'équilibre de l'atome (K) dans la maille primitive (L) est donnée par :

$$\vec{r}(L, K) = \vec{r}(L) + \vec{r}(K).$$

Puisque les atomes vibrent autour de leur position d'équilibre $\vec{r}(L, K)$, la position à chaque instant est

$$\vec{R}(L, K) = \vec{r}(L, K) + \vec{u}(L, K),$$

où $\vec{u}(L, K) = [u_x(L, K), u_y(L, K), u_z(L, K)]$ est le vecteur déplacement de l'atome (L, K) relativement à sa position d'équilibre.

1. 2. 1 - Déplacements vibrationnels

De manière générale, les déplacements générés par la vibration des atomes, par rapport à leur position d'équilibre, le long des directions x, y ou z désignées par α seront notés $u(L, K, \alpha)$. Nous considérons que les forces d'interaction sont des forces centrales et que les atomes sont assez lourds de telle sorte que leur comportement peut, dans la plupart des cas, être décrit classiquement. En raison du caractère périodique bidimensionnel du cristal semi infini, les déplacements dans le cadre de l'approximation harmonique [26] (voir annexe A2) s'écrivent :

$$u(L, K, \alpha) = \sum_{\omega^2, \vec{q}} \frac{\exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}(L))}{(m_K \omega)^{1/2}} v(\omega^2, \vec{q}, l, K, \alpha) Q(\omega^2, \vec{q}), \quad (1.2.2)$$

où m_K est la masse de l'atome (K) dans la couche atomique l et Q la coordonnée normale associée avec le phonon de vecteur d'onde coplanaire \vec{q} et de fréquence ω . La sommation sur \vec{q} dans l'équation (1.2.2) est confinée à l'intérieur de la zone de Brillouin (BZ) 2D associée à la surface. Les composantes $v(\omega^2, \vec{q}, l, K, \alpha)$ déterminent le vecteur $\vec{v}(\omega^2, \vec{q})$ qui est un vecteur propre de la matrice dynamique $D(\vec{q})$:

$$\left[\omega^2 - D(\vec{q}) \right] \vec{v}(\omega^2, \vec{q}) = 0. \quad (1.2.3)$$

Par commodité, la dépendance explicite (ω^2, \vec{q}) sera omise aussi souvent que possible par la suite.

1. 2. 2 - Equations du mouvement

Le développement de l'équation (1.2.3) engendre les équations du mouvement :

$$\omega^2 v(L, K, \alpha) = \sum_{l', K', \alpha'} D(\vec{q}, l, K, \alpha, l', K', \alpha') v(L', K', \alpha'), \quad (1.2.4)$$

où le signe somme intéresse tout atome couplé avec un atome de type (K) dans la $l^{\text{ième}}$ couche. Pour l et $l' > 0$, $D(\vec{q}, l, K, \alpha, l', K', \alpha')$ s'annule si $|l - l'| > B$, l'intervalle maximum

d'interaction entre couches au sein du matériau. La méthode de diagonalisation directe inclut toutes les couches comprises entre $l = s + 1$ à $l = p$, où p est le plus petit nombre tel que la $(p+1)^{ième}$ couche se rapporte aux équations en volume (1.2.4).

Le cristal semi infini est reproduit en lui-même sous certaines opérations de symétrie qui complètent le groupe spatial 2D contenant le sous-groupe de translation $(m\vec{a}_x + n\vec{a}_y)$. La division du groupe spatial en sous-groupes de translation donne lieu à un facteur de groupe G [60]. Si le groupe spatial est un groupe symmorphique, G se réduit à un groupe ponctuel 2D. $G(\vec{q})$ est introduit comme un sous-groupe de G qui contient tout élément f de G tel que

$$f \vec{q} = \vec{q} + \vec{g}, \quad (1.2.5)$$

où \vec{g} est un vecteur du réseau réciproque 2D. En particulier, le sous-groupe $G(\vec{q} = \vec{0})$ est isomorphe avec le groupe G auquel il appartient. Tout phonon défini par sa coordonnée normale Q est associé avec une représentation donnée de $G(\vec{q})$, i.e. \vec{v} se transforme sous les opérations de symétrie de $G(\vec{q})$ comme indiqué par la table de caractères de $G(\vec{q})$. Le champ de déplacement attaché au phonon (ω^2, \vec{q}_R) , où l'indice R se réfère à sa représentation, possède $n(l, \vec{q}_R)$ composantes indépendantes dans la $l^{ième}$ couche [61]. En sommant $n(l, \vec{q}_R)$ sur toutes les représentations de $G(\vec{q})$ en l et en gardant \vec{q} fixé, nous retrouvons $3n_a(l)$ qui est le nombre total de degrés de liberté par maille dans la $l^{ième}$ couche, si $n_a(l)$ est le nombre correspondant d'atomes.

Quand les équations du mouvement (1.2.4) sont écrites en terme des composantes de symétrie au lieu des composantes cartésiennes $v(x)$, $v(y)$ ou $v(z)$, $D(\vec{q})$ se subdivise en sous matrice $D(\vec{q}_R)$:

$$\left[\omega^2 - D(\vec{q}_R) \right] \vec{v}(\omega^2, \vec{q}_R) = 0. \quad (1.2.6)$$

Ainsi $D(\vec{q})$ est Hermitienne, $D(\vec{q}_R)$ peut ne pas l'être. Comme $D(\vec{q}_R)$ est issue de $D(\vec{q})$, elle a les mêmes valeurs propres ω^2 . Il est important pour la suite d'analyser les conditions sous lesquelles la matrice $D(\vec{q})$ est réelle. Tout d'abord, $G(\vec{q})$ est supposé contenir l'opération C définie par :

$$C\vec{r} = \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \vec{r}, \quad (1.2.7)$$

où \vec{r} est donné par ses projections a_x, a_y et a_z . Le complexe conjugué de $D(\vec{q})$ est noté $D^+(\vec{q})$; il est connu pour être égal à $D(-\vec{q}) = D(C\vec{q})$. Puisque C appartient à $G(\vec{q})$, alors $D(\vec{q}) = D(C\vec{q}) = D^+(\vec{q})$, d'où $D(\vec{q})$ est réel. Considérons que C est maintenant un élément de G mais non de $G(\vec{q})$. De plus, $C\vec{r}(L, K) - \vec{r}(L, K)$ est assimilé à un vecteur du réseau 2D pour n'importe quelle valeur (L, K) . Cette situation a été étudiée par Allen et ses collaborateurs [43] qui ont montré que, quoique $D(\vec{q})$ n'est pas réelle, l'équation aux valeurs propres (1.2.3) peut être écrite pour une matrice réelle, en n'oubliant pas de redéfinir le vecteur propre \vec{v} de façon appropriée. Si G ne contient pas C mais contient une opération miroir M , l'analyse précédente ne vaut seulement que pour les vecteurs \vec{q} normaux au plan du miroir, c'est-à-dire telle que $M\vec{q} = -\vec{q}$, prouvant que $M\vec{r}(L, K) - \vec{r}(L, K)$ appartient au réseau 2D.

1.3 - Propriétés du spectre vibrationnel

La région de la surface comprenant toutes les couches au-delà de s est ignorée dans cette section. Elle sera remplacée par une zone de volume formant un réseau périodique 3D. De plus, à partir de maintenant les équations (1.2.3) et (1.2.4) s'écriront en termes de $D(\vec{q}_R)$ et $\vec{v}(\omega^2, \vec{q}_R)$ au lieu de $D(\vec{q})$ et $\vec{v}(\omega^2, \vec{q})$, respectivement. La translation $T(-\vec{a}_z)$ du vecteur $(-\vec{a}_z)$ agissant sur \vec{v} s'exprime comme suit [62] :

$$T(-\vec{a}_z) \vec{v}(\omega^2, \vec{q}_R) = Z(-\vec{a}_z) \vec{v}(\omega^2, \vec{q}_R), \quad (1.3.1)$$

où $Z(-\vec{a}_z)$ est le caractère d'une représentation unidimensionnelle attaché à la classe $(-\vec{a}_z)$.

L'équation (1.3.1) est la contre partie en phonon du théorème de Bloch [63] valide pour les fonctions d'onde électroniques. Comme les composantes (l, α) de $T(-\vec{a}_z) \vec{v}$ sont égales à $(l-1, \alpha)$, où α parcourt les $n(\vec{q}_R)$ composantes du champ de déplacement des phonons en volume, il est déduit de l'équation (1.3.1) que [27] :

$$v(\omega^2, q_R, \alpha) = A(\omega^2, q_R, \alpha) Z^l(-a_z), \quad (1.3.2)$$

si $v(\omega^2, q_R, l=0, \alpha) = A(\omega^2, q_R, \alpha)$.

L'insertion de l'équation (1.3.2) dans l'ensemble des $n(\vec{q}_R)$ équations (1.2.4) obtenues pour $l > p$ donne un système linéaire homogène de dimension $n(\vec{q}_R) \times n(\vec{q}_R)$ en fonction des valeurs $A(\alpha)$. Une solution non triviale requiert que le déterminant du système s'annule :

$$D_b(\omega^2, \vec{q}_R, Z) = 0. \quad (1.3.3)$$

La relation précédente définit une équation algébrique séculaire de degrés $2n_e(\vec{q}_R)$ en Z . Une fois qu'une racine de l'équation (1.3.3) est déterminée, les valeurs correspondantes de $A(\alpha)$ découlent en résolvant le système linéaire homogène avec les valeurs $A(\alpha)$ satisfaisant la condition :

$$\sum_{\alpha=1}^{n(q_R)} |A(\alpha)|^2 = 1. \quad (1.3.4)$$

Même en utilisant $D(\vec{q})$ à la place de $D(\vec{q}_R)$, l'équation séculaire sera obtenue comme un produit de déterminants $D_b(\omega^2, \vec{q}_R, Z)$ non factorisés, incluant toute représentation R de $G(\vec{q})$. L'avantage de distinguer entre les différentes symétries de $G(\vec{q})$ est évident. Comme chacune des $n(\vec{q}_R)$ équations linéaires formant un système homogène est une expression polynomiale de degrés $2B$ (B étant le nombre de racines du polynôme) en Z , $n_e(\vec{q}_R)$ est au plus égal à $Bn(\vec{q}_R)$. En ordonnant les valeurs $A(\alpha)$, nous faisons apparaître ω^2 sur les diagonales de D_b de telle sorte que l'équation séculaire soit un polynôme de degrés $n(\vec{q}_R)$ en ω^2 .

L'action de $T(\vec{a}_z)$ sur \vec{v} engendre une équation similaire à l'expression (1.3.1) :

$$T(a_z)\vec{v}(\omega^2, \vec{q}_R) = Z(a_z)\vec{v}(\omega^2, \vec{q}_R), \quad (1.3.5)$$

où $Z(\vec{a}_z)$ est aussi considéré comme racine de l'équation (1.3.3). En se rappelant que le caractère attaché à $T(\vec{a}_z)T(-\vec{a}_z)$ est unitaire du fait que le produit de deux translations, $T(\vec{a}_z)$ et $T(-\vec{a}_z)$, représente simplement l'opération identité, permet de déduire que

$$Z(\vec{a}_z)Z(-\vec{a}_z) = 1. \quad (1.3.6)$$

L'équation séculaire est alors transformée en elle-même si l'inconnue Z est remplacée par Z^{-1} . Donc, elle peut être exprimée par une équation de degrés $n_e(\vec{q}_R)$ en termes de $\lambda = (Z + Z^{-1})$. Si $D(\vec{q})$ est réelle, les racines complexes de l'équation (1.3.3) se déduisent en paires, les deux éléments étant complexes conjugués l'un de l'autre, et les valeurs $A(\alpha)$ correspondantes satisfont $A(\alpha, Z) = A^+(\alpha, Z^+)$.

Dans le volume, les phonons de symétrie R en \vec{q} sont caractérisés par au moins une paire $\left[z(\omega^2, \vec{q}_R), Z^{-1}(\omega^2, \vec{q}_R) \right]$ des racines de l'équation (1.3.4), telles que

$$|Z| = |Z^{-1}| = 1. \quad (1.3.7)$$

D'où,

$$Z^{\pm 1}(\omega^2, \vec{q}_R) = e^{\pm i q_z \cdot a_z}, \quad (1.3.8)$$

où les signes (+) et (-) correspondent à une onde qui se propage vers la surface ou qui s'éloigne, respectivement. L'équation (1.3.7) permet d'écrire

$$\lambda(\omega^2, \vec{q}_R) = Z(\omega^2, \vec{q}_R) + Z^{-1}(\omega^2, \vec{q}_R) = 2 \cos(q_z \cdot a_z). \quad (1.3.9)$$

L'égalité (1.3.9) représente la relation de dispersion des phonons de volume de symétrie R le long de la direction b_z de l'espace réciproque, lorsque $q_z \cdot a_z$ varie de 0 à π . Désormais, il existe $n(\vec{q}_R)$ branches distinctes de phonons de volume de symétrie R , du moment que l'équation séculaire (1.3.4) possède $n(\vec{q}_R)$ racines ω^2 , chacune d'elles étant une fonction particulière de λ . La densité d'états, notée $n_d(\omega^2, \vec{q}_R)$, correspondant à ce type de phonons, est définie par :

$$n_d = \sum_j \left| \frac{\partial q_{zj}}{\partial(\omega^2)} \right|, \quad (1.3.10)$$

où la sommation concerne au plus les $n_e(\vec{q}_R)$ différents q_{zj} satisfaisant l'équation (1.3.7).

Les zones interdites aux phonons de volume se caractérisent en \vec{q} par $n_d(\omega^2, \vec{q}_R) = 0$, i.e. il n'existe pas de racine de l'équation (1.3.4) qui satisfait l'équation (1.3.6). La densité

$n_d(\omega^2, \vec{q}_1)$ peut s'annuler pour $n_d(\omega^2, \vec{q}_2) \neq 0$ où les indices 1 et 2 se rapportent à deux différentes représentations de $G(\vec{q})$. Si l'équation séculaire est résolue sans subdiviser $D(\vec{q})$ en ses sous matrices, la région interdite de symétrie 1 serait négligeable devant les contributions en volume de symétrie 2.

1. 4 - Phonons de surface et résonance

1. 4. 1 - Phonons de surface

Comme l'étude porte sur les phonons de surface, seules les régions où la densité d'états de phonons volumiques $n_d(\omega^2, q_R)$ s'annule seront considérées dans cette section. Les composantes du champ de déplacement sont déduites de l'équation (1.3.2) pour $l > h = p - B$:

$$v(l, \alpha) = \sum_{i=1}^{n_K} R_i^e A(\alpha, i) Z^l(\omega^2, \vec{q}_R, i). \quad (1.4.1)$$

La sommation sur i s'étend à toutes les valeurs $n_e(\vec{q}_R)$ des racines $z(i)$ de l'équation (1.3.3) dont le module est inférieur à l'unité, alors que les $n_e(\vec{q}_R)$ des racines de module supérieur à l'unité sont écartées, car leur introduction dans la sommation (1.4.1) donnera lieu à des déplacements divergents. Après insertion des équations (1.4.1) dans les équations du mouvement (1.2.4) avec $l \leq p$, il en résulte un système linéaire homogène qui a pour inconnues $\left[\sum_{l=0}^h n(l, \vec{q}_R) \right]$ composantes du champ de déplacement des atomes de surface ainsi que ceux de raccordement et $n_e(\vec{q}_R)$ coefficients de pondération R_i^e . La dimension du système linéaire devient alors égale à :

$$\sum_{l=0}^h n(l, \vec{q}_R) + Bn(\vec{q}_R) = \sum_{l=0}^p n(l, \vec{q}_R). \quad (1.4.2)$$

Comme attendu, ce système ne peut avoir de solution que si son déterminant s'annule:

$$D_S(\omega^2, q_R) = 0. \quad (1.4.3)$$

Une solution réelle et positive $\omega_s^2(\vec{q}_R)$ de l'équation (1.4.3) donne naissance à un phonon de surface, dont la courbe de dispersion s'obtient lorsque \vec{q} parcourt la zone de Brillouin 2D. Par définition, une telle courbe de dispersion doit obligatoirement appartenir à la région interdite des phonons volumiques dans le cas d'une symétrie R . D'après l'équation (1.4.1), le champ de déplacement d'un phonon de surface, à l'intérieur du cristal, consiste en une combinaison linéaire de $n_e(\vec{q}_R)$ ondes évanescentes. Il va sans dire que si la matrice dynamique $D(\vec{q})$ est réelle, alors $R^e(Z) = [R^e(Z^+)]^\dagger$.

1. 4. 2 - Résonance et densité spectrale des déplacements de surface

Dans ce paragraphe, nous nous intéressons aux régions où la densité d'états des phonons de volume $n_d(\omega^2, \vec{q}_R)$ est différente de zéro. L'analyse des résonances est similaire à celle utilisée pour les phonons de surface. Le champ de déplacement d'un phonon (ω^2, \vec{q}_R) donné pour $l > h$ est, encore une fois, déduit [27] de l'équation (1.3.2):

$$v(l, \alpha) = \sum_{i=1}^{n_s} R_i^e A(\alpha, i) Z^l(i) + \sum_{j=1}^{n_t} (R_j^t A(\alpha, j) Z^l(j) + R_{-j}^t A(\alpha, -j) Z^{-l}(j)). \quad (1.4.4)$$

Pour un couple (ω^2, \vec{q}_R) donné, la sommation sur i se rapporte aux solutions évanescentes $|Z(\omega^2, \vec{q}_R, i)| < 1$ de l'équation séculaire (1.3.3), alors que celle sur j concerne les paires $n(\omega^2, \vec{q}_R)$ ondes se propageant du volume vers la surface ($Z(j) = \exp(iq_{zj}a_z)$) ou de celles qui s'en éloignent ($Z^{-l}(j) = \exp(-iq_{zj}a_z)$). La somme $n_s(\omega^2, \vec{q}_R) + n_t(\omega^2, \vec{q}_R)$ est égale à $n_e(\vec{q}_R)$. En insérant l'équation (1.4.4) pour les composantes du champ de déplacement dans les équations du mouvement (1.2.4) avec $l \leq p$, il en résulte un système d'équations linéaires inhomogènes formellement identique au système (1.4.3) :

$$D_S(\omega^2, \vec{q}_R) \vec{v}' = e, \quad (1.4.5)$$

Où, comme pour les phonons de surface, le vecteur \vec{v}' est exprimé en fonction des mêmes inconnues $(\sum_{l=0}^p n(l, \vec{q}_R))$; les composantes non nulles e sont des combinaisons linéaires des n_t coefficients arbitraires R_{-j} , par exemple.

Les vecteurs \vec{v} du système (1.4.5), pour une paire (ω^2, \vec{q}_R) donnée, forment donc un sous-espace vectoriel de degrés de dégénérescence égal à $n_t(\omega^2, \vec{q}_R)$. Dans un cristal 3D, par contre, le degré de dégénérescence de ce même sous-espace est égal à $2n_t(\omega^2, \vec{q}_R)$. Par conséquent, pour une relation de phase définie entre une onde incidente et l'onde réfléchie correspondante, la surface réduit la dimension du sous-espace à $n_t(\omega^2, \vec{q}_R)$. Pour toutes ces raisons, ce sous-espace doit être défini comme suit :

$$v(l, \alpha, j) = \sum_{i=1}^{n_s} R_{ij}^e A(\alpha, i) Z^l(i) + A(\alpha, j) Z^l(j) + \sum_{k=1}^{n_t} R_{kj}^t A(\alpha, -k) Z^{-l}(k), \quad (1.4.6)$$

où $l > h$. L'équation (1.4.6) nous apprend comment l'onde incidente ($Z(j) = \exp(-iq_{zj}a_z)$) est diffusée par la surface en n_s composantes évanescentes ($|Z(i)| < 1$) et n_t composantes propageantes $|Z(j)| = |Z^{-1}(j)| = 1$. Ce type d'image des phonons dans un cristal semi infini a déjà été étudié par Bortolani et ses collaborateurs dans la limite des grandes longueurs d'onde [64].

En introduisant (1.4.6) dans les équations du mouvement (1.2.4), nous obtenons le système (1.4.5); les composantes non nulles du terme inhomogène e sont développées en puissance de $Z(j)$. Ce qui permet de retrouver les $n_t(\omega^2, \vec{q}_R)$ systèmes distincts (1.4.5) ayant tous la même matrice D_S et se différenciant seulement dans le terme inhomogène e . Les déplacements \vec{v} ont alors pour solution :

$$v(l, \alpha, j) = \frac{|D_N(j)|}{|D_S(\omega^2, \vec{q}_R)|}, \quad (1.4.7)$$

où $l \leq h$ et le déterminant $D_N(j)$ au numérateur est obtenu en remplaçant dans le déterminant $D_S(\omega^2, \vec{q}_R)$ du dénominateur la colonne correspondant à l'inconnue $\vec{v}(l, \alpha, j)$ par les composantes du terme inhomogène $e(j)$ de (1.4.5).

La densité spectrale $\rho(\omega^2, \vec{q}_R, l, \alpha, l', \alpha', j)$ des déplacements surfaciques avec $l \leq h$ est définie par :

$$\rho(j) = v^+(\omega^2, \vec{q}_R, l, \alpha, j) \cdot v(\omega^2, \vec{q}_R, l', \alpha', j) \cdot n_d(\omega^2, \vec{q}_R), \quad (1.4.8)$$

où n_d est donné dans l'équation (1.3.10). La perte d'énergie enregistrée lors d'expériences de diffusion d'électrons [4] est proportionnelle à la densité spectrale calculée à \vec{q} fixé selon (1.4.8) ; cette équation est multipliée par un élément de matrice indicatif de la contrainte de couplage électron-phonon et par un facteur thermique qui tient compte de la population des phonons. La densité constitue un élément essentiel dans l'évaluation du signal mesuré dans la diffusion inélastique d'un atome ; mais sa dépendance en ω^2 devient plus compliquée du fait que l'énergie primaire du faisceau atomique est du même ordre de grandeur que le quanta d'énergie $\hbar\omega$ du phonon mis en cause [65]. Un cas bien différent de la diffusion électronique où $\hbar\omega$ est négligeable devant l'énergie du faisceau incident.

La résonance est déterminée par les pics $\omega_r^2(\vec{q}_R)$ de la courbe densité spectrale. Cette résonance se produit en particulier si le dénominateur $D_S(\omega^2, \vec{q}_R)$ de (1.4.7) a une racine complexe $\omega_r^2(\vec{q}_R) + i\eta(\vec{q}_R)$. Cette racine agit comme un pôle pour la dépendance en ω^2 du déplacement donné par (1.4.8). En conséquence, $\eta(\vec{q}_R)$ est d'autant plus petit que la caractéristique résonante devient importante. Cette définition de la résonance prête, d'ailleurs, à plusieurs commentaires :

(i) Elle donne une description unifiée d'états de surface et de résonance, l'un et l'autre correspondant à des racines réelle et complexe de $D_S(\omega^2, \vec{q}_R) = 0$, respectivement.

(ii) Toute corrélation entre la résonance $\omega_r^2(\vec{q}_R)$ et une petite valeur possible de $n_d[\omega_r^2(\vec{q}_R), \vec{q}_R]$, comme supposé par Stroscio et ses collaborateurs [66], est fortuite puisque $\omega_r^2(\vec{q}_R)$ provient de la résolution d'une équation de surface où $n_d(\omega^2, \vec{q}_R)$ représente une quantité relevant du volume.

(iii) $\omega_r^2(\vec{q}_R)$ est indépendant des valeurs (l, α) et (l', α') ou (j) considérées dans le calcul de $\rho(j)$; d'ailleurs, aucune de ces valeurs n'apparaît dans l'expression $D_S(\omega^2, \vec{q}_R) = 0$. En fin de compte, toutes les densités spectrales, à moins que le champ déplacement s'annule pour cause de symétrie, présentent un maximum pour la même valeur $\omega_r^2(\vec{q}_R)$; cette dernière propriété n'est pas aisée à prouver dans le cas général utilisant la technique des fonctions de Green [67,68].

(iv) En général, le champ de déplacement attaché à chaque phonon ainsi que les vecteurs propres de la matrice dynamique $D(\vec{q})$ sont normalisés. Seulement dans le cas qui nous intéresse, cette condition n'est valable que pour les cristaux périodiques 3D comme indiqué dans l'expression (1.4.6), où seule la contribution du champ de déplacement provenant des phonons $z(j)$ dont le module est égal à l'unité importe. Puisque toutes les valeurs R_{kj}^t sont données par le rapport $D_N(R_{kj}^t)/D_S$ des deux déterminants de (1.4.7), il vient que :

$$v(l, \alpha, j) = \frac{|D_N(j)|}{(|D_S|^2 + \sum_{l=1}^{n_t} |D_N(R_{lj}^t)|^2)^{1/2}}, \quad (1.4.9)$$

s'il y a normalisation du champ de phonons du cristal semi-infini. Comme les dénominateurs des équations (1.4.7) et (1.4.9) sont différents, leurs racines respectives donnent naissance à des résonances à différentes fréquences. Nous concluons donc que les résonances dépendent intimement de la manière dont est normalisé le champ de phonons.

1. 4. 3 - Propriétés de la matrice de diffusion

La matrice $R^t(\omega^2, \vec{q}_R)$ de dimensions $(n_t \times n_t)$ et d'éléments R_{kj}^t définie dans (1.4.5) s'identifie à la matrice de diffusion ; appliquée à l'asymptote incidente $[Z(i) = \exp(iq_{zi} \cdot a_z)]$ du $i^{\text{ième}}$ phonon (ω^2, \vec{q}_R) , elle produit n_t asymptotes transmises $(Z^{-l}(i) = \exp(-iq_{zi} \cdot a_z))$. En se rappelant que $D^+(\vec{q}) = D(-\vec{q})$, l'expression complexe conjuguée de (1.2.6) pour $\vec{v}(\omega^2, \vec{q}_R, i)$ s'écrit :

$$\left[\omega^2 - D(-\vec{q}_R) \right] \vec{v}^+(\omega^2, \vec{q}_R, i) = \vec{0}, \quad (1.4.10)$$

où $\vec{v}^+(\omega^2, \vec{q}_R, i)$ appartient à l'ensemble des n_t vecteurs $\vec{v}(\omega^2, -\vec{q}_R, m)$ obtenus en résolvant le système (1.4.5) pour la paire $(\omega^2, -\vec{q}_R)$. Il en résulte que :

$$\vec{v}^+(\omega^2, \vec{q}_R, i) = \sum_{m=1}^{n_t} B_{im} \vec{v}(\omega^2, -\vec{q}_R, m), \quad (1.4.11)$$

$$R^t(\omega^2, \vec{q}_R) \left[R^t(\omega^2, -\vec{q}_R) \right]^+ = 1, \quad (1.4.12)$$

$$R^e(\omega^2, \vec{q}_R) = \left[R^e(\omega^2, -\vec{q}_R) \right]^+ R^t(\omega^2, \vec{q}_R). \quad (1.4.13)$$

Nous nous intéressons maintenant à l'équation aux valeurs propres pour tout vecteur $\vec{v}(j)$ appartenant à l'ensemble des vecteurs n_t définis dans l'équation (1.4.7) quand $D(\vec{q})$ est réelle :

$$\left[\omega^2 - D(\vec{q}_R) \right] \vec{v}(j) = 0. \quad (1.4.14)$$

Le complexe conjugué de cette dernière expression est :

$$\left[\omega^2 - D(\vec{q}_R) \right] \vec{v}^+(j) = 0. \quad (1.4.15)$$

Le vecteur $\vec{v}^+(j)$ doit évidemment être un vecteur propre de $D(\vec{q})$ associé à la valeur propre ω^2 . Par conséquent, \vec{v}^+ appartient au sous-espace vectoriel généré par les vecteurs $\vec{v}(j)$. L'avantage de cette propriété est qu'elle permet de déduire les résultats suivants concernant R^t, R^e et la dimension $n_s \times n_t$ de la matrice R' :

$$R^t (R^t)^+ = 1, \quad (1.4.16a)$$

$$(R^e)^+ R^t = R'. \quad (1.4.16b)$$

Nous pouvons nous rendre compte à partir de (1.4.16a) que la matrice diffusion R^t des phonons n'est pas unitaire, contrairement au cas de diffusion de particules par un potentiel s'annulant à l'infini.

1.4.4 - Singularités de Van Hove

Suivant la direction b_z , pour $\delta = q_z a_z = 0$ ou π , la pente $\partial(\omega^2)/\partial\delta$ de la courbe de dispersion des phonons de volume j s'annule à $\omega^2 = \omega_j^2$. De plus, nous supposons sans restriction aucune que $\omega^2(\delta) < \omega_j^2$ appartient toujours à la courbe de dispersion j pour δ

compris entre 0 et π . Comme la dérivée $\partial\delta/\partial(\omega^2)$ devient infinie au même titre que $(\omega_j^2 - \omega^2)^{-1/2}$ quand $\omega^2 \rightarrow (\omega_j^2)^-$, et $\delta \rightarrow \delta_j = 0$ ou π , une singularité de Van Hove apparaît dans la densité d'états $n_d(\omega^2, \vec{q}_R)$ définie par l'équation (1.3.9). Réciproquement, pour $\omega^2 > \omega_j^2$, la contribution à n_d de l'onde j ne figure plus dans la somme (1.3.9), car $|Z(j)| < 1$, et n_d se comporte bien comme $\omega^2 \rightarrow (\omega_j^2)^+$. En nous rappelant que n_d diverge comme $(\omega_j^2 - \omega^2)^{-1/2}$ quand $\omega^2 \rightarrow (\omega_j^2)^-$ et en retournant à l'équation (1.4.8), nous obtenons les densités spectrales $\rho(j)$ quand $\omega^2 \rightarrow (\omega_j^2)^-$:

$$\rho(j) \approx \left| \omega_j^2 - \omega^2 \right|^{\frac{1}{2}}, \quad (1.4.17a)$$

$$\rho(j' \neq j) \approx \left| \omega_j^2 - \omega^2 \right|^{-\frac{1}{2}}, \quad (1.4.17b)$$

où $\rho(j)$ n'est pas défini pour $\omega^2 > \omega_j^2$ et $\rho(j' \neq j)$ demeure continu pour $\omega^2 \rightarrow (\omega_j^2)^+$.

Un second type de singularité de Van Hove se produit si l'équation séculaire (1.3.3) possède une racine double $z(\omega^2, \vec{q}_R, j)$, à ω_j^2 telle que $z(1) = z(2) = \exp(i\delta_j)$ avec $0 < \delta_j < \pi$. Nous supposons encore que $\omega^2 \leq \omega_j^2$ pour δ contenu dans le voisinage δ_j de la courbe de dispersion des phonons de volume j . Dorénavant, la pente de la courbe de dispersion $\omega^2(q_z)$ s'annule pour $\delta = \delta_j$ et $\partial\delta/\partial(\omega^2)$ varie encore comme $|\omega^2 - \omega_j^2|^{-\frac{1}{2}}$ quand $\omega^2 \rightarrow (\omega_j^2)^-$. Les densités spectrales $\rho(j)$ divergent pour n'importe quelle valeur j au même titre que $|\omega^2 - \omega_j^2|^{-\frac{1}{2}}$ quand $\omega^2 \rightarrow (\omega_j^2)^-$.

En résumé, alors que la position de la résonance ne tient pas particulièrement compte de l'onde incidente j considérée, le comportement de toute densité spectrale au voisinage d'une singularité de Van Hove dépend, en revanche, intimement de l'onde incidente j effectivement excitée.

Il faudra noter que :

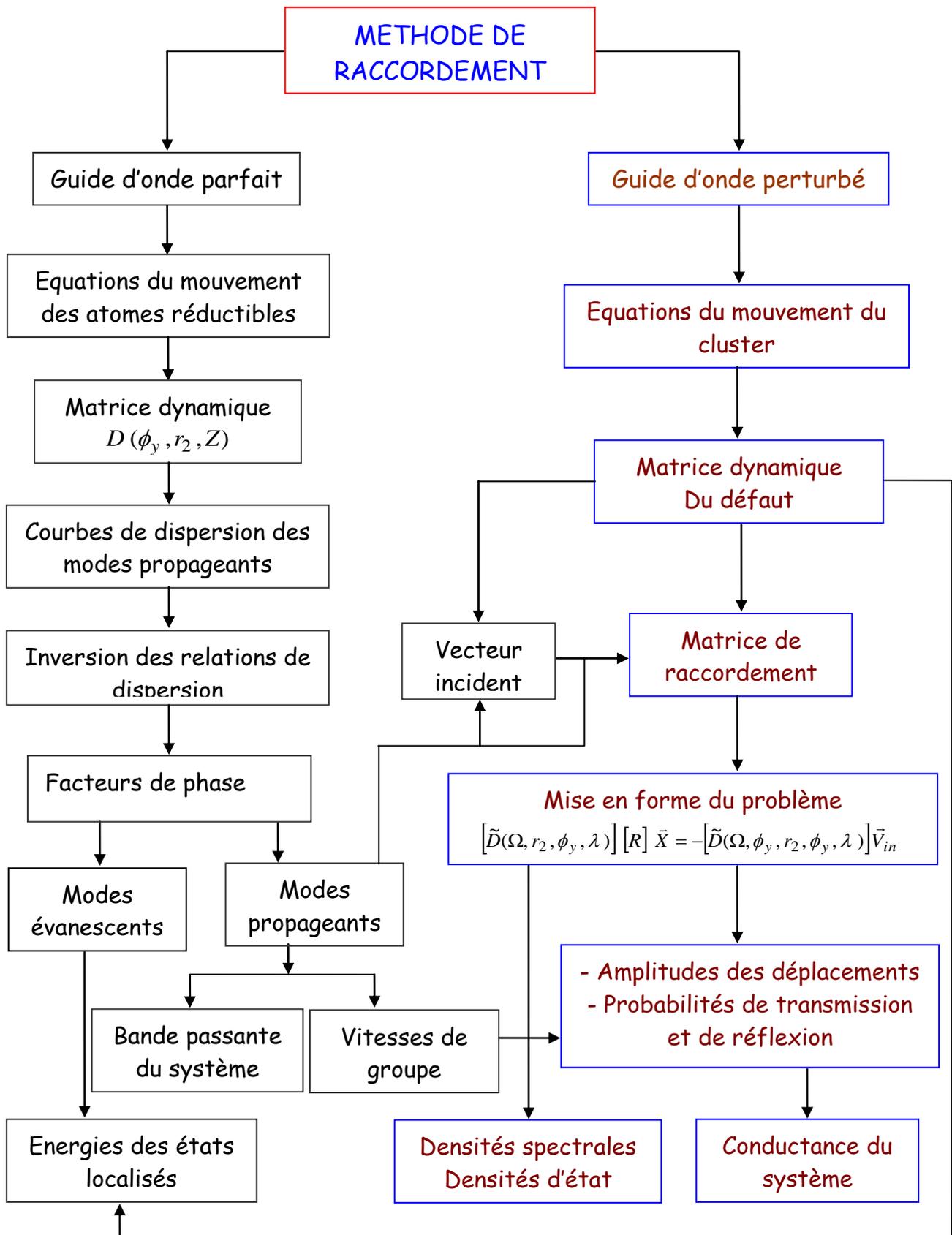
- La densité spectrale mesurée expérimentalement est une moyenne thermique de toutes les densités j figurant dans (1.4.7) ; même si $\rho(j')$ diverge autour d'une singularité de Van Hove, l'aire sous les courbes reste une quantité finie, puisque $\rho(j')$ varie comme

$\left| \omega^2 - \omega_j^2 \right|^{-\frac{1}{2}}$. L'identification des pertes spectrales [68-70] dues aux singularités de van Hove est discutée dans la référence [27].

- Contrairement à la méthode de raccordement, les calculs menés en utilisant les fonctions de Green [71] ne tiennent pas compte des discontinuités de la densité spectrale au voisinage d'une singularité de Van Hove puisqu'ils sont approximés avec une fonction continue.

1.5 - Organigramme de la méthode

Selon le schéma ci-dessous, nous établirons d'abord dans le cadre de l'approximation harmonique les équations dynamiques qui régissent le mouvement des atomes dans un réseau parfait constitué d'un double plan infini. Les modes propres correspondants décrivent les ondes de vibration transmises sans être atténuées, *i. e.* que le double plan peut être assimilé à un guide d'onde pour de tels modes. En considérant différentes configurations, nous introduirons les défauts en changeant soit la masse atomique soit le couplage inter atomique (ou les deux à la fois) pour établir les équations de la diffusion qu'il faudra résoudre numériquement. Nous discuterons les résultats en nous inspirant des travaux réalisés en électronique [15-19] ; en particulier, nous chercherons à savoir dans quelle mesure des phénomènes analogues à ceux observés dans le cas électronique se produisent dans le nouveau domaine des ondes vibratoires.



Chapitre 2

Dynamique Vibrationnelle du Réseau Parfait

2.1 - Introduction

Le problème à résoudre consiste en l'étude de la diffusion d'ondes vibratoires dans un cristal comportant un défaut de structure. Nous devons, pour ce faire, d'abord analyser le comportement de l'onde qui se propage à travers un réseau parfait. Notre modèle est assimilé à un double plan infini d'atomes qui représente un guide d'onde parfait quasi tri-dimensionnel. Les masses, dont les interactions sont modélisées par des ressorts harmoniques, sont disposées aux nœuds du réseau. De ce fait, il serait possible de construire un modèle contenant suffisamment de paramètres pour décrire avec une bonne précision un système réel. Cependant, ce travail ne cherche pas directement à obtenir une adéquation quantitative avec des grandeurs expérimentales, qui n'ont d'ailleurs pas été mesurées pour l'instant. L'objectif est de faire apparaître les phénomènes qui nous intéressent sans les noyer dans des difficultés numériques.

Dans cette partie, nous nous intéresserons à l'application de la théorie gouvernant les ondes se propageant à travers les trois directions de l'espace qui définissent le réseau cristallin. En particulier, nous déterminerons la matrice dynamique du réseau parfait et nous étudierons la dispersion des ondes par ce réseau. Nous montrerons, dans ce cas, l'existence

de six modes propres de vibration: trois modes acoustiques et trois modes optiques. On dit qu'un mode est propageant s'il transporte une énergie pendant son déplacement. Contrairement, un mode évanescent possède une énergie insuffisante pour aller d'un atome à un autre plus éloigné. Dans ce cadre, nous déterminerons aussi les facteurs de phase associés à chaque mode en utilisant deux différentes méthodes de calcul: la méthode du déterminant et la méthode "d'augmentation de la base". Ensuite, en trouvant les bandes passantes, nous indiquerons les limites des fréquences propageantes possibles associées à chacun des modes pour tout angle d'incidence donné. En dernier lieu, nous nous intéresserons à la détermination des vitesses de groupe propres à chacun des modes. Là aussi, deux méthodes de calcul sont proposées: la méthode classique des pentes et une méthode dite « perturbative » [20,24] plus récente.

2. 2 - Modes Propageants

2. 2. 1 - Etapes préliminaires

Contrairement au cas électronique, il ne s'agit pas de résoudre une équation de Schrödinger, mais une équation dynamique de type Newton. Nous considérons un réseau cristallin, de structure parallélépipédique, formé de deux plans atomiques infinis. Aussi, les atomes, de masses m , peuvent se mouvoir dans les trois directions cartésiennes de l'espace. Ce réseau d'atomes « classiques », symbolisé par un assemblage de masses ponctuelles reliées par des ressorts harmoniques, représente notre guide d'onde parfait quasi-tridimensionnel. La figure 2.1 schématise ce guide d'onde et introduit la convention de numérotation des atomes ainsi que les différentes constantes de raideur des ressorts. Ces constantes de force de liaison entre premiers et seconds proches voisins seront respectivement désignées par k_1 et k_2 . Pour des raisons de simplicité, nous prendrons la même distance a entre atomes adjacents dans les trois directions cartésiennes de l'espace ; ce qui engendre un réseau cubique simple.

Durant ce travail, seules les interactions de premiers et seconds voisins seront considérées conformément à la théorie développée au paragraphe 2 du chapitre 1. Pour simplifier, la distance inter-atomique sera toujours prise égale à l'unité ($a=1$). La masse m est également normalisée à 1. D'autre part, le nombre de ressorts accrochés à chaque masse est le plus petit compatible avec la stabilité de l'ensemble ; si on se contente de l'approximation des plus proches voisins (i. e. liaisons adjacentes), l'édifice s'écrase sous l'effet du cisaillement. Les ressorts obliques, auxquels nous attribuons la constante k_2 , corrigent ce défaut [17,24]. Les valeurs numériques des constantes k_1 et k_2 sont arbitraires ; au-delà de leur signification géométrique, notre seul critère ayant été d'éviter des dégénérescences accidentelles, nous les avons fixées, une fois pour toutes, à $k_1 = 1$ et $k_2 = 0.5$.

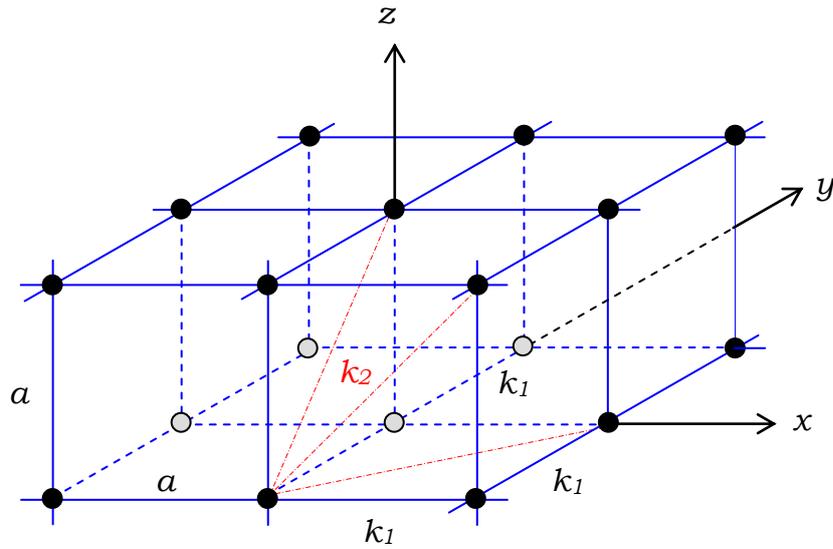


Fig. 2.1 : Guide d'onde parfait symbolisé par un réseau cubique simple constitué de deux plans atomiques infinis. Les constantes de force de liaison entre proches et seconds voisins sont désignées respectivement par k_1 et k_2 .

2. 2. 2 - Ecriture des équations du mouvement

Comme déjà mentionné, la dynamique du guide d'onde est décrite par les équations de type Newton qui définissent les amplitudes des déplacements $u_\alpha(L)$ en un site (L) suivant les différentes directions α de l'espace notées par x, y ou z .

Dans le cadre de l'approximation harmonique [26], l'équation du mouvement d'un atome est habituellement donnée par la formule générale (équation 1.2.2):

$$\omega^2 m(L) u_\alpha(L, \omega^2) = - \sum_{l' \neq l} \sum_{\beta} K(L, L') \frac{r_\alpha r_\beta}{d^2} \left[u_\beta(L, \omega^2) - u_\beta(L', \omega^2) \right], \quad (2.1)$$

pour $(\alpha, \beta) \in \{x, y, z\}$, les trois directions cartésiennes de l'espace. $m(L)$ indique la masse de l'atome du site (L) , $u_\alpha(L, \omega^2)$ le déplacement suivant la direction α ; r_α représente la composante du vecteur position relative entre les sites (L) et (L') , d la distance qui les sépare et $K(L, L')$ est la constante de force entre les atomes occupant ces sites. ω est la fréquence de vibration de l'atome considéré. Nous rappelons que la sommation sur (L') porte sur tous les premiers et deuxièmes voisins du site (L) .

Tous les atomes du réseau parfait ayant des sites identiques sont équivalents. Ces atomes sont dits réductibles. Dans notre cas, les équations du mouvement ne seront, par conséquent, écrites que pour deux atomes et pourront être déduites par simple translation suivant les trois directions x , y et z pour n'importe quel autre. En considérant que chaque atome est entouré de cinq premiers voisins et de huit seconds voisins, les projections de l'équation (2.1) suivant chacune des directions cartésiennes permettent de trouver les équations ci-dessous. Suivant $x(\alpha = x)$, sa projection est :

$$\begin{aligned} \omega^2 m(L) u_x(L, \omega^2) = & - \sum_{l' \neq l} K(L, L') \frac{r_x^2}{d^2} \left[u_x(L, \omega^2) - u_x(L', \omega^2) \right] \\ & - \sum_{l' \neq l} K(L, L') \frac{r_x r_y}{d^2} \left[u_y(L, \omega^2) - u_y(L', \omega^2) \right], \\ & - \sum_{l' \neq l} K(L, L') \frac{r_x r_z}{d^2} \left[u_z(L, \omega^2) - u_z(L', \omega^2) \right] \end{aligned} \quad (2.2a)$$

qui s'écrit, sous forme développée, comme suit:

$$\begin{aligned} m\omega^2 u_x(L) = & -k_1(u_x(L) - u_x(l+1, m, n)) - k_1(u_x(L) - u_x(l-1, m, n)) \\ & - \frac{k_2}{2}(u_x(L) - u_x(l+1, m+1, n)) - \frac{k_2}{2}(u_x(L) - u_x(l+1, m-1, n)) \\ & - \frac{k_2}{2}(u_x(L) - u_x(l-1, m+1, n)) - \frac{k_2}{2}(u_x(L) - u_x(l-1, m-1, n)) \\ & - \frac{k_2}{2}(u_x(L) - u_x(l, m+1, n+1)) - \frac{k_2}{2}(u_x(L) - u_x(l, m-1, n+1)) \cdot (2.2a') \\ & - \frac{k_2}{2}(u_y(L) - u_y(l+1, m+1, n)) + \frac{k_2}{2}(u_y(L) - u_y(l+1, m-1, n)) \\ & + \frac{k_2}{2}(u_y(L) - u_y(l-1, m+1, n)) - \frac{k_2}{2}(u_y(L) - u_y(l-1, m-1, n)) \\ & - \frac{k_2}{2}(u_z(L) - u_z(l+1, m, n+1)) - \frac{k_2}{2}(u_z(L) - u_z(l-1, m, n+1)) \end{aligned}$$

La projection suivant y donne lieu à l'équation :

$$\begin{aligned}
\omega^2 m(L) u_y(L, \omega^2) = & - \sum_{l' \neq l} K(L, L') \frac{r_x r_y}{d^2} \left[u_x(L, \omega^2) - u_x(L', \omega^2) \right] \\
& - \sum_{l' \neq l} K(L, L') \frac{r_y^2}{d^2} \left[u_y(L, \omega^2) - u_y(L', \omega^2) \right], \quad (2.2b) \\
& - \sum_{l' \neq l} K(L, L') \frac{r_y r_z}{d^2} \left[u_z(L, \omega^2) - u_z(L', \omega^2) \right]
\end{aligned}$$

qui, après développement, devient :

$$\begin{aligned}
m\omega^2 u_y(L) = & -\frac{k_2}{2} (u_x(L) - u_x(l+1, m+1, n)) + \frac{k_2}{2} (u_x(L) - u_x(l+1, m-1, n)) \\
& + \frac{k_2}{2} (u_x(L) - u_x(l-1, m+1, n)) - \frac{k_2}{2} (u_x(L) - u_x(l-1, m-1, n)) \\
& - k_1 (u_y(L) - u_y(l, m+1, n)) - k_1 (u_y(L) - u_y(l, m-1, n)) \\
& - \frac{k_2}{2} (u_y(L) - u_y(l+1, m+1, n)) - \frac{k_2}{2} (u_y(L) - u_y(l+1, m-1, n)) \\
& - \frac{k_2}{2} (u_y(L) - u_y(l-1, m+1, n)) - \frac{k_2}{2} (u_y(L) - u_y(l-1, m-1, n)) \\
& - \frac{k_2}{2} (u_z(L) - u_z(l, m+1, n+1)) + \frac{k_2}{2} (u_z(L) - u_z(l, m-1, n+1))
\end{aligned} \quad (2.2b')$$

Enfin, la projection suivant z donne :

$$\begin{aligned}
\omega^2 m(L) u_z(L, \omega^2) = & - \sum_{l' \neq l} K(L, L') \frac{r_x r_z}{d^2} \left[u_x(L, \omega^2) - u_x(L', \omega^2) \right] \\
& - \sum_{l' \neq l} K(L, L') \frac{r_y r_z}{d^2} \left[u_y(L, \omega^2) - u_y(L', \omega^2) \right], \quad (2.2c) \\
& - \sum_{l' \neq l} K(L, L') \frac{r_z^2}{d^2} \left[u_z(L, \omega^2) - u_z(L', \omega^2) \right]
\end{aligned}$$

qui devient sous forme développée,

$$\begin{aligned}
m\omega^2 u_z(L) = & -\frac{k_2}{2}(u_x(L) - u_x(l+1, m, n+1)) + \frac{k_2}{2}(u_x(L) - u_x(l-1, m, n+1)) \\
& -\frac{k_2}{2}(u_y(L) - u_y(l, m+1, n+1)) + \frac{k_2}{2}(u_y(L) - u_y(l, m-1, n+1)) \\
& -k_1(u_z(L) - u_z(l, m, n+1)) \quad , \quad (2.2c') \\
& -\frac{k_2}{2}(u_z(L) - u_z(l+1, m, n+1)) - \frac{k_2}{2}(u_z(L) - u_z(l-1, m, n+1)) \\
& -\frac{k_2}{2}(u_z(L) - u_z(l, m+1, n+1)) - \frac{k_2}{2}(u_z(L) - u_z(l, m-1, n+1))
\end{aligned}$$

où le site (L) est assimilé à l'ensemble des trois coordonnées (l, m, n) et les paramètres k_1 et k_2 représentent les constantes de forces de liaison entre premiers et seconds voisins, respectivement. Notons que les liaisons diagonales qui couplent les déplacements parallèle et perpendiculaire sont nécessaires pour stabiliser le système relativement au cisaillement.

2. 2. 3 - Matrice dynamique - Equations propres

Les équations (2.2a'), (2.2b') et (2.2c') doivent être résolues pour tous les atomes considérés avec des conditions aux limites appropriées. Dans le présent travail, nous utilisons les conditions aux limites de diffusion [24,27] pour lesquelles nous obtenons des solutions d'onde plane complexe :

$$\vec{u}(L) = \vec{u}_{(L=0)} e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} \quad , \quad (2.3)$$

où \vec{q} est le vecteur d'onde réel, \vec{r} désigne la position d'équilibre atomique et le vecteur \vec{u} décrit les amplitudes des déplacements de chaque atome :

$$\vec{u}(L) = \begin{pmatrix} u_x(L) \\ u_y(L) \\ u_z(L) \end{pmatrix} . \quad (2.4)$$

Dans la direction Ox du mouvement, l'onde peut être atténuée en rencontrant le défaut. De ce fait, il serait commode de relier les vecteurs déplacements de deux atomes adjacents par un facteur d'atténuation Z , tel que:

$$u_x(l \pm 1, m, n) = Z^{\pm 1} u_x(l, m, n) . \quad (2.5)$$

Cette relation est une caractéristique essentielle de la méthode de raccordement [24,28], initialement employée pour l'étude des phonons de surface localisés et des résonances [voir relations (1.3.2) et (1.4.1)]. Pour les ondes propageantes de l'équation (2.3), nous avons $Z = e^{iq_x r_x} = e^{iq_x a}$, *i.e.* le module de Z est égal à l'unité. En nous rappelant de la valeur du paramètre de réseau a , égale à l'unité, nous pouvons écrire simplement $Z = e^{iq}$.

Quant à la direction perpendiculaire au mouvement, c'est-à-dire suivant y qui est un axe de symétrie pour tout le problème, nous pouvons écrire, d'après la fonction de Bloch [63], que :

$$u_y(l, m \pm 1, n) = e^{\pm i \phi_y} u_y(l, m, n), \quad (2.6)$$

où $\phi_y = q_y r_y = q_y a$, q_y étant le vecteur d'onde unidimensionnel du réseau réciproque dans la direction y .

Compte tenu des relations (2.5) et (2.6) caractérisant les ondes planes et en divisant les expressions (2.2) par la constante de force entre proches voisins k_l , les équations du mouvement se transforment alors en un système matriciel qui peut s'écrire :

$$\begin{pmatrix} D(1) & D(4) & 0 & D(5) & 0 & D(6) \\ D(4) & D(2) & 0 & 0 & D(7) & D(8) \\ 0 & 0 & D(3) & D(6) & D(8) & D(9) \\ D(5) & 0 & -D(6) & D(1) & D(4) & 0 \\ 0 & D(7) & -D(8) & D(4) & D(2) & 0 \\ -D(6) & -D(8) & D(9) & 0 & 0 & D(3) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_x(l, m, n) \\ u_y(l, m, n) \\ u_z(l, m, n) \\ u_x(l, m, n+1) \\ u_y(l, m, n+1) \\ u_z(l, m, n+1) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (2.7)$$

avec :

$$D(1) = \Omega^2 - 2 - 3r_2 - \left[1 + r_2 \cos(\phi_y)\right] \left(Z + \frac{1}{Z}\right); \quad D(6) = \frac{r_2}{2} \left(Z - \frac{1}{Z}\right);$$

$$D(2) = \Omega^2 - 2 - 3r_2 - 1 + r_2 \cos(\phi_y) \left[2 + r_2 \left(Z + \frac{1}{Z}\right)\right] \cos(\phi_y); \quad D(7) = r_2 \cos(\phi_y);$$

$$D(3) = \Omega^2 - 1 - 2r_2; \quad D(8) = i r_2 \sin(\phi_y) = 0;$$

$$D(4) = i r_2 \sin(\phi_y) \left(Z - \frac{1}{Z}\right); \quad D(9) = 1 + r_2 \cos(\phi_y) + \frac{r_2}{2} \left(Z + \frac{1}{Z}\right);$$

$$D(5) = \frac{r_2}{2} \left(Z + \frac{1}{Z}\right);$$

où $\Omega = \left[m\omega^2/k_1 \right]^{1/2} = \omega/\omega_0$ est la fréquence normalisée, sans dimension et $r_2 = k_2/k_1$ le rapport entre les constantes de force des deuxième et premier voisins du réseau parfait. $\omega_0 = \sqrt{k_1/m}$ est la fréquence propre de vibration de la structure sans défaut.

Ou de façon plus condensé,

$$\left[\Omega^2 I - D(\phi_y, Z, r_2) \right] \cdot |\vec{u}\rangle = |0\rangle, \quad (2.8)$$

où I représente la matrice identité et D la matrice dynamique du réseau parfait. L'égalité (2.8) est l'équivalente de l'égalité (1.2.6) du chapitre 1.

La matrice D est, par conséquent, une matrice carrée de dimension (6×6) . Elle contient des termes en Z et en $(1/Z)$ que nous déterminerons après avoir étudié la dispersion.

2. 2. 4 - Relations de dispersion

2. 2. 4. 1 - Courbes de dispersion

La résolution de l'équation (2.8) pour $Z = e^{i\phi_x}$ fixé permet d'obtenir les fréquences propres de vibration Ω_ν et les vecteurs propres \vec{u}_ν qui leur sont associés. Les modes propageants du guide d'onde quasi-tridimensionnel correspondent aux solutions $|Z|=1$. Ils sont habituellement donnés en fonction de ϕ_x . La fonction d'onde $\phi_x = a \cdot q_x = q_x$ représente la composante du vecteur d'onde suivant la direction x dans le réseau réciproque du fait que la distance interatomique a est égale à l'unité, comme mentionné précédemment. Les composantes (ϕ_x, ϕ_y) du vecteur d'onde définissent, par conséquent, l'angle d'incidence de l'onde propageante.

Lorsque ϕ_x parcourt la première zone de Brillouin, soit ici l'intervalle $[-\pi/a \ \pi/a]$, nous obtenons les courbes de dispersion $\Omega(\phi_x)$. Une telle relation, où la fréquence Ω se déduit du nombre d'onde ϕ_x , est appelée relation de dispersion. C'est la façon la plus commode de caractériser le comportement ondulatoire d'un système. Un milieu satisfaisant à la relation simple Ω proportionnel à ϕ_x est dit non dispersif. Dans le cas où le rapport Ω/ϕ_x dépend de la longueur d'onde et donc de la fréquence, le milieu est dit dispersif. Dans l'étude des structures périodiques, la connaissance des relations de dispersion est importante, puisque

beaucoup des propriétés intéressantes des cristaux découlent plus ou moins directement de ces relations (*phonon focusing effect* [73], *negative refraction* [74], ...). Grâce aux relations de dispersion, il est en particulier possible de déterminer les fréquences permises pour tout vecteur d'onde incident.

L'allure des courbes de dispersion $\Omega(\phi_x)$, symétriques par rapport à l'axe des fréquences, est montrée sur la figure 2.2 pour différentes valeurs de l'angle d'incidence ϕ_y . Ces résultats indiquent la tendance des branches de dispersion à se comporter comme des fonctionnelles de ϕ_y .

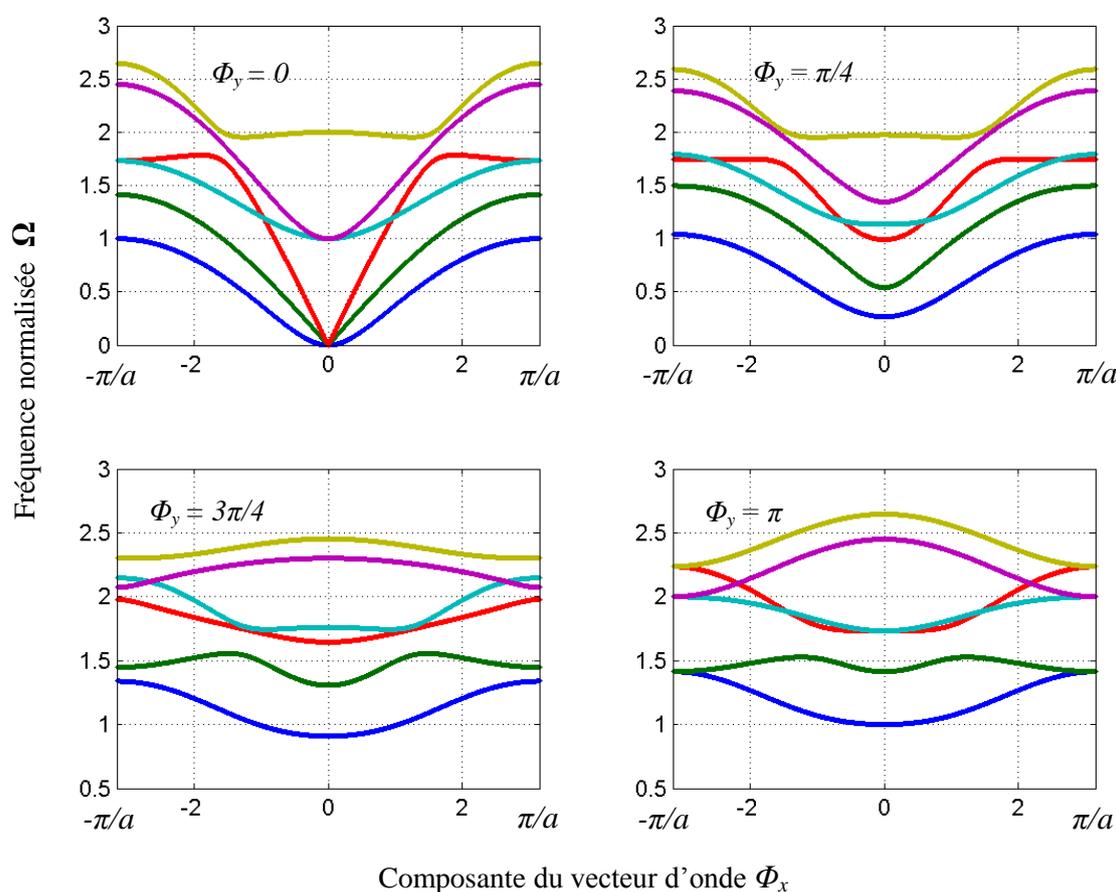


Fig. 2.2 : Courbes de dispersion des six modes propageants du guide d'onde parfait pour différentes valeurs de l'angle d'incidence Φ_y . Les modes sont numérotés de 1 à 6 de bas en haut.

2. 2. 4. 2 - Discussion des courbes de dispersion

Au point de vue technique, cette simulation est réalisée par le logiciel MATLAB. Les calculs numériques sont menés pour $r_2 = 0.5$. Ce rapport de constantes de force atomiques sera systématiquement utilisé dans les applications à venir. Nous remarquons immédiatement que, pour une incidence nulle, les trois premiers modes du double plan se rapportent aux vibrations acoustiques ($\Omega \rightarrow 0$ quand $\phi_x \rightarrow 0$). Elles correspondent aux translations du cristal entier dans les trois directions de l'espace. Les trois autres modes dont les pulsations sont différentes de zéro lorsque $\phi_x \rightarrow 0$ sont désignées par vibrations optiques. Cette dénomination tire son origine du fait que quelques unes de ces vibrations peuvent être excitées par des techniques optiques (spectroscopie infrarouge ou de Raman). Pour les autres valeur de ϕ_y , tous les modes deviennent optiques. Les figures indiquent également que les branches de dispersion sont dégénérées au centre de la zone de Briouillin, $\phi_y = 0$ pour les modes acoustiques et $\phi_y = \pi$ (dégénérescence par paire) pour les modes optiques.

Contrairement au cas électronique où les courbes sont des sinusoides parallèles, nous n'avons ici aucun espoir de trouver une expression analytique utilisable. Il faudra donc recourir à des méthodes purement numériques pour intégrer ces relations de dispersion dans le problème général avec défauts. Nous constatons, sans grande surprise, que ces courbes sont très proches des courbes de dispersion des phonons dans les cristaux.

On appelle phonon le quantum d'énergie associé à un mode. La courbe de dispersion peut également être considérée comme donnant le spectre des énergies $\hbar\Omega$ possibles pour les phonons, en fonction de leur impulsion $\hbar\phi_x$. La connaissance d'un tel spectre, pour un cristal réel, est très importante. Elle permet de préciser les énergies et les impulsions que le cristal est susceptible de fournir ou d'absorber lorsqu'il interagit avec un autre système.

Il existe des régions où certaines courbes ont une dérivée négative. Cette dérivée a une interprétation physique simple : il s'agit de la vitesse de groupe de l'onde plane. Une inversion du signe de la dérivée signifierait donc que la vitesse change de sens de propagation. Cette particularité semble être liée à des problèmes d'instabilité, ce qui fait penser à l'apparition de phonons mous à l'approche d'un changement de phase dans un cristal.

D'autre part, les branches de dispersion se recouvrent sur un certain intervalle de fréquence qui diminue avec ϕ_y . De ce fait, nous devons nous attendre à ce que les modes soient simultanément excités dans cet intervalle.

Nous constatons que, dans le cas quasi-tridimensionnel, les relations de dispersion sont déjà quelque peu compliquées. Naturellement, à trois dimensions elles le seront encore davantage puisque le nombre de modes augmente simultanément. Par exemple, pour un triple plan, il atteint neuf [57-58,77-78] et passe à douze dans le cas de quatre plans, etc.

2. 2. 4. 3 - Polarisations des modes de dispersion

Dans un cristal, les phonons sont décrits par des ondes planes $(\Omega, \vec{\phi})$. Le modèle considéré possédant deux atomes par maille, la courbe de dispersion comportera donc six branches : trois branches acoustiques (courbes de plus basse énergie), trois branches optiques. Alors que le mouvement de chaque atome dans la cellule élémentaire est en phase pour les phonons acoustiques, il est en opposition de phase pour les phonons optiques. Dans les directions de haute symétrie du cristal, les phonons sont qualifiés de transverses ou longitudinaux selon que leur déplacement est respectivement perpendiculaire ou parallèle à la direction du vecteur d'onde. Dans un solide, les phonons acoustiques transverses (TA) correspondent à une onde sonore en cisaillement tandis que les phonons acoustiques longitudinaux (LA) sont associés à une onde sonore en compression. L'examen des vecteurs propres (Fig. 2.3a et Fig. 2.3b) montre que les courbes de dispersion obtenues correspondent essentiellement à ces deux polarisations, longitudinale suivant x et transversales suivant y ou suivant z . Dans chaque catégorie, nous rencontrons des modes acoustiques et optiques. Dans le cas d'incidence nulle, la figure 2.3a indique, en substance, que les modes 3 et 5 sont polarisés longitudinalement alors que les autres modes le sont transversalement suivant z pour 1 et 6, suivant y pour 2 et 4.

Les modes propres de vibration du réseau sont des ondes vectorielles. Il y a en effet trois degrés de liberté par atome (déplacements $[u_\alpha (\alpha = x, y \text{ ou } z)]$), contrairement au cas électronique, où la grandeur variable (la densité de charge) est scalaire. L'information contenue dans les courbes de dispersion n'est donc pas suffisante pour décrire complètement les modes ; il faut aussi connaître les vecteurs propres \vec{u}_v . Ces derniers possèdent une propriété intéressante : ils sont soit symétriques, soit antisymétriques par rapport à un axe parallèle à l'axe x passant au milieu d'une colonne, entre les deux plans.

Cette propriété des modes a une conséquence directe sur les relations de dispersion : deux branches de même symétrie ne se croisent jamais. On le voit particulièrement bien sur la figure 2.2 : les modes sont dégénérés en un ou plusieurs points, tandis que les branches 3 et 6, toutes deux de même symétrie, se repoussent et forment un anticroisement. Des structures semblables se retrouvent pour n'importe quelle épaisseur du guide d'onde.

D'autre part, les vecteurs propres forment une base complète de l'espace des vecteurs déplacements. Cette propriété permet de décomposer $\vec{u} = \sum_v c_v \vec{u}_v$ et donc de décrire le comportement de n'importe quelle onde propageante dans le système.

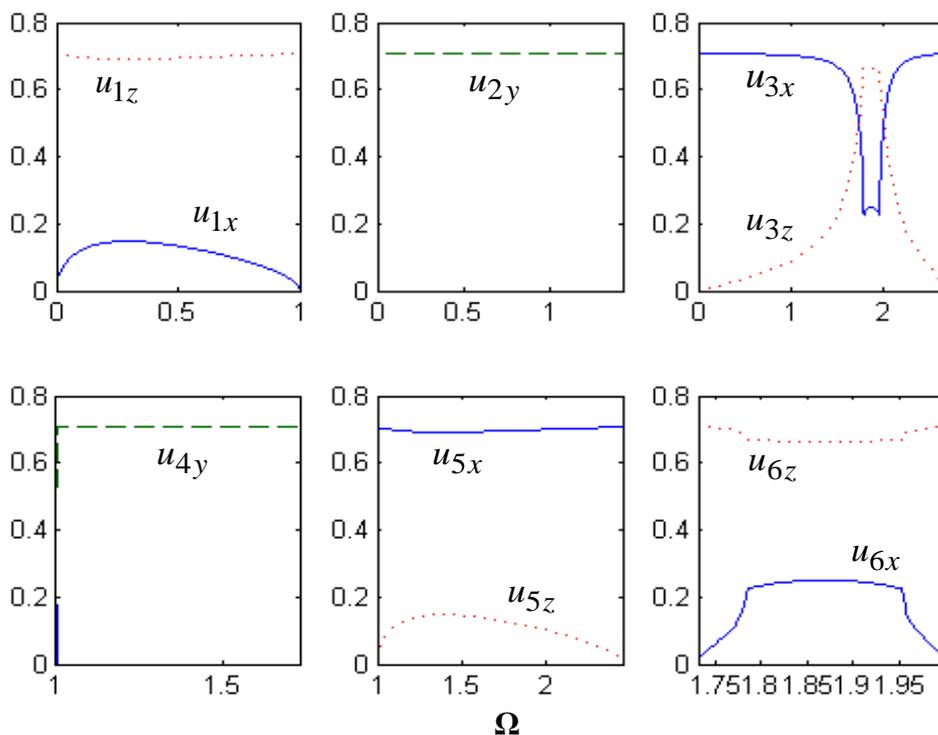


Fig. 2.3a : Composantes du vecteur propre de chacun des modes de vibration en fonction de la fréquence normalisée sans dimension dans le cas $\phi_y = 0$.

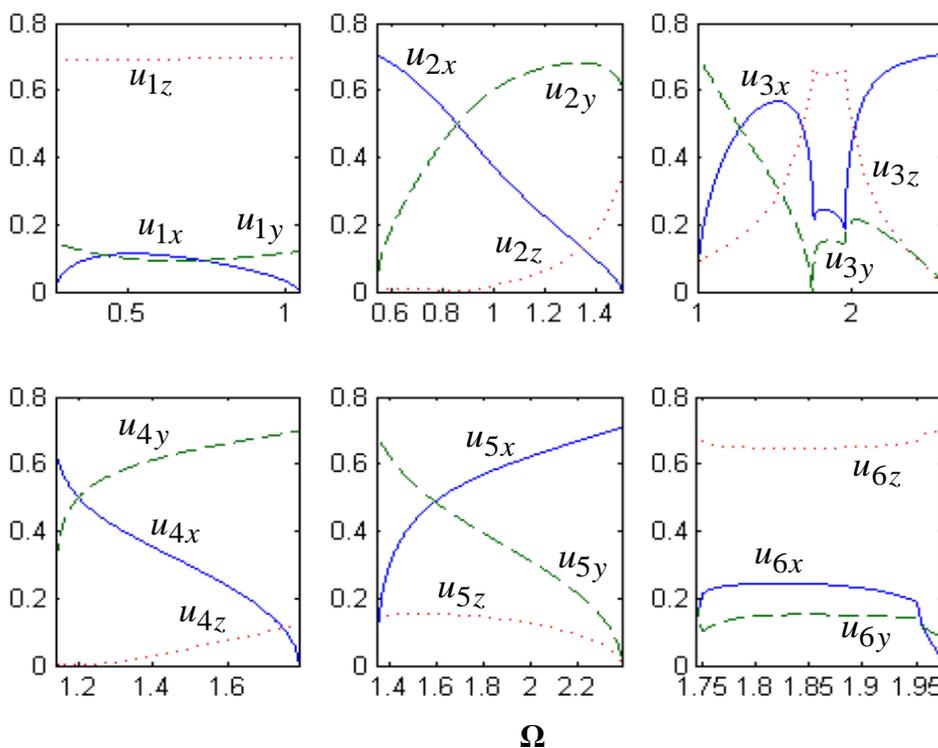


Fig. 2.3b : Composantes du vecteur propre de chacun des modes de vibration en fonction de la fréquence normalisée sans dimension dans le cas $\phi_y = \pi/4$.

2. 2. 5 - Bande passante du système

La loi de dispersion qui donne la pulsation Ω associée à chaque valeur du vecteur d'onde ϕ_x permet d'étudier la propagation des ondes dans le système. Une vibration de fréquence Ω ne peut se propager que si Ω est contenue dans la « bande permise », les autres valeurs correspondent naturellement à la « bande interdite » extérieure. Dans le cadre de nos hypothèses, si un phonon dans un cristal est dans un état stationnaire, il ne peut avoir d'énergie dont la valeur ne soit pas comprise dans cette bande. Autrement dit, toutes les énergies possibles sont confinées dans une certaine bande qui s'étend entre deux niveaux minimum et maximum.

La résolution numérique du système d'équations dynamiques (2.8) pour des solutions itinérantes donne la bande énergétique des phonons de volume du guide d'onde parfait. Elle est représentée sur la figure 2. 5. D'emblée, nous remarquons la présence de petites fenêtres dans la bande passante dont la largeur s'agrandit avec la constante de force k_2 qui symbolise la liaison entre seconds voisins du réseau. Ces espaces correspondant aux fréquences purement évanescentes sont évidemment interdits aux phonons de volume.

Sur la figure 2. 4, sont représentées séparément les bandes propageantes individuelles (zone en pointillés) de chacun des six modes de vibration du cristal. La bande passante globale du système est rigoureusement reproduite par superposition de ces dernières. Les petites fenêtres évoquées précédemment se rapportent aux espaces qui ne sont pas recouverts par superposition des bandes. Autrement dit, elles représentent bien des zones interdites aux phonons de volume. Nous pouvons vérifier, par la même occasion, la bonne correspondance quant à l'étendue des plages fréquentielles de propagation obtenues dans les courbes de dispersion (Fig 2. 2) pour n'importe quelle valeur de l'angle d'incidence ϕ_y .

La délimitation des bandes d'énergie peut particulièrement servir à illustrer la relation entre les amplitudes de diffusion des phonons en présence de défauts et les états liés qui y sont induits. Cette relation constitue l'un des fils directeurs les plus utiles dans les recherches actuelles pour une meilleure compréhension des observations expérimentales. Par états liés, nous entendons une association ayant une énergie inférieure à celle des particules libres.

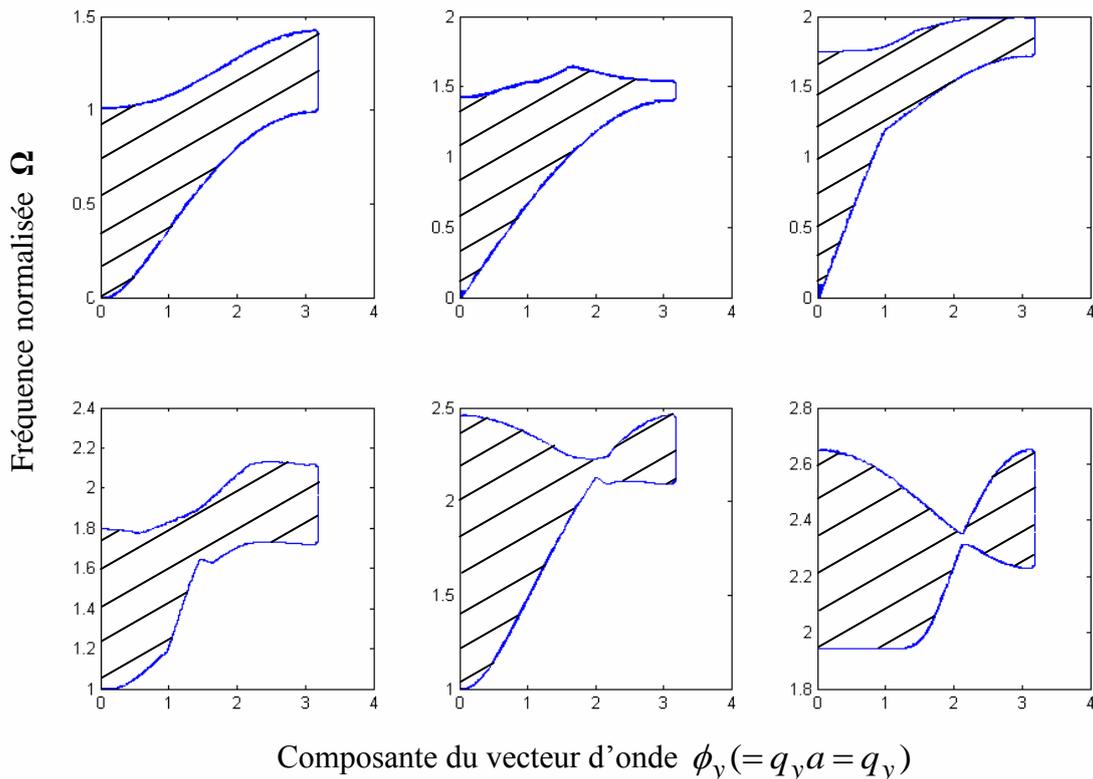


Fig. 2.4 : Bandes passantes individuelles de chacun des modes de vibration du système.

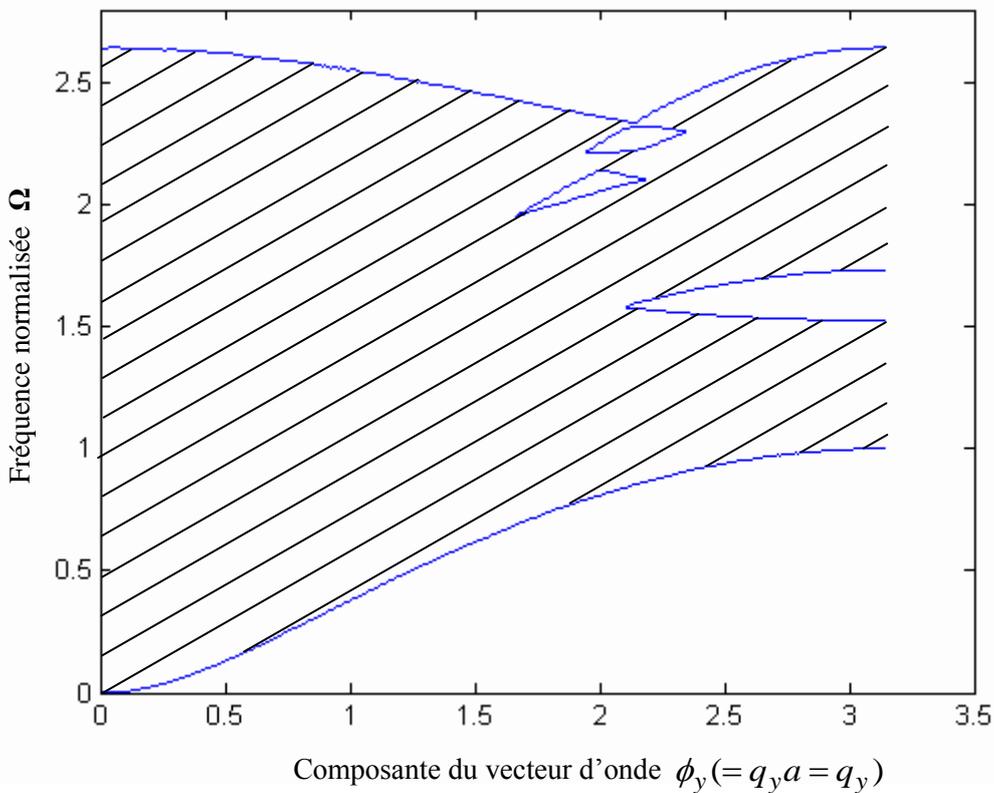


Fig. 2.5 : Superposition des bandes passantes individuelles : bande passante globale du système.

2.3 - Modes évanescents

Pour décrire la diffusion en présence de défauts de structure, nous n'avons pas seulement à connaître les modes propageants définis précédemment ($|Z_v|=1$), mais aussi à considérer les solutions évanescentes du système. En d'autres termes, pour une fréquence Ω donnée, nous avons besoin de toutes les solutions Z , même celles dont le module est inférieur à l'unité (nous reviendrons sur ce point dans le prochain chapitre). Ces solutions peuvent être obtenues par différentes procédures [27,75-76]. Toutefois, seules les étapes principales de calcul seront développées.

2.3.1 - Calcul des facteurs d'atténuation

Avant d'aborder le problème général avec défauts, il reste une étape préliminaire à accomplir : l'inversion des relations de dispersion. En effet, pour le moment, nous ne savons que trouver les fréquences possibles en fonction du vecteur d'onde. Or l'expérience indique que ce n'est pas le vecteur d'onde ϕ_x mais la fréquence Ω qui est conservée lors de la diffusion d'une onde incidente par des défauts. En d'autres termes, les défauts couplent les différents modes à fréquence constante ; il est, par conséquent, indispensable de considérer celle-ci comme variable indépendante.

L'équation (2.8) permet de trouver les fréquences Ω_v à Z fixé, c'est-à-dire à ϕ_x fixé. Nous voulons maintenant connaître les facteurs de phase Z_v à la fréquence Ω fixée. Pour cela, deux méthodes de calcul peuvent être utilisées.

2.3.1.1 - Méthode du déterminant

Elle consiste à trouver les racines du polynôme caractéristique de la matrice dynamique (équation 2.8) ; une solution non triviale requiert que le déterminant de la matrice $\left[\Omega^2 I - D(\phi_y, Z, r_2) \right]$ s'annule. Ce qui donne lieu à l'équation séculaire caractéristique (voir relations 1.3.3) de degré 12 en Z qui peut être exprimée sous forme polynomiale comme suit:

$$A_0 + A_1 Z + A_2 Z^2 + A_3 Z^3 + A_4 Z^4 + A_5 Z^5 + A_6 Z^6 + A_7 Z^7 + A_8 Z^8 + A_9 Z^9 + A_{10} Z^{10} + A_{11} Z^{11} + A_{12} Z^{12} = 0 \quad (2.9)$$

où les coefficients A_n sont fonctions de Ω , ϕ_y et r_2 . Les facteurs de phase Z et Z^{-1} vérifient symétriquement l'égalité (1.3.9) (voir paragraphe 3 du chapitre 1) à cause de la nature Hermitienne de la matrice dynamique ou symétrie d'inversion du temps [20,23,27,75]. Pour satisfaire les conditions d'évanescence, nous sélectionnons, cependant, uniquement les six solutions physiquement acceptables pour Z à partir des douze racines de l'équation (2.9). Ensemble, ces solutions constituent dans l'espace $\{\Omega, \phi_y\}$ les modes évanescents $|Z(i)| < 1$. Le champ évanescent du guide d'onde est alors rigoureusement déterminé. Nous retenons les solutions dont le module de Z est égal à 1 (modes propageants) ou inférieur à 1 (modes atténués). Les autres, de module supérieur à l'unité, correspondent à des modes divergents ; elles sont rejetées car elles n'ont aucune signification physique.

2.3.1.2 - Méthode de l'augmentation de la base

Comme son nom l'indique, cette deuxième méthode consiste en l'augmentation de la base de l'espace des vecteurs propres. Ce qui conduit à linéariser le système en posant de nouvelles variables [19,24] définies de la façon suivante :

$$\vec{u}_\beta(l) = -\frac{1}{Z} \vec{u}_\alpha(l), \quad \beta = 7, \dots, 12. \quad (2.10)$$

Nous pouvons alors réécrire l'équation dynamique (2.8) sous forme d'un problème aux valeurs propres Z ,

$$A(\Omega) \vec{W} = Z B \vec{W} \quad \text{avec} \quad \vec{W} = \begin{pmatrix} \vec{u}_\alpha(L) \\ \vec{u}_\beta(L) \end{pmatrix}, \quad (2.11)$$

où A et B sont des matrices (12×12) qui sont obtenues en remplaçant dans les équations du mouvement (2.7) le terme (\vec{u}_α/Z) par \vec{u}_β en respectant la correspondance. Par suite, nous réécrivons chaque équation sous la forme (2.11) puis, par identification, nous aboutissons aux formes explicites des matrices A et B ci-dessous:

$$[A] = \begin{bmatrix} A(1) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -A(4) & A(5) & 0 & -A(6) & 0 & A(6) \\ 0 & A(2) & 0 & 0 & A(7) & A(5) & -A(7) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & A(3) & 0 & A(5) & A(4) & 0 & 0 & 0 & A(6) & 0 & -A(6) \\ 0 & 0 & 0 & A(1) & 0 & 0 & -A(6) & 0 & -A(6) & -A(4) & A(5) & 0 \\ 0 & A(7) & -A(5) & 0 & A(2) & 0 & 0 & 0 & 0 & A(5) & -A(7) & 0 \\ 0 & -A(5) & A(4) & 0 & 0 & A(3) & -A(6) & 0 & -A(6) & 0 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix},$$

où

$$\begin{aligned} A(1) &= \Omega^2 - 2 - 3r_2; & A(2) &= \Omega^2 - 2 - 3r_2 + 2\cos(\phi_y); \\ A(3) &= \Omega^2 - 1 - 2r_2; & A(4) &= 1 + r_2 \cos(\phi_y); \end{aligned} \quad (2.12)$$

$$A(5) = ir_2 \sin(\phi_y); \quad A(6) = \frac{r_2}{2}; \quad A(7) = r_2 \cos(\phi_y);$$

et

$$B = \begin{bmatrix} -B(1) & -B(2) & 0 & -B(3) & 0 & -B(3) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ B(2) & -B(4) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -B(3) & 0 & -B(3) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -B(3) & 0 & B(3) & -B(1) & -B(2) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -B(2) & -B(4) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ B(3) & 0 & -B(3) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix},$$

$$B(1) = 1 + r_2 \cos(\phi_y); \quad B(2) = ir_2 \sin(\phi_y);$$

où

$$B(3) = \frac{r_2}{2}; \quad B(4) = r_2 \cos(\phi_y) \quad (2.13)$$

Notons que la dimension de ce problème aux valeurs propres généralisé est le double de celle du problème initial.

La résolution de ce système donne 6 valeurs propres Z_μ et 6 vecteurs propres de dimension 6 qu'il s'agit de trier. Notons tout d'abord que les six dernières composantes des vecteurs propres proviennent de l'artifice mathématique utilisé et ne contiennent, par conséquent, aucune information physique, le problème de départ étant un système non linéaire de dimension (6×6) . Nous appellerons désormais vecteurs propres les vecteurs formés par les six premières composantes de \vec{W} . L'obtention simultanée des directions propres de la matrice dynamique constitue, sans aucun doute, le principal avantage qu'offre cette méthode relativement à celle du déterminant.

2. 3. 2 - Tri des valeurs et vecteurs propres

La résolution du système (2.8) permet d'aboutir à deux couples de valeurs propres Z_ν et $1/Z_\nu$ en utilisant l'une ou l'autre des deux méthodes évoquées précédemment. Nous pouvons les classer en trois catégories :

| | |
|-------------------------|----------------|
| Z_μ | $(\phi_x)_\mu$ |
| réel | Imaginaire |
| Complexe de norme unité | réel |
| Complexe | Complexe |

a) Solutions réelles

Les Z_μ réels correspondent à des modes atténués ou divergents. Les seules solutions physiques sont les modes atténués. Nous retenons donc les valeurs propres telles que $|Z_\mu| \leq 1$.

b) Solutions complexes

* Complexes de norme unité

Ils correspondent à des modes propageants. Ce sont ceux représentés par les courbes de dispersion de la figure 2.2. Le critère de sélection est ici arbitraire : nous choisissons une fois pour toutes de garder les modes propageants dans le sens gauche \rightarrow droite. Pour cela, il faut

généralement prendre le facteur Z_μ correspondant à une valeur de $(\phi_x)_\mu$ positive (voir tableau ci-dessus), c'est-à-dire poser la condition $\text{Im}(Z_\nu) > 0$. Cependant, comme nous l'avons vu plus haut, la vitesse de groupe est négative en certains endroits des courbes de dispersion alors même que ϕ_x est positif. Dans ce cas, il faut prendre la valeur propre donnée par la condition $\text{Im}(Z_\nu) < 0$ pour avoir un mode se propageant dans le sens souhaité.

* Complexes de norme différente de l'unité

Ces racines sont aussi des modes atténués ou divergents. Nous retiendrons également les valeurs telles que $|Z_\mu| < 1$.

A la fin de cette procédure de tri, nous avons donc obtenu les valeurs propres Z_ν ($\nu = 1, \dots, 6$), et les vecteurs propres correspondants. Plus tard, dans le chapitre 3, nous verrons que les deux solutions propageante et évanescence sont nécessaires pour une description complète de la diffusion en présence de défauts.

2.3.3 - Représentation spatiale des modes de vibration

Pour avoir une vision complète des courbes de dispersion, comprenant aussi bien les modes atténués que les modes propageants, il est intéressant de représenter sur un graphique à 3D les trajectoires parcourues dans le plan complexe par les facteurs de phase Z_μ en fonction de la fréquence Ω .

Sur la figure 2.6, sont représentés les comportements fonctionnels des six modes de vibration caractérisant le double plan. Pour faciliter la comparaison entre les deux représentations, les courbes de dispersion $\Omega(\phi_x)$ sont reproduites juste au dessus des courbes spatiales $\Omega(Z)$, en marquant les points communs particulièrement importants. Comme mentionné plus haut, les solutions propageantes projetées sur le plan complexe sont disposées suivant des cercles de rayon unité ayant pour équation $|\text{Re}(Z)|^2 + |\text{Im}(Z)|^2 = 1$, c'est-à-dire les solutions dont le module du facteur de phase Z est égal à l'unité. En revanche, les solutions évanescences correspondent aux courbes contenues à l'intérieur des cercles.

A $\phi_y = 0$, la représentation spatiale $\Omega(Z)$ indique que les trois premiers modes sont dégénérés au point A ($Z = 1, \Omega = 0$) (Fig. 2.6). Au fur et à mesure que la fréquence Ω croît, les modes 1 et 2 se propagent suivant les deux branches acoustiques jusqu'aux points

B ($Z = 1, \Omega = 1$) et C ($Z = 1, \Omega \approx 1.42$) respectivement où les fréquences sont maximum. Au delà de ces valeurs, ils deviennent tous les deux évanescents.

En partant du point A , le mode 4 est immédiatement évanescent aux basses fréquences, passe par le point A' ($Z = 0.55, \Omega \approx 0.47$) où le facteur d'atténuation Z présente un minimum, puis rejoint le cercle unité au point I ($Z = 1, \Omega \approx 1$) pour emprunter la branche de dispersion optique jusqu'au point J ($Z = -1, \Omega \approx 2.45$) où il redevient évanescent. Le mode 5, évanescent entre les points H ($Z = 0.27, \Omega = 0$) et I , adopte pratiquement le même comportement que le mode 4. Pour des fréquences plus élevées à Ω_L et Ω_J , les deux solutions suivent l'axe négatif des Z réels et restent évanescentes quand le module $|Z| \rightarrow 0$ (imaginaire) et la fréquence $\Omega \rightarrow \infty$.

Pour les modes 3 et 6, le comportement fonctionnel est quelque peu plus compliqué. Ceci est essentiellement dû au phénomène de non croisement des modes propageants acoustique 3 et optique 6, de même symétrie, qui contraint les phonons à emprunter des chemins évanescents pour sauter d'une branche à l'autre dans la zone d'interaction, entourée d'un cercle sur les courbes de dispersion $\Omega(\phi_x)$ [24]. La solution débutant au point A correspond au mode propageant acoustique jusqu'en E ($Z = -0.28, \Omega = 1.78$) où la fréquence est maximum sur cette branche. Il rejoint ensuite le minimum de la branche optique ($Z = 0.28, \Omega = 1.95$) en empruntant un chemin évanescent avec $|Z| \neq 1$. De F à G , il continue de se propager pour redevenir une fois de plus évanescent avec Z réel négatif. En commençant sa progression à partir du point K ($Z = -0.06, \Omega = 0$) avec une valeur réelle négative de Z , la seconde solution reste évanescente pour des fréquences $\Omega < 1.95$. Pour des fréquences croissantes, elle suit l'axe des Z négatif en atteignant le point L' de la branche propageante optique, continue à suivre celle-ci jusqu'en E' ($Z = -1, \Omega = 1.74$) où Ω prend sa valeur maximale sur cette branche. Elle emprunte ensuite le chemin évanescent $E'F'$ et redevient propageante entre F' et M et s'évanouit quand Z prend des valeurs réelles positives. Pour des fréquences plus importantes, les deux solutions restent évanescentes avec $|Z| \rightarrow 0$ quand $\Omega \rightarrow \infty$.

Les figures 2.7 et 2.8 montrent les résultats des courbes de dispersion 3D des six modes de vibration caractérisant le double plan pour différents angles d'incidence ϕ_y . Qualitativement, les modes présentent pratiquement le même comportement fonctionnel que dans le cas $\phi_y = 0$. Toutefois, les polarisations des modes changent pour des valeurs de $\phi_y > \pi/2$. En effet, le phénomène d'anti-croisement affecte maintenant les modes 2 et 4 au lieu de 3 et 6 (Fig. 2.8a) dans le cas d'une incidence $\phi_y = 3\pi/4$. De plus, le cercle de rayon unité est parcouru dans le sens inverse dans le cas de tout ou partie de certains modes.

Ceci veut dire que l'onde se propage dans le sens opposé à celui choisi initialement. Rappelons que dans le paragraphe 2. 2. 4. 2, nous avons déjà expliqué que le sens de propagation s'inverse quand la vitesse de groupe devient négative (courbes de dispersion, Fig. 2.2). A ce niveau, les résultats obtenus ici confirment bien cette interprétation.

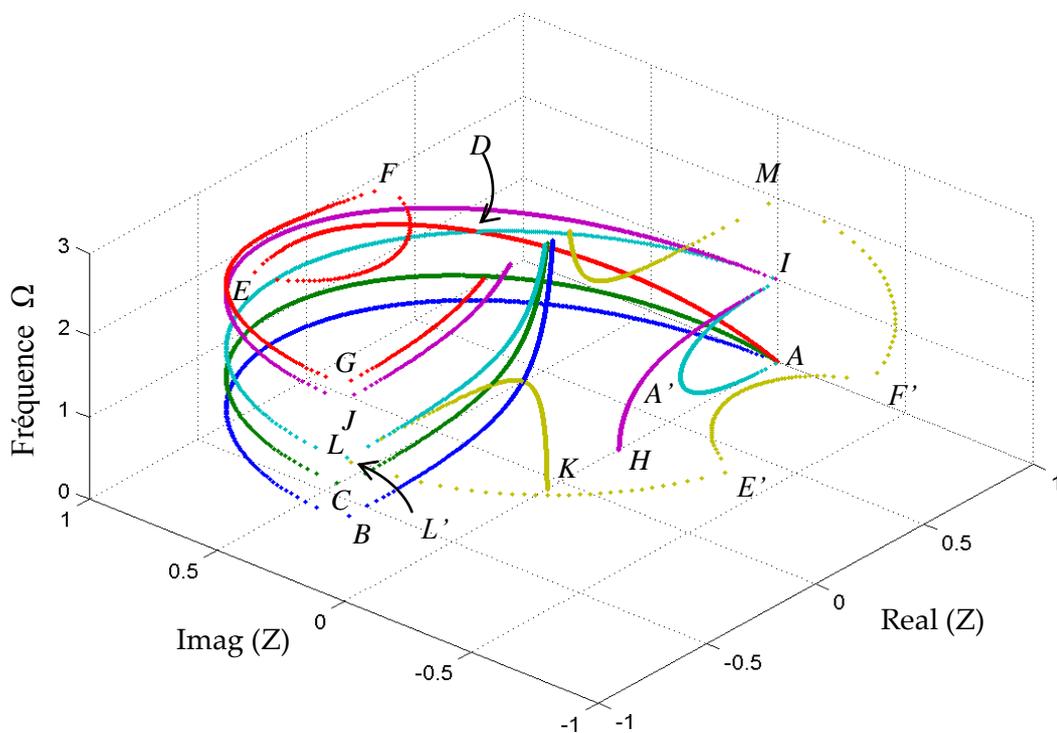
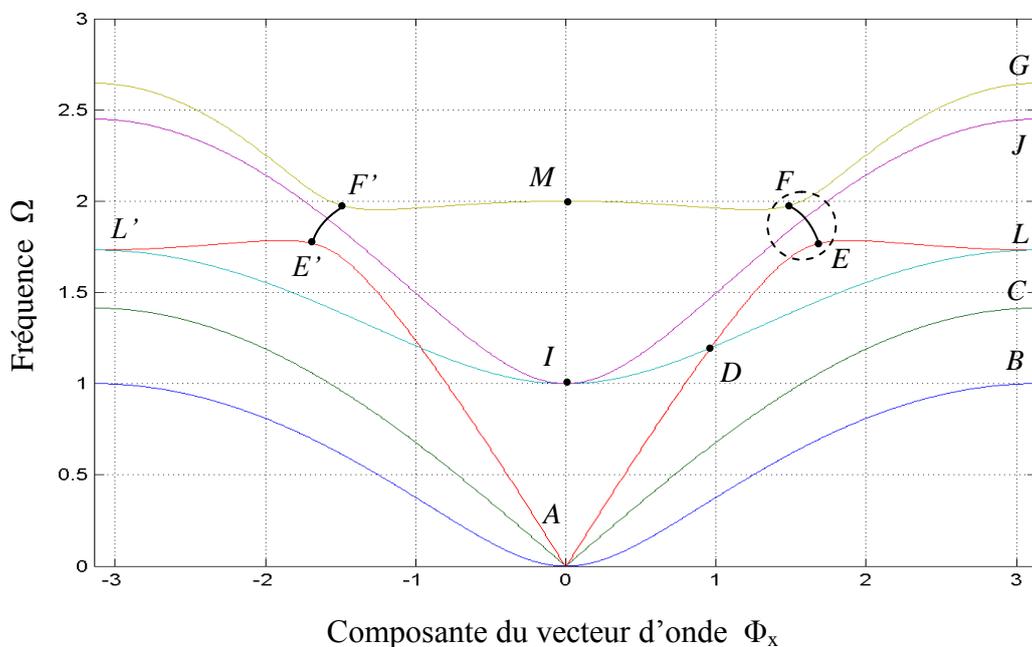


Fig. 2.6 : Comportements fonctionnels des modes de vibration du double plan pour un angle d'incidence $\phi_y = 0$. Pour comparaison, les courbes de dispersion correspondant aux modes propagants sont montrées en haut de la figure.

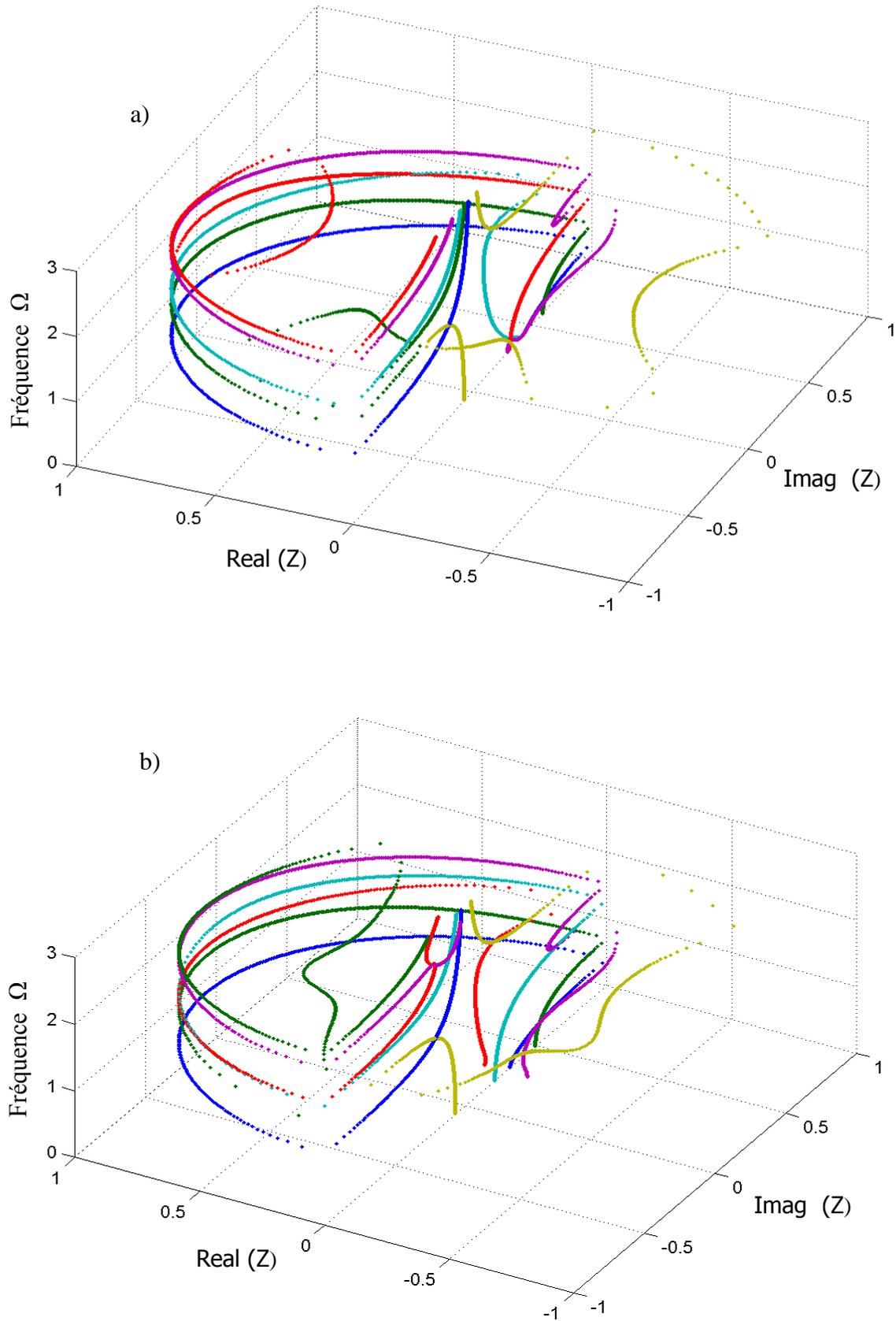


Fig. 2.7 : Comportements fonctionnels des modes propageants et évanescents du double plan pour des angles d'incidence a) $\phi_y = \pi/4$ et b) $\phi_y = \pi/3$.

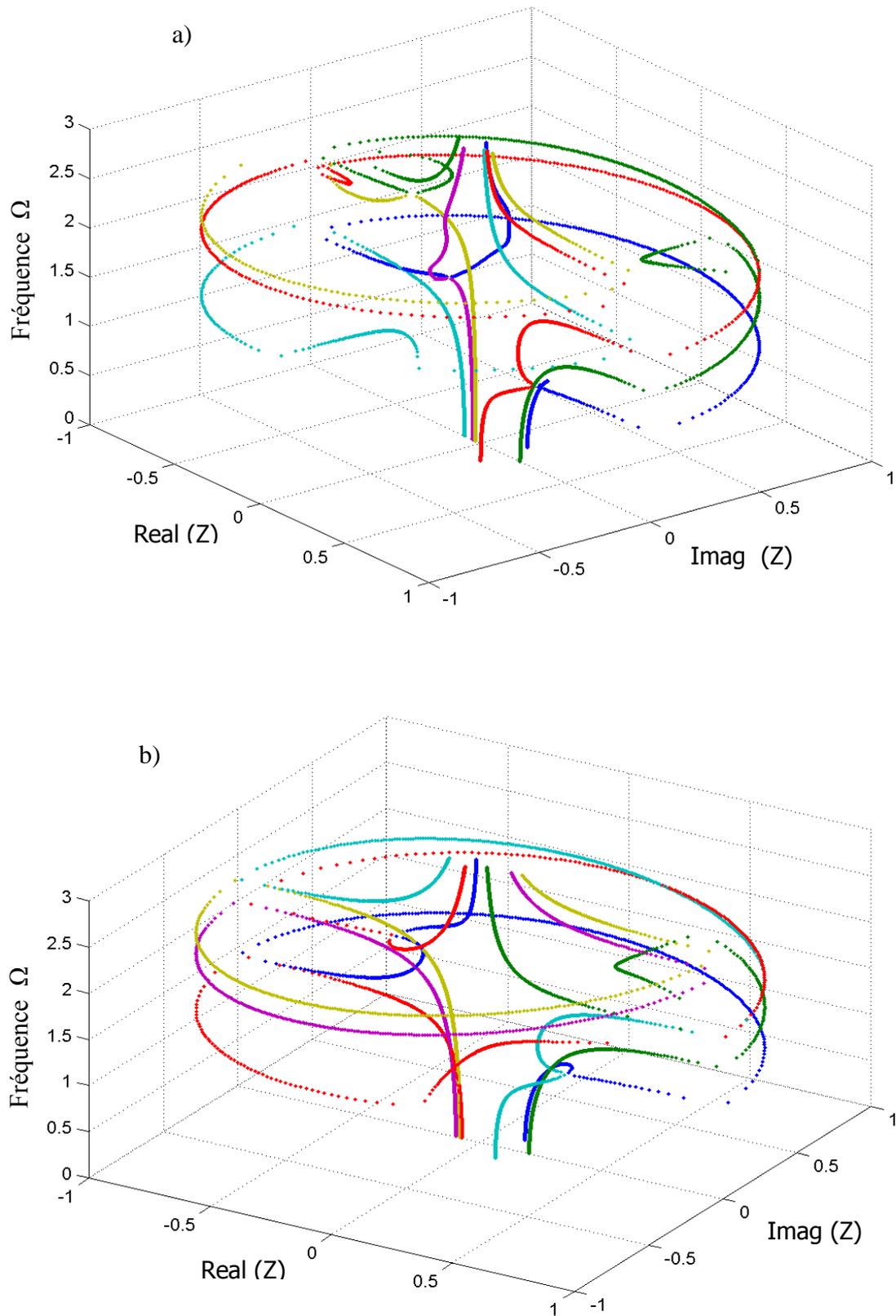


Fig. 2.8 : Comportements fonctionnels des modes propagants et évanescents du double plan pour a) $\phi_y = 3\pi/4$ et b) $\phi_y = \pi$.

2.4 - Vitesses de groupe des modes propageants

Lorsque le module du vecteur d'onde \vec{q} est de l'ordre de $1/a$, a étant le paramètre de réseau, la structure discontinue du plan intervient et $\Omega(\vec{q})$ croît moins vite avec \vec{q} . Le milieu est alors dispersif et un paquet d'onde se déplace à la vitesse de groupe $V_g \neq \Omega(\vec{q})/q$. Le rapport $\Omega(\vec{q})/q$ représente la vitesse de phase. Rappelons que cette dernière est toujours constante et indépendante de \vec{q} . En revanche, la vitesse de groupe d'un paquet d'onde est, par définition, la vitesse à laquelle est transportée l'énergie ou l'information dans le milieu. Elle est reliée à la variation du nombre d'onde q réel en fonction de la fréquence :

$$V_g = \frac{\partial \Omega}{\partial q} \quad \text{soit} \quad \vec{V}_g = \overrightarrow{\text{grad}}_q \Omega(\vec{q}). \quad (2.14)$$

Dans le cas où q est différent d'un réel, nous imposons une vitesse nulle.

Pour déterminer cette vitesse, deux méthodes peuvent être utilisées ; toutes deux exigent, d'ailleurs, la résolution du problème du guide d'onde parfait dans le sens :

$$D(\vec{q}) \cdot \vec{u}(\vec{q}) = -\Omega^2(\vec{q}) \cdot \vec{u}(\vec{q}). \quad (2.15)$$

A \vec{q} fixé, nous trouvons six valeurs propres de la fréquence $\Omega_\nu(\vec{q})$ avec les vecteurs propres correspondants $\vec{u}_\nu(\vec{q})$. Nous rappelons l'essentiel des deux méthodes mais, dans nos calculs, nous opterons plutôt pour la deuxième qui est plus élégante et probablement plus précise que la première parce qu'elle comporte une étape analytique en plus. Elle requiert néanmoins quelques calculs supplémentaires.

2.4.1 - Méthode des différences finies

La première méthode profite du fichier contenant les relations de dispersion calculées pour plusieurs valeurs de \vec{q} comprises entre 0 et π . Ce fichier est indispensable, puisqu'il permet de relier les couples $(\Omega(\vec{q}), Z)$ à la bonne courbe de dispersion. A partir de là, la vitesse de groupe peut se calculer de manière classique comme la pente de la tangente à cette courbe de dispersion :

$$V_g = \frac{\Omega_{i+1} - \Omega_i}{q_{i+1} - q_i} = \frac{\Delta \Omega}{\Delta q}. \quad (2.16)$$

Le résultat obtenu semble tout à fait correct mais s'avère souvent être moins précis que celui donné par une résolution basée sur une interprétation physique de la vitesse de groupe.

2. 4. 2 - Méthode perturbative

Cette approche, dite perturbative [24], consiste à utiliser la similitude formelle existant entre l'équation $D(\vec{q}) \vec{u}(\vec{q}) = -\Omega^2(\vec{q}) \vec{u}(\vec{q})$ et l'équation de Schrödinger stationnaire $H\Psi = E\Psi$ portant sur les perturbations indépendantes du temps en Mécanique Quantique.

Supposons connus tous les éléments de l'équation :

$$D(\vec{q}_0) \vec{u}(\vec{q}_0) = -\Omega^2(\vec{q}_0) \vec{u}(\vec{q}_0). \quad (2.17)$$

Le rôle de la perturbation est joué par un accroissement infinitésimal $\Delta\vec{q}$ tel que $\vec{q} = \vec{q}_0 + \Delta\vec{q}$. En nous limitant au premier ordre, nous pouvons considérer que le vecteur propre $\vec{u}(\vec{q}) = \vec{u}(\vec{q}_0)$ est constant. Par contre, $D(\vec{q}) = D(\vec{q}_0) + \Delta\vec{q} \frac{\partial D}{\partial q}$ et,

$$\Omega^2(\vec{q}) = \Omega^2(\vec{q}_0) + \Delta\vec{q} \frac{\partial \Omega^2}{\partial q}. \quad (2.18)$$

En tenant compte de ces approximations, la dérivée de l'équation $D(\vec{q})\vec{u} = -\Omega^2(\vec{q})\vec{u}$ permet de trouver la relation entre la dérivée de la matrice dynamique D et celle de la fréquence Ω . Elle s'exprime par $\frac{\partial D}{\partial q} \vec{u} = -\frac{\partial \Omega^2}{\partial q} \vec{u}$. Cette dernière relation peut s'écrire également sous la forme : $\vec{u}^t \frac{\partial D}{\partial q} \vec{u} = -\frac{\partial \Omega^2}{\partial q} \vec{u}^t \vec{u}$ où \vec{u}^t représente la transposée du vecteur \vec{u} . D'où,

$$\frac{\partial \Omega}{\partial q} = -\frac{1}{2\Omega} \vec{u}^t \frac{\partial D}{\partial q} \vec{u}. \quad (2.19)$$

La dérivée analytique $\partial D/\partial q$ se calcule à partir de l'équation (2.8) :

$$\frac{\partial D}{\partial q} = \begin{bmatrix} F_1 & F_{v1} & 0 & F_{v2} & 0 & F_{v3} \\ F_{v1} & F_2 & 0 & 0 & F_{v4} & F_{v5} \\ 0 & 0 & F_3 & F_{v3} & F_{v5} & F_{v6} \\ F_{v2} & 0 & -F_{v3} & F_1 & F_{v1} & 0 \\ 0 & F_{v4} & -F_{v5} & F_{v1} & F_2 & 0 \\ -F_{v3} & -F_{v5} & F_{v6} & 0 & 0 & F_3 \end{bmatrix},$$

où

$$\begin{aligned} F_1 &= i \left[1 + r_2 \cos(\phi_y) \right] \left(Z - \frac{1}{Z} \right); & F_2 &= i r_2 \cos(\phi_y) \left(Z - \frac{1}{Z} \right); \\ F_3 &= F_{v4} = F_{v5} = 0; \\ F_{v1} &= -r_2 \sin(\phi_y) \left(Z + \frac{1}{Z} \right); & F_{v2} &= i \frac{r_2}{2} \left(Z - \frac{1}{Z} \right); \\ F_{v3} &= i \frac{r_2}{2} \left(Z + \frac{1}{Z} \right); & F_{v6} &= i \frac{r_2}{2} \left(Z - \frac{1}{Z} \right). \end{aligned} \quad (2.20)$$

Finalement,

$$Vg = -\frac{1}{2\Omega} \bar{u}^t \frac{\partial D}{\partial q} \bar{u}. \quad (2.21)$$

2.4.3 - Courbes des vitesses de groupe

L'évolution des vitesses de groupe Vg_v en fonction de la fréquence normalisée sans dimension Ω ($= [m\omega^2/k_1]^{1/2}$), pour différentes valeurs de l'angle d'incidence ϕ_y , est représentée sur la figure 2.9 pour les six modes de vibration du double plan. Globalement, les courbes des vitesses présentent la même allure pour l'ensemble des modes. Conformément aux courbes de dispersion (Fig. 2.2), la vitesse de groupe pour les modes acoustiques présente un maximum à fréquence nulle, au milieu de la zone de Brillouin (le vecteur d'onde \vec{q} est nul), c'est-à-dire là où la pente de la courbe de dispersion est maximum. Elle s'annule à la limite de zone quand la courbe de dispersion devient parallèle à l'axe ϕ_x . Comme mentionné précédemment, les branches de dispersion de pente nulle ou négative signifient que, dans certains cas, des ondes propageant deviennent stationnaires ou inversent leur sens de propagation quand leur vecteur d'onde est modifié. Rappelons, d'autre part, que la vitesse de groupe V_g n'a de sens que pour les intervalles de fréquences propageantes, c'est-à-dire quand le module du facteur de phase Z est égal à l'unité.

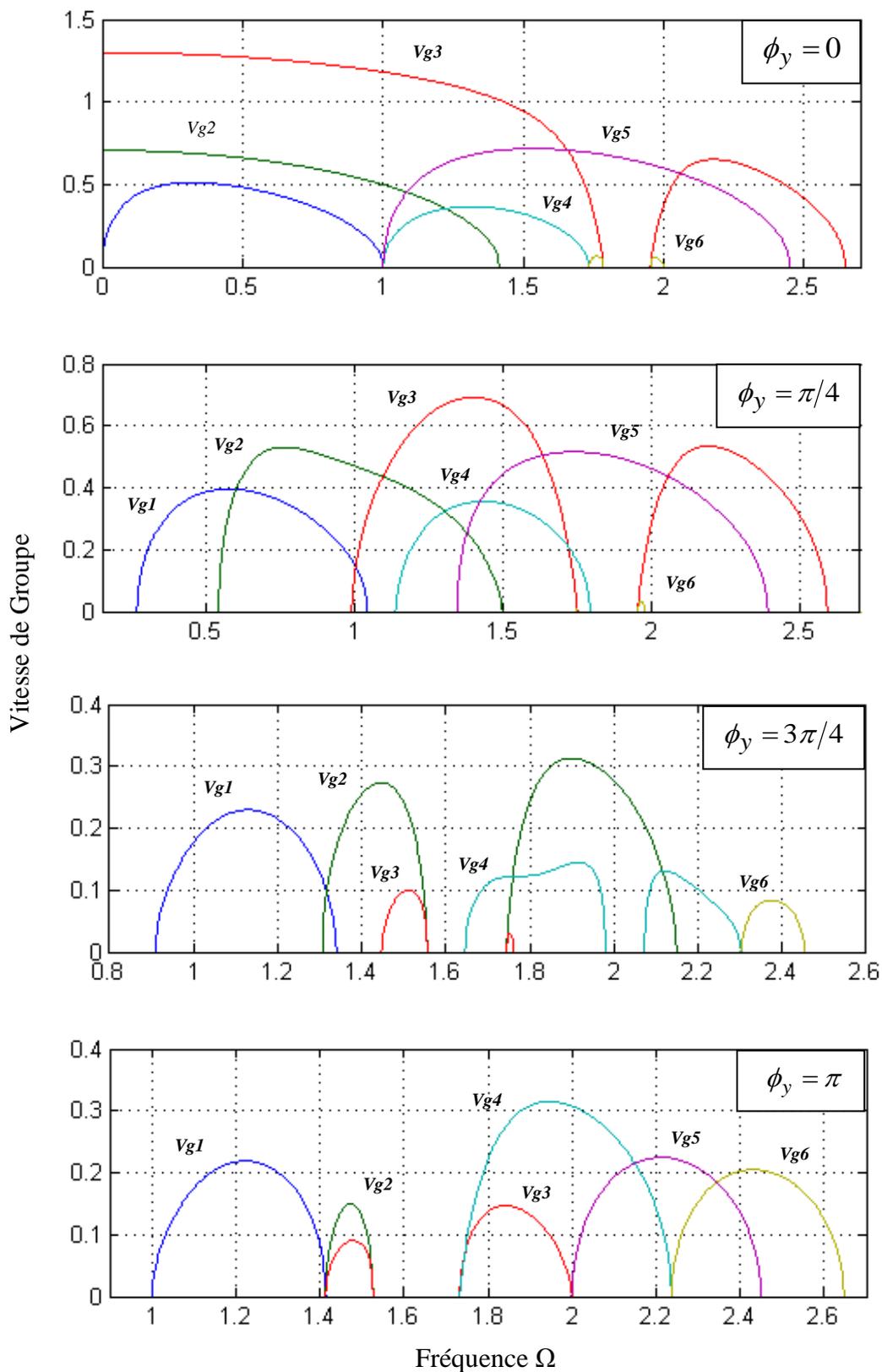


Fig. 2.9 : Courbe des vitesses de groupe des différents modes de vibration en fonction de la fréquence normalisée Ω ainsi que leur évolution en fonction de l'angle d'incidence Φ_y .

Nous pouvons relever les points caractéristiques suivants :

a) Lorsque ϕ_x s'approche des limites de la première zone de Brillouin ($\phi_x \rightarrow \pm\pi$), la vitesse de groupe tend vers zéro ($V_g \rightarrow 0$). Comme dans un guide d'onde électromagnétique, la vitesse de propagation s'annule dans le cas d'une onde stationnaire lorsqu'on atteint la fréquence de coupure.

b) Pour nombre de valeurs de ϕ_y , les courbes de dispersion de certains modes de vibration deviennent négatives en certains endroits alors même que ϕ_x est positif. Conséquemment, le sens de propagation du mode s'inverse. La vitesse de groupe devient négative. Pour maintenir le sens de propagation souhaité, il faut prendre dans ce cas la valeur propre donnée par la condition $\text{Im}(Z_v) < 0$ (courbes de dispersion 3D, Fig. 2.6).

c) Les courbes des vitesses se recouvrent sur un intervalle de fréquence qui diminue avec ϕ_y comme pour les courbes de dispersion de la figure 2. 2. Dans cette zone de recouvrement, les modes peuvent être excités simultanément. Nous reviendrons sur ce point dans le chapitre 3 lors du traitement de la diffusion par les défauts.

d) Pour certaines valeurs caractéristiques de l'angle d'incidence ϕ_y , un mode de vibration peut devenir complètement évanescent ; la vitesse de groupe qui en résulte est nulle. C'est le cas du mode 5 à $\phi_y = 3\pi/4$. Ce phénomène n'apparaît pas sur les courbes de dispersion $\Omega(\phi_x)$ à cause du non croisement des modes de même symétrie, comme le sont dans ce cas les modes 2 et 4.

2.5 - Conclusion

Les propriétés dynamiques du double plan atomique infini, assimilé à un guide d'onde cristallographique parfait, sont décrites par les équations de la mécanique Newtonienne dans le cadre de l'approximation harmonique. Le système, modélisé par un assemblage de masses ponctuelles reliées par des ressorts, contient suffisamment de paramètres pour décrire un système réel. Cependant, ce travail ne cherche pas à obtenir une adéquation parfaite avec des grandeurs expérimentales qui ne sont d'ailleurs pas disponibles pour l'instant.

En premier lieu, les courbes de dispersion des modes vibrationnels propageants sont obtenues. La caractérisation de ces derniers par des facteurs d'atténuation a contribué à l'étude de leur comportement fonctionnel en représentation spatiale et a permis de déterminer les modes évanescents associés. Bien qu'ils ne contribuent aucunement au

transport d'énergie, ces derniers sont néanmoins nécessaires pour une description plus complète de la diffusion en présence de défaut. En faisant varier l'angle d'incidence, nous avons délimité les bandes passantes de chacun des modes de vibration. Nous avons montré, par ailleurs, que la bande passante du système est le résultat de la superposition des bandes individuelles propre à chacun des modes. Enfin, les vitesses de groupe nécessaires pour la normalisation du champ de phonons ont également été calculées. Ainsi, l'évanescence du champ vibrationnel du guide d'onde parfait est rigoureusement déterminée. L'ensemble de ces résultats sera appliqué dans les chapitres qui suivent pour traiter la diffusion de phonons dans un guide d'onde comportant des défauts réticulaires variés.

Chapitre 3

Diffusion de Phonons par les Défauts de Volume

3.1 - Introduction

Lorsque la température d'un cristal s'élève, les atomes le constituant, en particulier ceux de la surface, quittent leur position d'équilibre ; ce qui génère des excitations thermiques. Les modes caractéristiques de vibration des atomes, appelés *phonons*, dépendent de la structure du cristal et leur amplitude de la température. Les atomes de surface vibrent avec des modes spécifiques : les phonons de surface. Pour une température donnée, les amplitudes sont plus grandes en surface qu'en volume à cause des liaisons coupées. Au cours de leur vibration, les atomes migrent parfois sur un autre site d'équilibre, créant des défauts de structure. Les principaux défauts (Fig. 3.1) sont les atomes manquants (adlacunes), les atomes de substitution ou interstitiels (impuretés) et les atomes adsorbés en surface (adatomes). Ces derniers peuvent se grouper pour former des marches dont les bords présentent parfois des décrochements ou des crans. De leur présence dépendent beaucoup de propriétés des surfaces, c'est pourquoi l'on accorde de l'importance à leur étude [15,27]. L'état morphologique de la surface influence le comportement en frottement, les propriétés d'adhérence, le phénomène de catalyse, etc. Aussi, le désordre modifie considérablement les propriétés physiques et vibrationnelles de la structure : il crée, d'une part, de nouveaux états

localisés dans son voisinage et il diffuse des phonons dans le volume et à la surface du matériau, d'autre part.

Dans ce chapitre, nous étudions l'influence des défauts de structure nanoscopiques sur les propriétés de diffusion d'ondes élastiques dans le cadre de l'approximation harmonique. Notre approche se base essentiellement sur les travaux de Landauer [18] qui a proposé une méthode particulièrement intéressante pour traiter les phénomènes de transport dans les systèmes mésoscopiques désordonnés. Elle consiste à représenter l'échantillon étudié par une série de diffuseurs, ou défauts, incorporés dans un guide d'onde parfait. Ce point de vue a acquis ces dernières années une certaine importance pratique en raison des progrès de la nanotechnologie. En effet, il permet de mieux comprendre ce qui se passe dans des composés de très faibles dimensions tels que les fils quantiques. Il se prête tout naturellement à un traitement numérique.

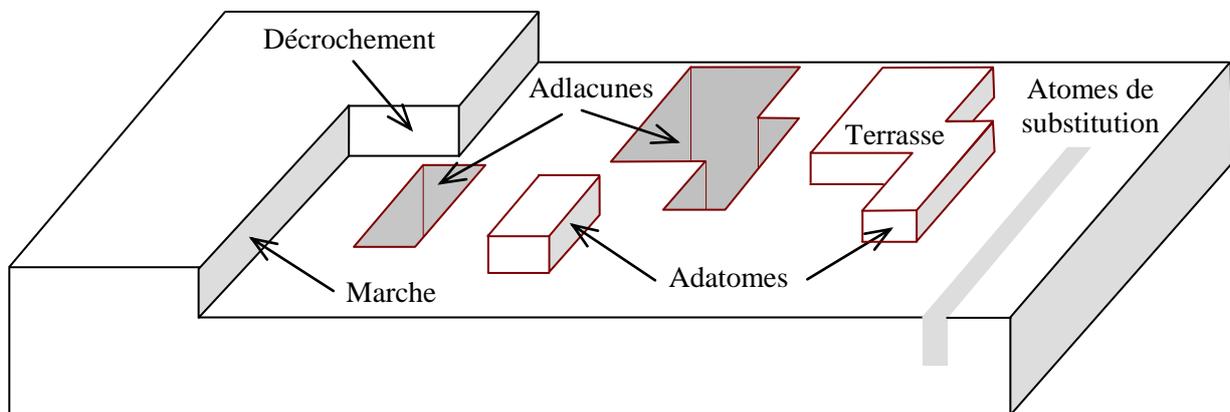


Fig. 3.1 : Principaux défauts de structure dans les cristaux

De nombreux résultats intéressants sont obtenus [2,23-26] ; certains ont même pu être vérifiés expérimentalement [4,12,13]. Dans ce sens, plusieurs auteurs [14-17,19, 20-25] ont examiné les effets de l'interaction entre les états électroniques de diffusion et les états liés induits par les défauts. Leurs observations se caractérisent par l'apparition de résonances de Fano et d'oscillations de Fabry-Pérot dans les spectres de transmission et de conductances. Par ailleurs, pour des énergies proches de la résonance, Berthold et ses collaborateurs [17] ont mis en évidence la formation de tourbillons de courant au voisinage d'une impureté dans une double chaîne quantique.

Dans toutes ces études, les modèles utilisés sont toujours traités relativement à une direction cristallographique choisie telle que le système mésoscopique désordonné est considéré comme quasi unidimensionnel.

3.2 - Description du modèle

La figure 3.2 illustre la situation à laquelle nous nous intéressons. C'est une vue en coupe du double plan de la figure 2.1, assimilé à un guide d'onde quasi-tridimensionnel perturbé par des défauts de structure surfaciques (adatoms) ou volumiques. Cette dernière catégorie comporte trois différents types de défauts dits de substitution, interstitiel et lacunaire (voir Fig. 3.1). Le premier consiste à remplacer certains atomes du réseau par des atomes étrangers (impuretés), le second à disposer ces atomes aux centres des faces de la maille de la structure ou en son centre et le dernier à laisser vacants certains sites du réseau. Dans tous les cas, chaque atome ou impureté contenue dans la région perturbée est reliée au réseau par des constantes de force additionnelles symbolisées par des ressorts harmoniques ayant des constantes de raideur différentes de celles du réseau. De même, la masse m' de l'impureté est généralement considérée comme différente de la masse m des atomes du double plan. Dans ce travail, seules les interactions de premiers et seconds voisins seront prises en compte comme mentionné au paragraphe 2 du chapitre 1.

Les rangées d'atomes défaut de la région perturbée M , qui s'étend de la colonne 0 à la colonne N , sont toujours disposées suivant la direction y (Fig. 3.2), perpendiculairement à la direction de propagation x . A gauche et à droite de la région M , s'étendent deux guides d'onde parfaits semi infinis non perturbés G (gauche) et D (droit). Les quatre colonnes d'atomes, (-1) , (-2) d'une part et $(N+1)$, $(N+2)$ d'autre part, représentent les régions intermédiaires entre la zone du défaut M et les deux guides d'onde parfaits G et D . Ces colonnes frontalières serviront plus tard à raccorder les déplacements des atomes de la région perturbée du défaut à ceux des deux régions parfaites.

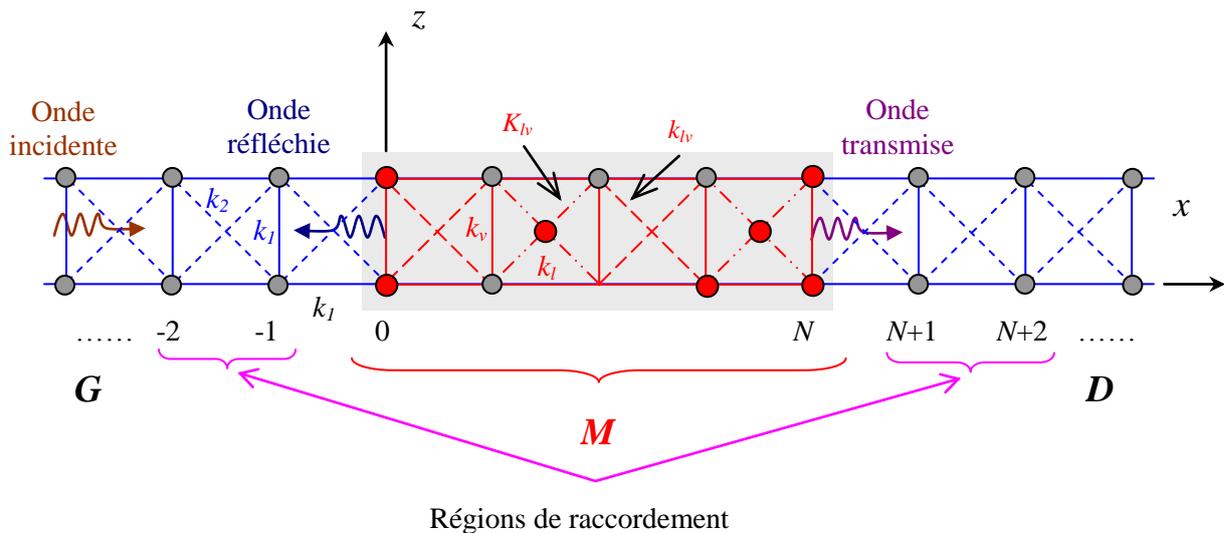


Fig. 3.2: Représentation schématique à 2D d'un guide d'onde quasi-3D formé de deux plans atomiques infinis perturbés par un défaut de volume. La région grisée M représente le défaut, G et D deux guides d'ondes parfaits semi infinis.

En plus des constantes de forces k_1 et k_2 du guide d'onde parfait, les nouvelles constantes introduites par la présence des différents défauts sont indiquées sur la figure 3. 2.

3. 3 - Mise en forme du problème

Dans cette partie, nous présentons les bases du formalisme mathématique utilisé pour traiter la diffusion d'ondes vibratoires par un cristal comportant des défauts. Ce modèle peut aussi bien s'appliquer à des défauts volumiques que surfaciques. En premier lieu, nous étudions le cas du défaut isolé ; nous l'étendrons, par la suite, à d'autres types de défauts plus complexes.

Comme les guides d'onde parfaits ne couplent pas différents modes propres de vibration, nous pouvons traiter le problème de diffusion pour chaque mode séparément. Mais nous pourrions généraliser, sans trop de difficultés, à une perturbation incidente qui serait une combinaison quelconque des modes propres du guide d'onde. Pour des raisons de simplicité, nous prendrons toujours comme onde incidente un seul mode propre de vibration.

Pour une onde se propageant de la gauche vers la droite dans le mode propre $\bar{\nu}$, où la barre indique le mode entrant, l'incidence est décrite par le vecteur :

$$\vec{V}_{in}^i = (Z_{\bar{\nu}})^i \cdot \vec{u}_{\bar{\nu}}, \quad i \leq -1, \quad (3.1)$$

où $Z_{\bar{\nu}}$ désigne le facteur de phase générique du mode entrant et $\vec{u}_{\bar{\nu}}$ son vecteur propre. L'exposant i indique l'abscisse du site occupé par l'atome suivant la direction de propagation Ox .

Les ondes diffusées résultantes, issues de la diffusion élastique par le défaut, se composent d'une partie réfléchie et d'une autre transmise ; elles engendrent des déplacements \vec{u}_r et \vec{u}_t dans les deux demi-espaces G et D (voir Fig. 3.2). Les composantes cartésiennes des déplacements peuvent être exprimées simplement comme une combinaison des modes propres du guide d'onde à la même fréquence :

$$\vec{u}_r^i = \sum_{\nu} r_{\nu\bar{\nu}} \left[\frac{1}{Z_{\nu}} \right]^i \cdot \vec{u}_{\nu} \left(\frac{1}{Z_{\nu}} \right), \quad i \leq -1, \quad (3.2a)$$

pour l'onde réfléchie (région G), et

$$\vec{u}_t^i = \sum_{\nu} t_{\nu\bar{\nu}} \cdot [Z_{\nu}]^i \cdot \vec{u}_{\nu}(Z_{\nu}), \quad i \geq N + 1, \quad (3.2b)$$

pour l'onde transmise (région D).

Les quantités $r_{\nu\bar{\nu}}$ et $t_{\nu\bar{\nu}}$ déterminent les coefficients de réflexion et de transmission sur lesquels nous reviendrons plus tard. Avec les définitions (3.2a) et (3.2b) précédentes, nous sommes en mesure d'établir les équations du mouvement du guide d'onde perturbé pour construire la matrice dynamique du défaut.

Comme les régions G et D de la figure 3. 2 appartiennent au réseau parfait, problème déjà étudié au chapitre 2, nous avons encore besoin de résoudre l'équation (2.1) pour les masses de la zone perturbée M et pour celles situées aux frontières sur les colonnes $(-I)$ et $(N+I)$; les déplacements des unes et des autres sont raccordés aux deux guides d'onde parfaits semi infinis par les équations (3.2a) et (3.2b), d'où le nom d'atomes de raccordement. Les équations du mouvement régissant les atomes de raccordement et ceux constituant la zone du défaut sont indépendantes et ne peuvent être, par conséquent, déduites l'une de l'autre comme dans le cas du réseau parfait. C'est pour cette raison que ceux-ci sont appelés atomes irréductibles.

Pour trois degrés de liberté par site, le nombre total d'équations s'élève à $\beta N_z(N+2)$ pour le défaut de substitution et à $\beta(N_z+1)(N+2)$ dans le cas des défauts surfacique ou interstitiel. L'écriture de ces dernières fait intervenir les déplacements des atomes voisins du cluster formé par le défaut proprement dit et les colonnes d'atomes frontalières (-1) et $(N+1)$. Ce qui donne lieu à un système linéaire de $\beta N_z(N+2)$ [respectivement $\beta(N_z+1)(N+2)$] équations avec $\beta N_z(N+4)$ [respectivement $\beta\{(N_z+1)(N+2)+2N_z\}$] inconnues où β désigne le nombre de degrés de liberté par atome, N_z le nombre de plans atomiques composant la structure et N se rapporte au nombre de colonnes défaut. Ces inconnues représentent précisément les $\beta N_z(N+2)$ [respectivement $\beta(N_z+1)(N+2)$] composantes déplacements $u_\alpha(l,m,n)$ des atomes irréductibles de la région M ainsi que les $2\beta N_z$ coefficients de réflexion $r_{\nu\bar{\nu}}$ et de transmission $t_{\nu\bar{\nu}}$.

Pour résoudre ce système d'équations linéaires, il faut impérativement le réduire à un système avec autant d'équations que d'inconnues par l'intermédiaire de la méthode de raccordement [27,28]. Comme son nom l'indique, cette méthode est utilisée pour raccorder les déplacements des atomes du défaut avec ceux du réseau parfait par l'intermédiaire des équations du mouvement des colonnes d'atomes $(-I)$ et $(N+I)$ situées aux frontières. Ceci peut être réalisé en isolant les termes inhomogènes décrivant l'onde incidente sur celles-ci. Les résultats obtenus sont rassemblés dans une matrice R , dite de raccordement, dont les éléments seront déterminés par les relations (3.2).

Finalement, le système d'équations linéaires inhomogènes [27] se met sous la forme:

$$\left[\tilde{D}(\Omega, r_2, \phi_y, \lambda) \right] [R] \bar{X} = - \left[\tilde{D}(\Omega, r_2, \phi_y, \lambda) \right] \vec{V}_{in}, \quad (3.3)$$

où r désignent toutes les constantes de force de liaison, \tilde{D} la matrice dynamique du défaut et R la matrice de raccordement; \bar{X} est le vecteur regroupant toutes les inconnues du problème, \vec{V}_{in} le vecteur incident. Dans le cas du défaut de substitution, les dimensions des matrices sont $\tilde{D} \left\{ \left[\beta N_z(N+2) \right] \times \left[\beta N_z(N+4) \right] \right\}$ et $R \left\{ \left[\beta N_z(N+4) \right] \times \left[\beta N_z(N+2) \right] \right\}$. Pour davantage de précisions, nous reviendrons sur la signification de chacun des termes de cette équation générale.

3.3.1 - Déplacements

Les solutions de l'équation (3.3) donnent le vecteur \bar{X} dont les composantes représentent tous les déplacements $u_\alpha(l, m, n)$ des atomes de la région du défaut ainsi que les six coefficients de réflexion $r_{v\bar{v}}$ et les six de transmission $t_{v\bar{v}}$. Ces douze coefficients sont nécessaires pour la détermination des déplacements atomiques aux frontières ainsi que dans les régions non perturbées G et D du guide d'onde.

Pour les colonnes d'atomes de la région D , les expressions des vecteurs déplacements en fonction de ces variables, d'après l'équation (3.2b), s'écrivent

$$\vec{u}(N+1) = \vec{u}_t = \sum_v t_{v\bar{v}} \cdot Z_v \cdot \vec{u}_v, \quad (3.4a)$$

$$\vec{u}(N+2) = \sum_v \eta_{v\bar{v}} \cdot Z_v^2 \cdot \vec{u}_v, \quad (3.4b)$$

et pour ceux de la région G ,

$$\vec{u}(-1) = \vec{u}_r + \vec{V}_{in} = \sum_v r_{v\bar{v}} \cdot Z_v \cdot \vec{u}_v + \frac{1}{Z_{\bar{v}}} \vec{u}_{\bar{v}}, \quad (3.5a)$$

$$\vec{u}(-2) = \sum_v r_{v\bar{v}} \cdot Z_v^2 \cdot \vec{u}_v + \frac{1}{Z_{\bar{v}}^2} \vec{u}_{\bar{v}}, \quad (3.5b)$$

où les deuxièmes termes des seconds membres des égalités (3.5a et 3.5b) se rapportent à l'onde incidente et les premiers à la partie réfléchie.

3.3.2 - Coefficients de transmission et de réflexion

Le comportement de diffusion est habituellement décrit en termes d'une matrice dite de diffusion. Ses éléments sont donnés par les amplitudes relatives de transmission $\tau_{\nu\bar{\nu}}$ et de réflexion $\rho_{\nu\bar{\nu}}$ des ondes diffusées dans le mode ν quand le mode incident est $\bar{\nu}$. Par suite, nous nous concentrerons sur les probabilités de transmission et de réflexion. Elles sont données par les racines carrées des valeurs absolues des éléments de la matrice de diffusion [17]. Pour normaliser ces coefficients, les ondes diffusées doivent être multipliées par le rapport des vitesses de groupe. Explicitement, pour des ondes incidentes dans le mode $\bar{\nu}$ avec une vitesse de groupe $V_{g\bar{\nu}}$, ces probabilités s'expriment [20,24,25] comme suit:

$$t_{\nu\bar{\nu}} = |\tau_{\nu\bar{\nu}}|^2 = \frac{V_{g\nu}}{V_{g\bar{\nu}}} |\eta_{\nu\bar{\nu}}|^2 \quad \text{pour la transmission,} \quad (3.6)$$

$$r_{\nu\bar{\nu}} = |\rho_{\nu\bar{\nu}}|^2 = \frac{V_{g\nu}}{V_{g\bar{\nu}}} |\xi_{\nu\bar{\nu}}|^2 \quad \text{pour la réflexion,} \quad (3.7)$$

où $V_{g\nu}$ représente la vitesse de groupe du mode sortant ν . Rappelons que la vitesse de groupe, déterminée au chapitre 2, n'a de sens que pour les modes propageants.

Par analogie au courant électrique, la conductance ou transmittance peut être définie simplement comme la capacité plus ou moins grande d'un milieu de laisser passer une onde ; elle peut être assimilée à l'inverse d'une résistance. La transmission totale des systèmes mésoscopiques désordonnés (ou conductance), importante pour la détermination expérimentale de quantités physiques mesurables, est caractérisée en sommant les probabilités de transmission sur tous les modes propageants à la même fréquence,

$$\Lambda(\omega) = \sum_{\nu} \sum_{\bar{\nu}} t_{\nu\bar{\nu}}, \quad (3.8)$$

où la somme se rapporte à tous les modes propageants à la fréquence ω .

Par analogie à la description de Landauer du transport électronique, l'énergie du courant dans un faisceau mésoscopique suspendu reliant deux réservoirs thermiques maintenus à des températures légèrement différentes T_1 et T_2 est donnée par l'expression [17,24,27]:

$$I_E = \frac{k_B^2 T}{h} \int_0^\infty x^2 \Lambda \left(\frac{k_B T x}{\hbar} \right) \frac{e^x}{(e^x - 1)^2} (T_1 - T_2) dx, \quad (3.9)$$

où $T_1 \leq T \leq T_2$, k_B est la constante de Boltzman, \hbar représente la constante de Planck et $\hbar = \frac{h}{2\pi}$. La division par $(T_1 - T_2)$ conduit à la conductivité thermique K_μ du faisceau. Par ailleurs, la diffusion réduit considérablement la conductivité [79-81], surtout à basses fréquences où elle tombe au dessous de la valeur universelle, $K_\mu = \frac{1}{3} \frac{\pi^2 k_B^2 T}{h}$ à basses températures.

3. 3. 3 - Matrice dynamique du défaut

Il faudrait maintenant écrire les équations du mouvement pour les atomes irréductibles du défaut ainsi que pour les atomes des colonnes frontalières $(N+1,0,0)$, $(N+1,0,1)$ et $(-1,0,0)$, $(-1,0,1)$ représentant la zone de raccordement de part et d'autre de la région perturbée M (Fig. 3.2). Ces atomes constituent l'ensemble des sites du cluster de la structure. En dehors de cette zone, nous retombons en effet sur le problème déjà résolu du guide d'onde parfait. Comme il y a trois degrés de liberté par site pour chaque atome, le système à résoudre sera composé de $(3)(2)(1+2) = 18$ (dix huit) équations avec trente $(3)(2)(1+4) = 30$ (trente) inconnues dans le cas d'un défaut isolé composé uniquement les deux atomes $(0,0,0)$, $(0,0,1)$. Avant de passer à l'écriture laborieuse de ces équations, divisons toutes les constantes de force indiquées sur la figure 3. 2 par k_1 et posons $\Omega^2 = \omega^2 / \omega_0^2$ où ω_0 est une fréquence caractéristique du réseau donnée par $\omega_0^2 = k_1 / m$ et $m' = \alpha m$ où α représente une constante positive ou nulle.

D'après l'équation (2.1) et en tenant compte de la symétrie du problème par rapport à l'axe y , l'ensemble des 18 équations du mouvement avec 30 inconnues se présentent comme un système linéaire homogène qui peut être mis sous forme d'une matrice $[\tilde{D}(r_2, \phi_y, Z, \lambda)]$ de dimension (18×30) . Cette dernière est la matrice dynamique appropriée du défaut figurant dans l'expression (3.3). Conséquemment, la matrice de raccordement $R(30 \times 18)$ aura la forme suivante :

$$R = \begin{pmatrix} \Gamma & 0 & 0 \\ 0 & \Delta_1 & 0 \\ 0 & 0 & \Sigma_1 \\ 0 & \Delta_2 & 0 \\ 0 & 0 & \Sigma_2 \end{pmatrix}. \quad (3.10)$$

La sous matrice diagonale $\Gamma(6 \times 6)$ se rapporte aux déplacements des sites irréductibles du défaut ; les sous matrices de transmission Δ_1, Δ_2 d'une part et de réflexion Σ_1, Σ_2 d'autre part, toutes de dimension (6×6) et composées d'éléments $u_{ij} Z_i$ ($i, j = 1 \text{ à } 6$), représentent les termes inhomogènes décrivant l'onde incidente respectivement sur les atomes $(N+1,0,0)$ $(N+2,0,0)$ et $(-1,0,0), (-2,0,0)$.

La matrice de raccordement doit évidemment avoir une dimension (30×18) de sorte que le résultat du produit matriciel $[\tilde{D}][R]$ engendre une matrice carrée de dimension (18×18) . Le vecteur colonne \vec{X} de l'équation 3.3 regroupera alors 18 composantes dont chacune représente une quantité physique bien déterminée : les six premières sont associées aux déplacements des atomes irréductibles du défaut et les douze restantes indiquent directement les différents coefficients de transmission (six) et de réflexion (six). Le nombre d'inconnues à déterminer est ainsi réduit à 18. Par exemple, si le mode incident est représenté par le mode acoustique 1, le vecteur \vec{X} pour le défaut isolé de substitution s'écrit:

$$\vec{X}_1 = [u_x(0,0,0), u_y(0,0,0), u_z(0,0,0), u_x(0,0,1), u_y(0,0,1), u_z(0,0,1), \\ t_{11}, t_{21}, t_{31}, t_{41}, t_{51}, t_{61}, r_{11}, r_{21}, r_{31}, r_{41}, r_{51}, r_{61}]^T, \quad (3.11a)$$

où l'exposant T indique la transposée du vecteur.

Pour appliquer l'équation (3.3), il ne manque évidemment que le vecteur incident \vec{V}_{in} à exprimer par l'intermédiaire de l'équation (3.1). C'est un vecteur colonne (39×1) dont les composantes s'écrivent comme suit:

$$(\vec{V}_{in})_1 = [0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, \frac{u_{11}}{Z_1}, \frac{u_{12}}{Z_1}, \frac{u_{13}}{Z_1}, \frac{u_{14}}{Z_1}, \frac{u_{15}}{Z_1}, \frac{u_{16}}{Z_1}, \\ 0, 0, 0, 0, 0, 0, \frac{u_{11}}{(Z_1)^2}, \frac{u_{12}}{(Z_1)^2}, \frac{u_{13}}{(Z_1)^2}, \frac{u_{14}}{(Z_1)^2}, \frac{u_{15}}{(Z_1)^2}, \frac{u_{16}}{(Z_1)^2}]^T, \quad (3.11b)$$

si, comme précédemment, le mode incident est représenté par le mode 1.

Les composantes u_{ij} pour $(i, j = 1 \text{ à } 6)$ sont les composantes du vecteur propre du premier mode entrant 1 et Z_1 son facteur de phase.

Maintenant que tous les termes de l'équation (3.3) sont identifiés, la mise en forme du problème est terminée. Remarquons au passage que les défauts ne sont contenus que dans la région M et que la structure de la matrice défaut sera très avantageuse pour les généralisations futures. La résolution du système proprement dite est confiée à des programmes informatiques utilisant le logiciel de calcul MATLAB.

3. 4 - Résultats numériques et discussions

La diffusion des phonons par le défaut est analysée relativement à un phonon incident venant de la gauche de la figure 3. 2, avec une amplitude unité et un déphasage nul sur la colonne d'atomes (-1). Pour appliquer le modèle, le programme de calcul confié au logiciel MATLAB est exécuté pour une valeur $k_2 = 0.5$ de constante de réseau, en considérant que les interactions entre seconds voisins sont plus faibles que celles entre premiers voisins. En outre, pour tenir compte de la modification du champ des déformations dans la région perturbée, nous introduisons un paramètre λ dénotant le rapport entre les constantes de forces modifiées du défaut et celles du réseau parfait [82] pour des atomes situés en des sites séparés par des distances équivalentes. Les différentes liaisons entre impuretés et entre ces dernières et les atomes du réseau seront symbolisées par des ressorts de constantes de raideur de valeurs raisonnables dans le contexte de la matière condensée. Nous présentons, en premier lieu, le cas où la propagation de l'onde se fait parallèlement à l'axe x dans le sens positif, c'est-à-dire avec un angle d'incidence nul.

3. 4. 1 - Défaut de substitution

3. 4. 1. 1 - Défaut de masse

La configuration la plus simple à étudier consiste en un défaut de masse localisé sur les deux sites d'une colonne du réseau (Fig. 3.2). Les résultats numériques obtenus pour les coefficients de réflexion et de transmission en fonction de la fréquence normalisée Ω sont représentés sur la figure 3. 3 pour un mode acoustique et un optique. Les courbes en tirets se rapportent au défaut léger ($m' = 0.5 m$) et celles en trait continu au défaut lourd ($m' = 3 m$) ; la constante de rigidité λ est égale à 1.05. La présence du défaut donne lieu à un décroissement généralisé de l'amplitude de probabilité. Comme attendu, l'influence du défaut est

relativement faible en régime acoustique. Pour $\Omega \rightarrow 0$, nous trouvons que $t_1 \rightarrow 1$ indépendamment de la perturbation. L'onde est quasi totalement transmise à très faible fréquence (Fig. 3.3a) et le coefficient de réflexion augmente ensuite progressivement pour toujours tendre vers l'unité à la limite de zone où le vecteur d'onde devient plus important. En d'autres termes, le défaut n'oppose pratiquement pas de résistance au passage de l'onde dans la gamme des basses fréquences, tout se passe comme si la colonne défaut n'existait pas. Une autre caractéristique intéressante, représentée par un défaut spécifique, se manifeste par de fortes résonances asymétriques (Fig. 3.3a et b). L'origine de ces structures peut être attribuée à la présence d'états résonants induits par le défaut dont la fréquence dépend de la valeur de la masse perturbatrice. Cette dépendance se comprend aisément : les défauts avec $m' > m$ (courbes en continu sur la Fig. 3.3a) donnent naissance à des états localisés dans la plage des fréquences acoustiques alors que les défauts avec $m' < m$ (courbes en tirets de la Fig. 3.3a) engendrent des modes locaux dont les fréquences peuvent parfois être supérieures aux fréquences maximales des modes optiques [24] (Fig. 3.3b). La présence de ces états localisés dans l'intervalle des fréquences propageantes induit des structures additionnelles dans le spectre de transmission ; elles peuvent être identifiées à des résonances de type Fano dont les pics sont indiqués par des flèches sur les figures 3. 3.

La situation est quasi similaire au cas du guide d'onde électronique dans la référence 17. Dans ce dernier cas, il était possible de décrire la position des transmissions nulles analytiquement. Alors que dans la situation présente d'ondes vibratoires induisant des phonons, chaque site possède déjà au moins trois degrés de liberté et la dimension du système d'équations linéaire (3.3) devient beaucoup plus large. Pour le cas le plus simple d'un défaut isolé de substitution, la dimension du système linéaire atteint déjà (18×30) ; elle passe à (27×39) pour le défaut isolé interstitiel ; ceci rend impossible l'obtention d'expressions analytiques compactes des coefficients de diffusion ou des positions de transmission nulles. D'après les arguments précédents, nous concluons que les résonances Fano observées ont lieu aux basses fréquences pour les défauts lourds et qu'elles se déplacent vers la gamme des hautes fréquences dans le cas des défauts légers.

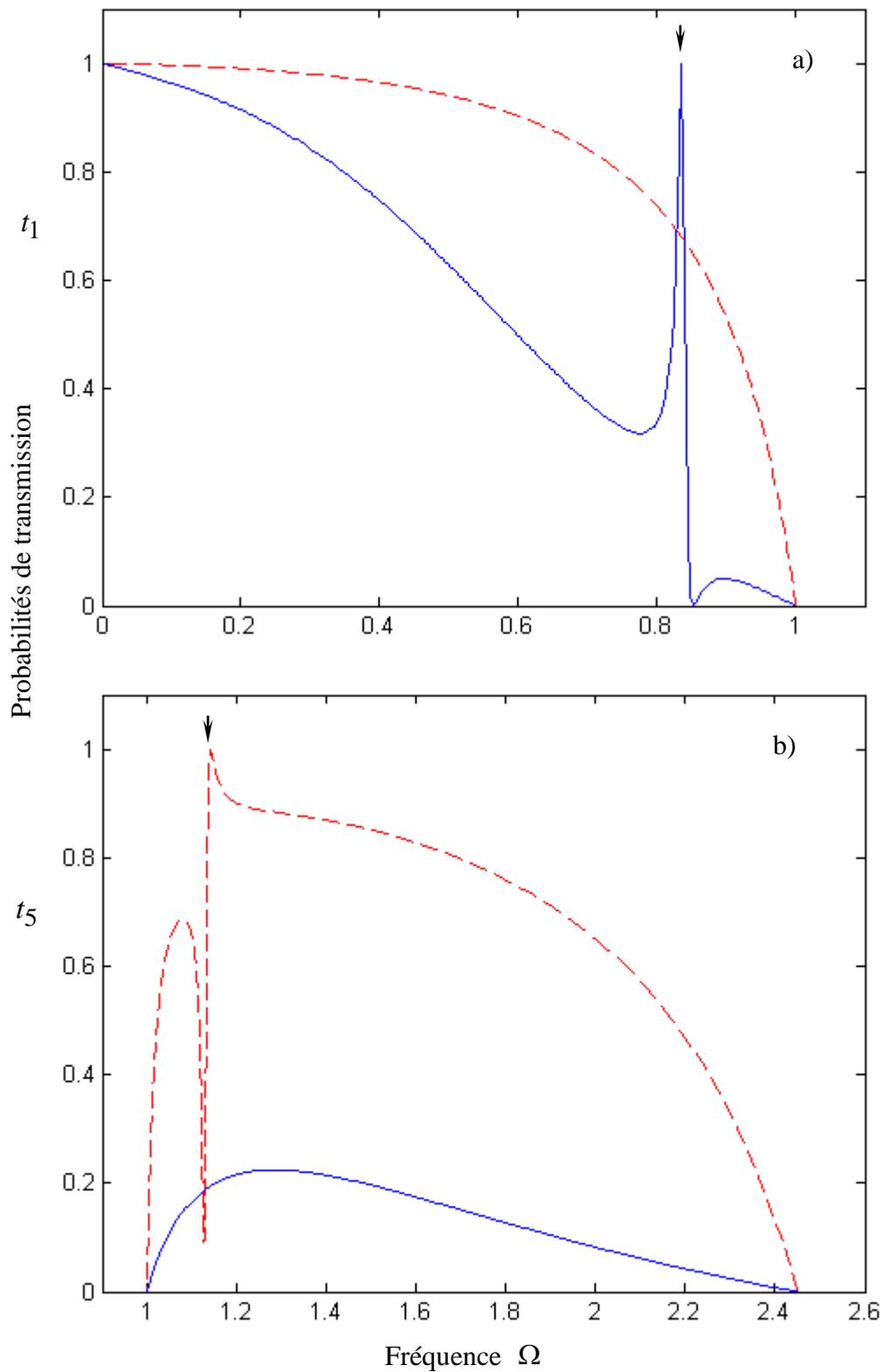


Fig. 3.3 : Probabilités de transmission en fonction de la fréquence dans les modes a) acoustique 1 et b) optique 5 pour deux défaut de masse légère $m' = 0.5 m$ (en tirets) et lourde $m' = 3 m$ (en trait continu). Les flèches indiquent les pics de résonance.

Enfin, fort heureusement, le principe de conservation de l'énergie exprimé par la relation théorique bien connue entre les coefficients de réflexion et de transmission,

$$\sum_{\nu} |r_{\nu\bar{\nu}}| + \sum_{\nu} |t_{\nu\bar{\nu}}| = 1, \quad (3.12)$$

est toujours vérifiée pour chaque fréquence. Cette condition constitue, par ailleurs, un moyen efficace de contrôle des résultats. Nous pouvons vérifier sur la Fig. 3.4 que la somme des coefficients de réflexion et de transmission donne toujours 1. Ceci est une conséquence de la normalisation de ces coefficients par les vitesses de groupe. Tant qu'un seul mode est excité, le problème de normalisation ne se pose pas ; en effet, la somme des coefficients de transmission et de réflexion du mode propageant donne directement 1. La résolution du système linéaire (3.3) fournit certes des coefficients non nuls pour les modes atténués, mais ces modes, de par leur nature, ne peuvent pas transporter une vibration sur une distance importante ; on ramène donc ces derniers coefficients à 0 en raison de cette considération physique. Il faut rappeler toutefois que les modes évanescents sont nécessaires pour une description complète du système et des amplitudes du guide d'onde même s'ils ne contribuent aucunement au transport d'énergie. En revanche, quand deux modes propageants avec des vitesses de groupe différentes sont excités, il faut faire intervenir une autre considération physique : la conservation de la quantité de mouvement. Pour simplifier, supposons qu'une onde vibratoire d'amplitude A arrive sur un défaut dans un mode avec la vitesse $(V_g)_{in}$ et qu'elle soit entièrement transmise dans un autre mode avec la vitesse $(V_g)_{out}$. La quantité de mouvement incidente est proportionnelle au produit $A \cdot (V_g)_{in}$. La conservation de la quantité de mouvement de cette grandeur implique que l'amplitude de sortie B est exprimée par $B = \frac{(V_g)_{in}}{(V_g)_{out}} A$. C'est la raison pour laquelle les coefficients de transmission et de réflexion sont normalisés relativement aux vitesses de groupe.

Par ailleurs, il faut noter que nous avons toujours une transmission totale ou une réflexion totale dans le mode entrant à très faibles fréquences et pour les fréquences maximales atteignables, i. e. aux limites de zone.

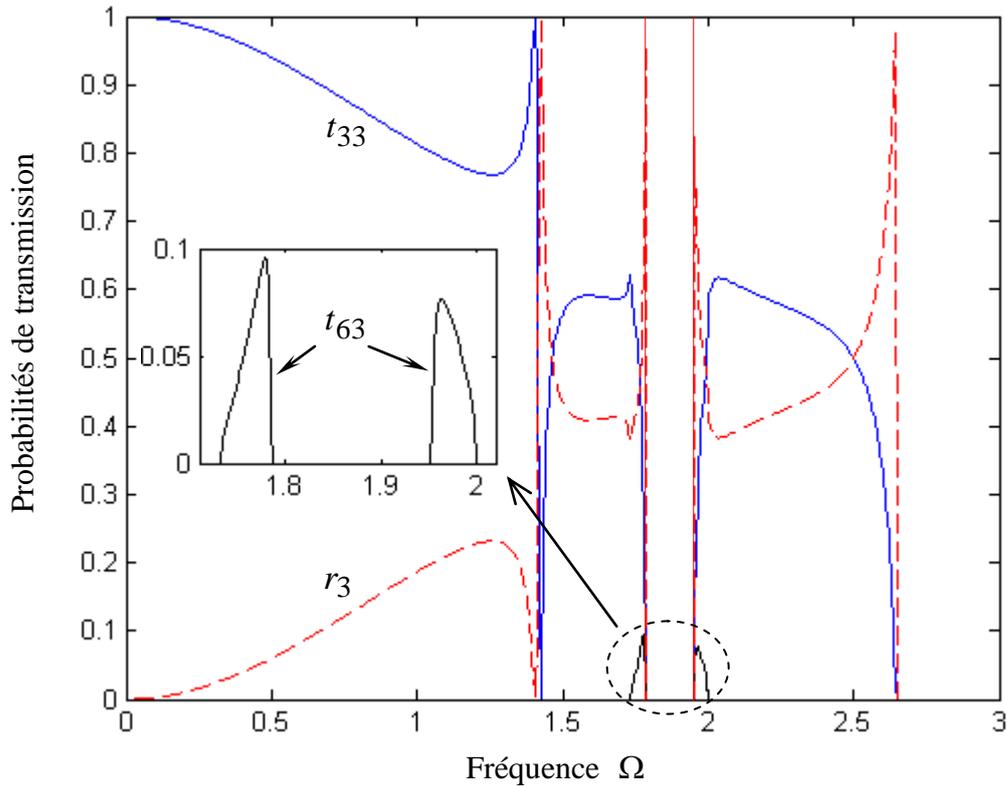


Fig. 3.4 : Coefficients de transmission et de réflexion dans le mode 3 dans le cas d'un défaut lourd ($m' = 2m$). Le mode 6 est excité à certaines fréquences alors même que l'onde incidente se trouve dans le mode 3.

Les résultats se rapportant à la conductance phononique $\Lambda(\Omega)$ sont montrés sur la Fig. 3.5. En plus des courbes de conductance relatives à chacune des masses de défaut, nous avons aussi représenté celle du réseau parfait (courbe en tirets cadratins). Notons que dans ce cas idéal sans défaut de masse ni de ressort, la probabilité de transmission est totale dans chacun des modes. La conductance du système devient alors importante dans les plages de fréquences propageantes communes, c'est-à-dire là où les modes se recouvrent. C'est pour cette raison qu'elle atteint, par exemple, la valeur 3 dans la plage comprise entre $\Omega = 0$ et $\Omega = 1$ puis 4 dans celle située entre $\Omega = 1$ et $\Omega \cong 1.41$. Dans ces courbes, nous retrouvons également toutes les résonances Fano dues au couplage continuum états discrets induits par le défaut.

Du fait que la résistance opposée au passage de l'onde dans la région perturbée devient plus importante quand la masse de défaut est lourde, l'amplitude spectrale relative à cette dernière est plus affectée que celle se rapportant à la masse légère. Cette influence se traduit de plus par un nombre de résonances plus élevé car certains états liés, propres au défaut léger, se trouvent à des fréquences supérieures à celles des modes propageants impliqués. Un argument simple en faveur de cette explication est contenu dans la définition même de la

fréquence d'oscillation, $\omega = \sqrt{k/m}$, de l'oscillateur harmonique isolé qui stipule qu'une masse faible correspond bien à une fréquence de vibration élevée.

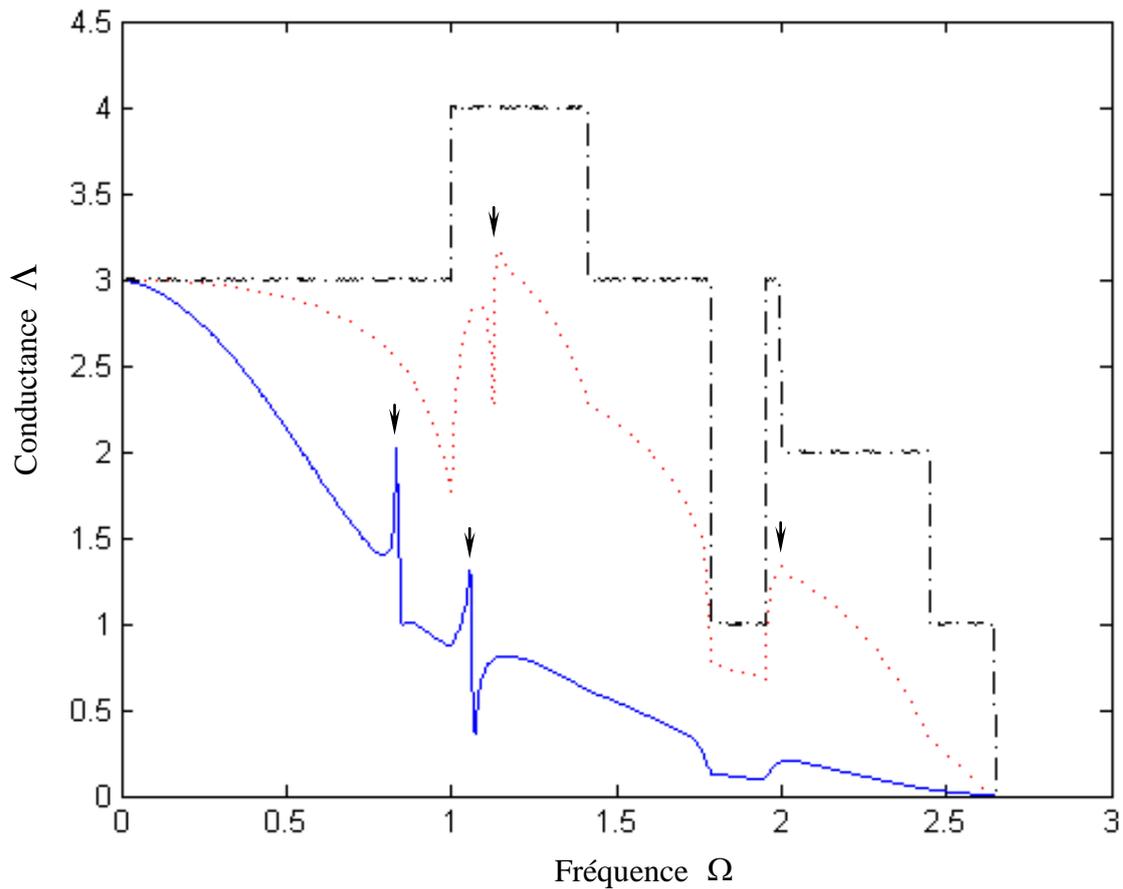


Fig. 3.5 : Conductance $\Lambda(\Omega)$ en présence d'un défaut de substitution isolé ayant une masse légère $m'=0.5 m$ (en pointillés) et une masse lourde $m'=3 m$ (en trait continu). La courbe en tirets points se rapporte à la conductance idéale du réseau parfait. Comme précédemment, Les flèches indiquent les différents pics de résonance.

3.4.1.2 – Défaut de ressort

Les défauts peuvent aussi être introduits en changeant les valeurs des constantes de ressorts du guide d'onde. Comme les défauts de masse, les défauts de ressorts agissent simultanément sur les sites voisins. Nous pouvons donc nous attendre à de nouvelles caractéristiques dans le spectre de transmission. Dans ce paragraphe, nous nous concentrons sur certains exemples de défauts de ressort simples qui révèlent déjà leur nature assez particulière.

3.4.1.2.1 – Ressort longitudinal k_l

Le changement des ressorts horizontaux k_l (voir Fig. 3.2), reliant deux colonnes adjacentes suivant la direction de propagation x , n'affecte que les modes de vibration 3 et 5 polarisés suivant cette direction (voir paragraphe 2.2.4.3 du chapitre 2); les modes 1 et 6, en particulier, pour lesquels la polarisation est plutôt prédominante suivant la direction z demeurent pratiquement inaltérés.

L'influence de la variation de la constante de force k_l sur le comportement spectral de la transmission est présentée en Fig. 3.6. Pour $k_l < 1$, un comportement résonant est observé dans les deux modes de vibration (Fig. 3.6a). Avec l'augmentation de k_l , les résonances se déplacent vers les hautes fréquences pour disparaître quand la valeur de $k_l \rightarrow 1$ où la transmission devient totale.

Pour les grandes valeurs de k_l (Fig. 3.7b), la résonance générée précédemment dans le mode 3 réapparaît en continuant toujours à se déplacer vers les hautes fréquences. Mise à part une petite perturbation, due probablement à l'interaction des modes 3 et 6 voisinage de $\Omega \approx 2$, les courbes de transmission adoptent une allure décroissante et monotone avec la fréquence. Contrairement au défaut de masse, le changement local du ressort longitudinal k_l induit des pics de résonance qui se déplacent vers les hautes fréquences quand k_l augmente.

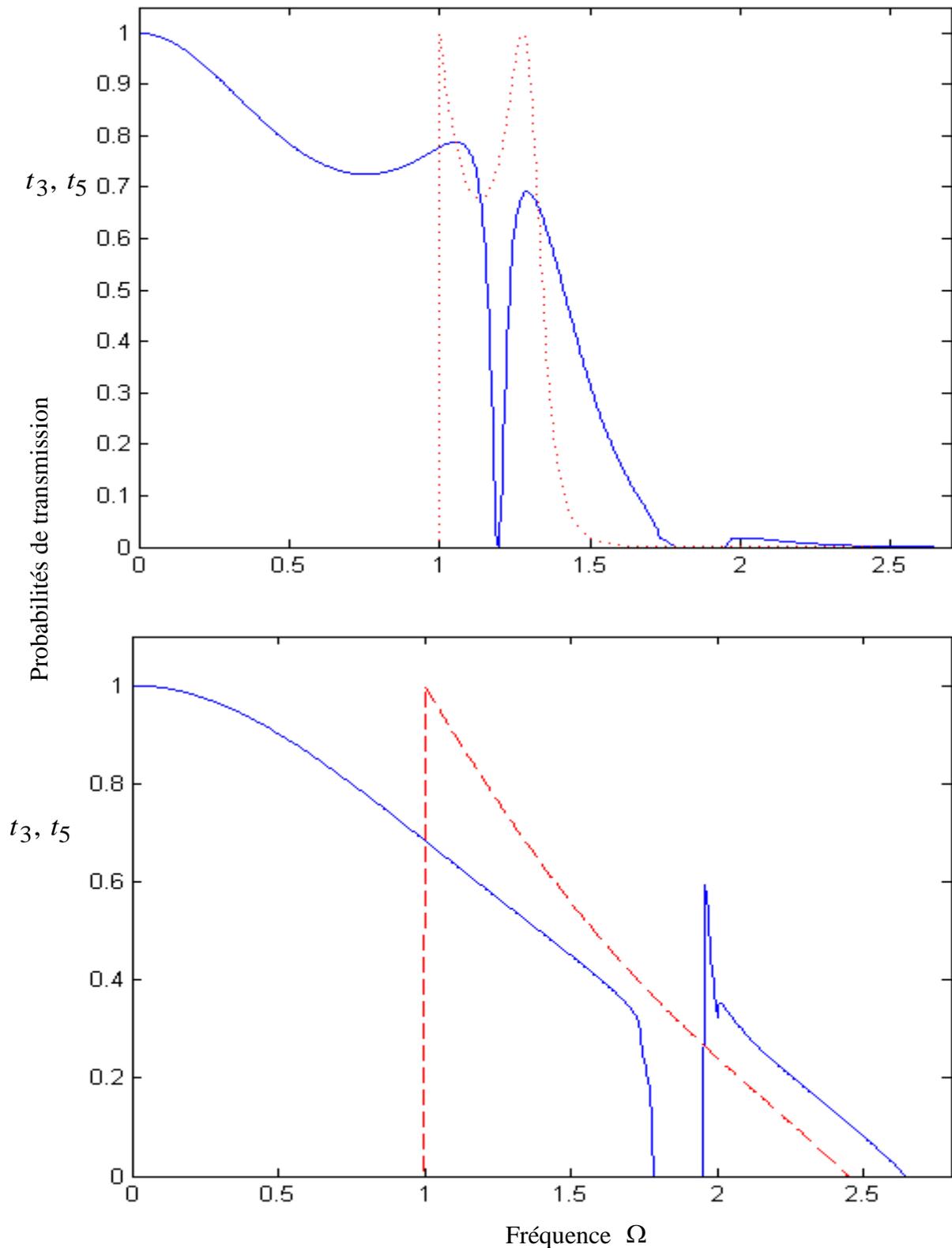


Fig. 3.6 : Influence de la variation locale des constantes k_l des ressorts horizontaux sur les probabilités de transmission des modes optiques 3 et 5 ; en a) $k_l = 0.1 k_1$ et b) $k_l = 5 k_1$

3. 4. 1. 2. 2 – Ressort vertical k_v

La constante de raideur k_v du ressort vertical symbolise la constante de force de liaison entre les atomes d'une même colonne (Fig. 3.2). Hormis les spectres de transmission des modes symétriques 3 et 6, le spectre des autres modes n'est aucunement affecté avec le remplacement de la constante k_v par d'autres valeurs plus ou moins importantes. En fait, les deux atomes de la colonne se déplacent de la même quantité dans la direction z alors qu'ils se déplacent dans des sens contraires suivant la direction de propagation x . Par conséquent, le ressort vertical n'est ni utilisé pour le mouvement suivant z , qui maintient la distance entre les deux masses, ni pour le mouvement suivant x du moment qu'aucune contribution harmonique n'est n'apportée par la nouvelle force. Dans le spectre de transmission du mode 3 (Fig. 3.7), en revanche, le remplacement du ressort vertical contribue au mouvement, le long de l'axe z , des deux atomes qui se déplacent dans des sens opposés.

Pour les valeurs de $k_v < k_1$, il se produit un comportement résonant dont la fréquence croît avec la valeur de la constante. Cette résonance s'évanouit à $k_v = k_1$ pour réapparaître plus tard dès que k_v dépasse légèrement cette valeur puis disparaître de nouveau à $k_v = 2.7 k_1$. Par suite, l'onde ne rencontre aucun obstacle pour se propager librement. La transmission totale s'installe alors dans tous les modes hormis le mode 6 où l'amplitude de probabilité est amoindrie.

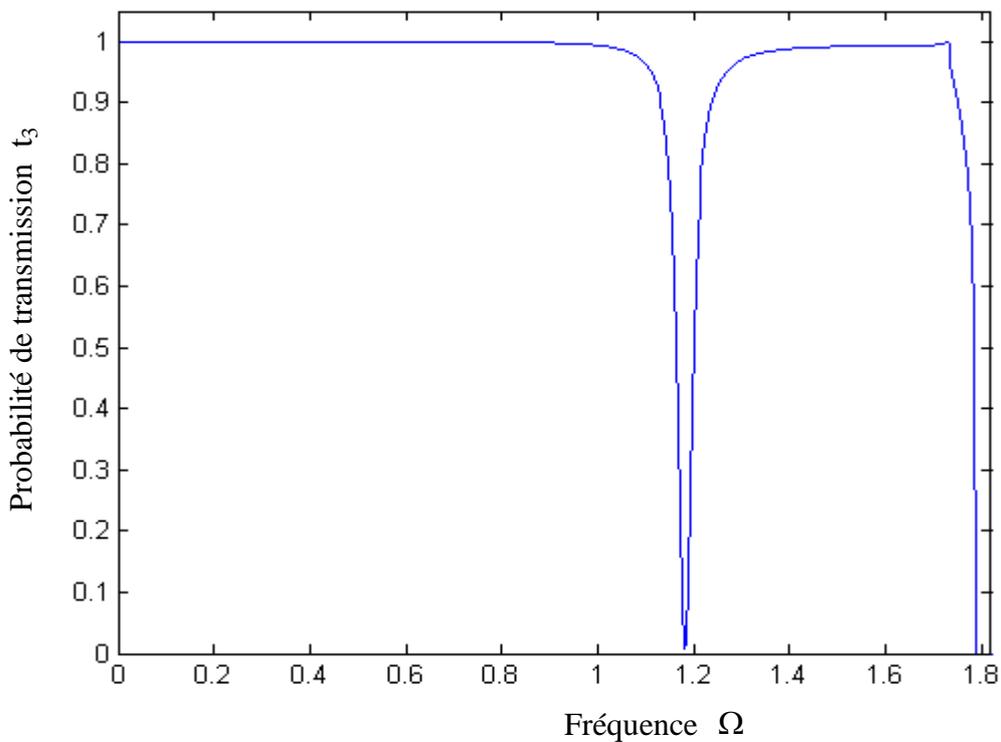


Fig. 3.7 : Influence d'un changement local du ressort vertical sur la probabilité de transmission dans le mode optique 3. La nouvelle constante du ressort est $k_v = 0.1 k_1$

3. 4. 1. 2. 3 – Ressort diagonal k_{I_V}

L'effet du changement des deux ressorts obliques en un seul site, correspondant à une instabilité locale contre le cisaillement, est représenté sur la Fig. 3.8 dans le mode acoustique 1. Aux faibles valeurs de la constante de raideur k_{I_V} , i.e. quand elle tend vers zéro, le spectre de transmission présente un comportement plutôt étrange ; la probabilité de transmission demeure fortement affectée même dans la limite des fréquences extrêmement basses et s'approche de la valeur $\frac{1}{2}$ plutôt que de l'unité quand la fréquence $\Omega \rightarrow 0$ (Fig. 3.8).

Pourtant, en régime basse fréquence, la transmission du son n'est généralement pas altérée par la présence de défauts locaux. Cet étrange phénomène peut, cependant, être expliqué si nous reconsidérons le comportement fonctionnel particulier des modes antisymétriques 1 et 4 dans la plage des basses fréquences. Dans la limite $\Omega \rightarrow 0$, il existe deux modes, un propageant et l'autre évanescent, mais avec un facteur de phase $Z_4 \rightarrow 1$ (voir Fig. 2. 6) pour ce dernier.

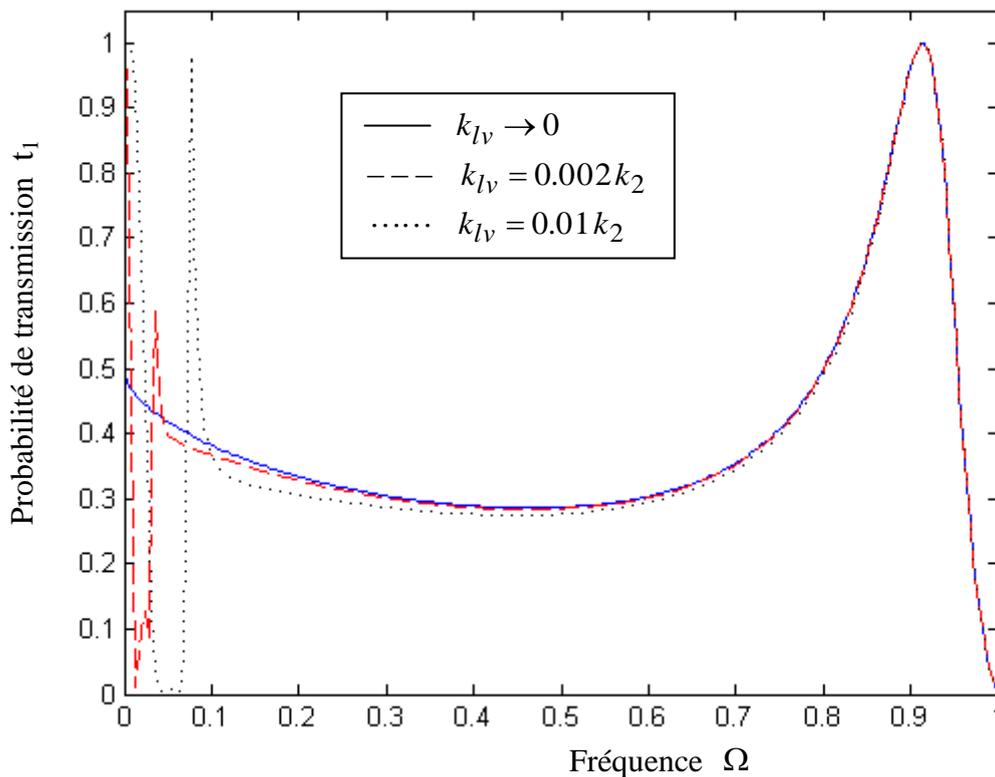


Fig. 3.8 : Probabilité de transmission dans le mode acoustique 1 pour différentes valeurs de la constante du ressort diagonal $k_{I_V} \rightarrow 0$.

Le mode évanescent devient alors de plus en plus étendu et à $\Omega = 0$, il est dégénéré avec le premier mode acoustique de propagation. Puisque la transmission n'a lieu qu'avec des états

propageants, la probabilité de transmission demeure approximativement égale à $1/2$ pour des fréquences faibles mais finies.

Comme attendu, aux faibles valeurs de la constante de ressort $k_{lv} < k_2$, le spectre de transmission se caractérise par deux résonances de Fano en régime acoustique (Fig. 3.9) ; la fréquence de résonance augmente avec k_{lv} . Les deux positions de transmission nulle (Fig. 3.8) n'atteignent pas, dans ce cas, nécessairement la valeur zéro. A l'approche de $k_{lv} = k_2$, les deux résonances s'évanouissent complètement et la transmission devient totale dans tous les modes.

Pour des valeurs de k_{lv} légèrement supérieures à k_2 (Fig. 3.10), une des résonances se retrouve dans le mode optique 5 (courbe en tirets) alors que les deux continuent de coexister dans le mode acoustique 3 à des fréquences plus élevées (courbes en continu). Ces résonances, dues à un couplage cohérent continuum états discrets, continuent de se déplacer vers les hautes fréquences avec k_{lv} . En augmentant encore k_{lv} , nous obtenons pour chacun de ces modes une résonance supplémentaire qui peut apparemment être attribuée à un second état résonant dans ces régions. De plus, les bandes de résonance s'élargissent et l'amplitude du coefficient de transmission devient de plus en plus faible.

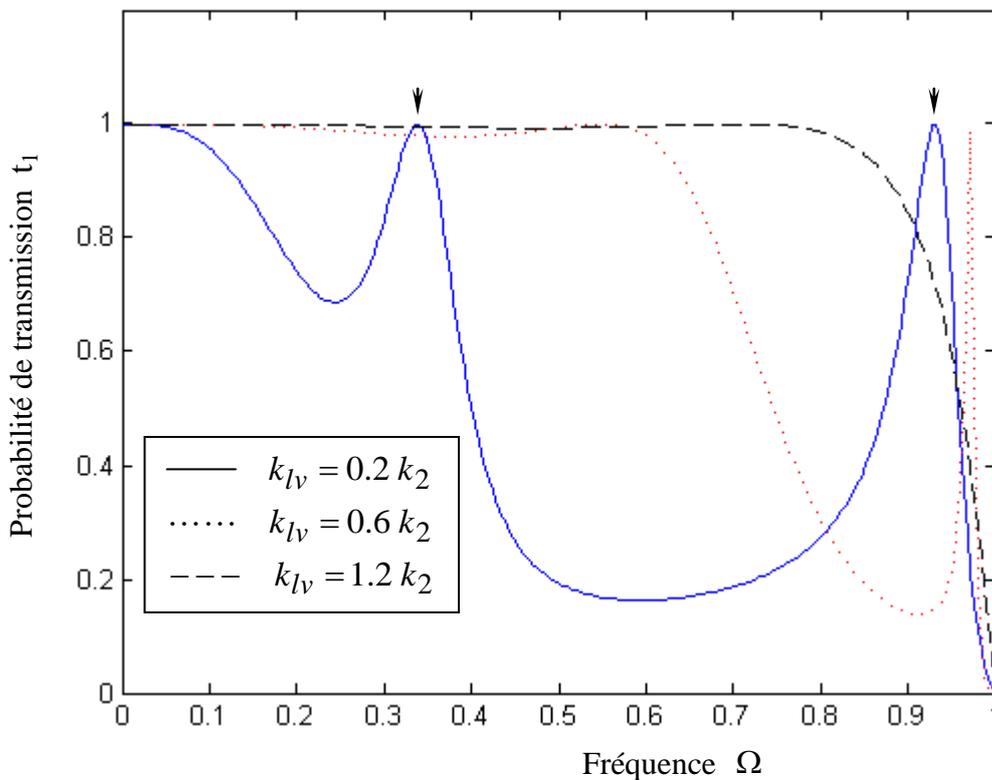


Fig. 3.9 : Evolution de la probabilité de transmission dans le mode acoustique 1 pour différentes valeurs de la constante du ressort diagonal k_{lv} . Les flèches indiquent les résonances de Fano.

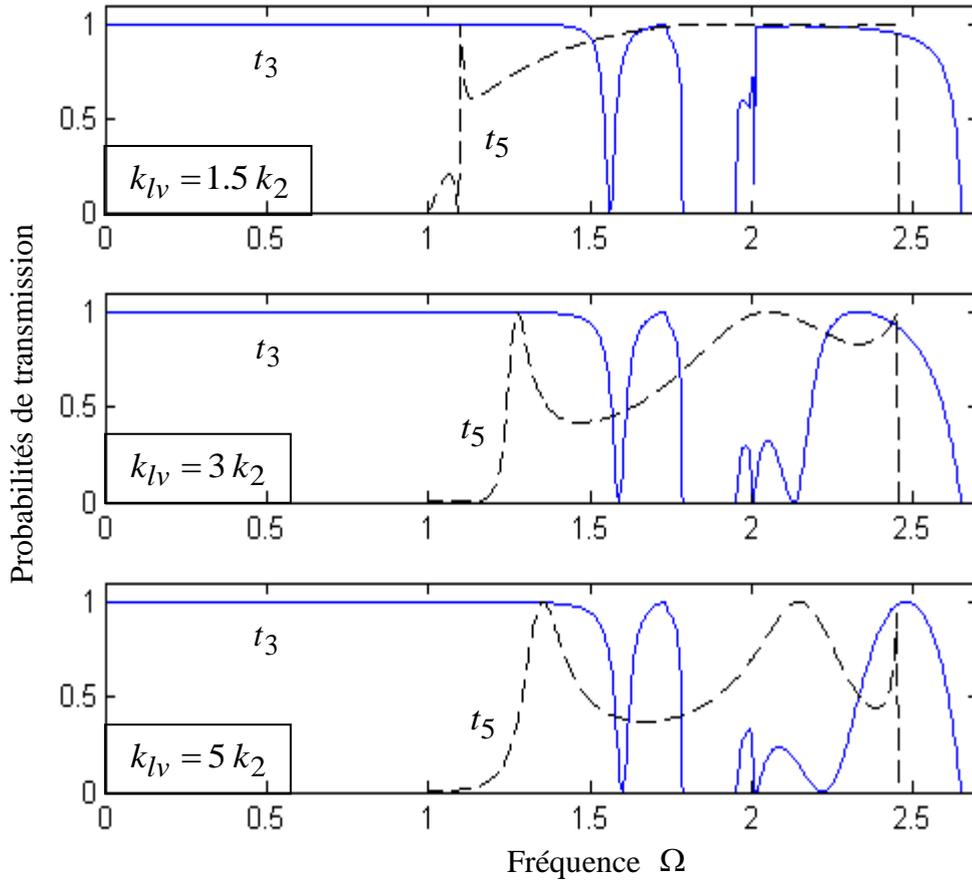


Fig. 3.10 : Evolution du spectre de transmission dans les modes acoustique 3 et optique 5 avec la nouvelle constante k_{lv} du ressort diagonal.

3. 4. 1. 3 - Angle d'incidence quelconque

Jusqu'à présent, nous n'avons considéré que la diffusion issue d'une onde incidente se propageant perpendiculairement au défaut, c'est-à-dire sous un angle d'incidence nul. Dans ce paragraphe, nous tiendrons compte de la diffusion d'onde vibratoires sous un angle d'incidence quelconque. Les calculs numériques seront effectués pour une constante de réseau $r_2 = 0.5$ et le paramètre λ , qui tient compte de la souplesse ou de la rigidité des constantes de force dans la région du défaut, sera égal à 1.2. L'onde incidente se propage toujours de la gauche vers la droite. D'autre part, nous étudierons uniquement le cas du défaut lourd ($m' = 2.5 m$) du fait que son spectre de transmission comporte plus de structures que le spectre du défaut léger.

La figure 3.11 montre les amplitudes relatives des coefficients de transmission t_{23} , t_{33} , t_{63} ainsi que leur somme t_3 en fonction de la fréquence de diffusion Ω dans le mode 3 pour un angle d'incidence $\phi_y = \pi/4$. Rappelons que $t_{\nu\bar{\nu}}$ et $r_{\nu\bar{\nu}}$ pour $\nu \neq \bar{\nu}$ représentent respectivement les contributions dans la transmission et la réflexion du mode ν quand le

mode incident est le mode $\bar{\nu}$. Ces coefficients n'existent que dans la plage de propagation commune aux deux modes à chaque fois, c'est-à-dire dans la zone de recouvrement (voir les courbes de dispersion, Fig. 2. 2 ou celles des vitesses de groupe, Fig. 2. 9) et s'annulent en l'absence de couplage. Comparativement au cas d'incidence nulle (Fig. 3.4) où seul le mode 6 est excité, le mode 2 devient aussi excité à certaines fréquences quand le mode entrant est représenté par le mode 3 pour $\phi_y = \frac{\pi}{4}$. En effet, les angles $\phi_y > 0$ induisent plus de couplage entre les modes qui se recouvrent sur des plages de fréquence plus importantes. L'étendue de cette zone de recouvrement diminue avec l'angle d'incidence. Comme attendu, le spectre de transmission est toujours marqué par deux résonances de type Fano résultant des couplages continuum de propagation et états discrets du défaut.

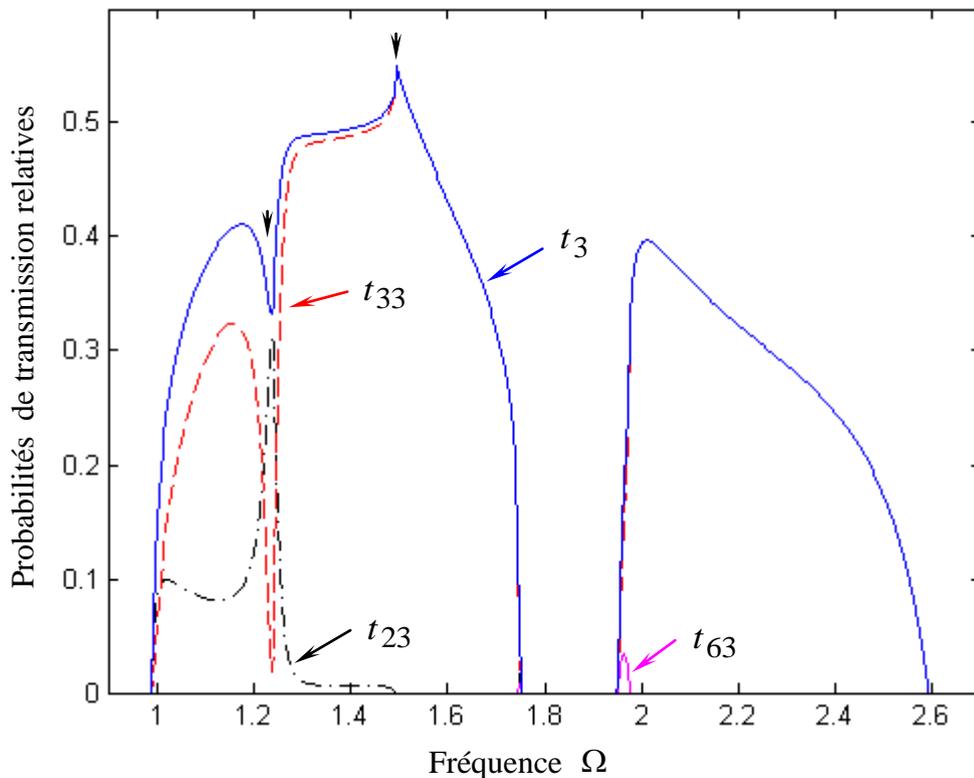


Fig. 3.11 : Amplitudes relatives des probabilités de transmission dans les modes 2, 3 et 6 ; le mode entrant est le mode 3. La masse du défaut est $m' = 2.5 m$. Les flèches indiquent les résonances.

Par ailleurs, les plages des fréquences propageantes diminuent considérablement quand l'angle d'incidence augmente. Les courbes des conductances phononiques représentées sur la Fig. 3.12 pour différentes valeurs de ϕ_y le montrent clairement.

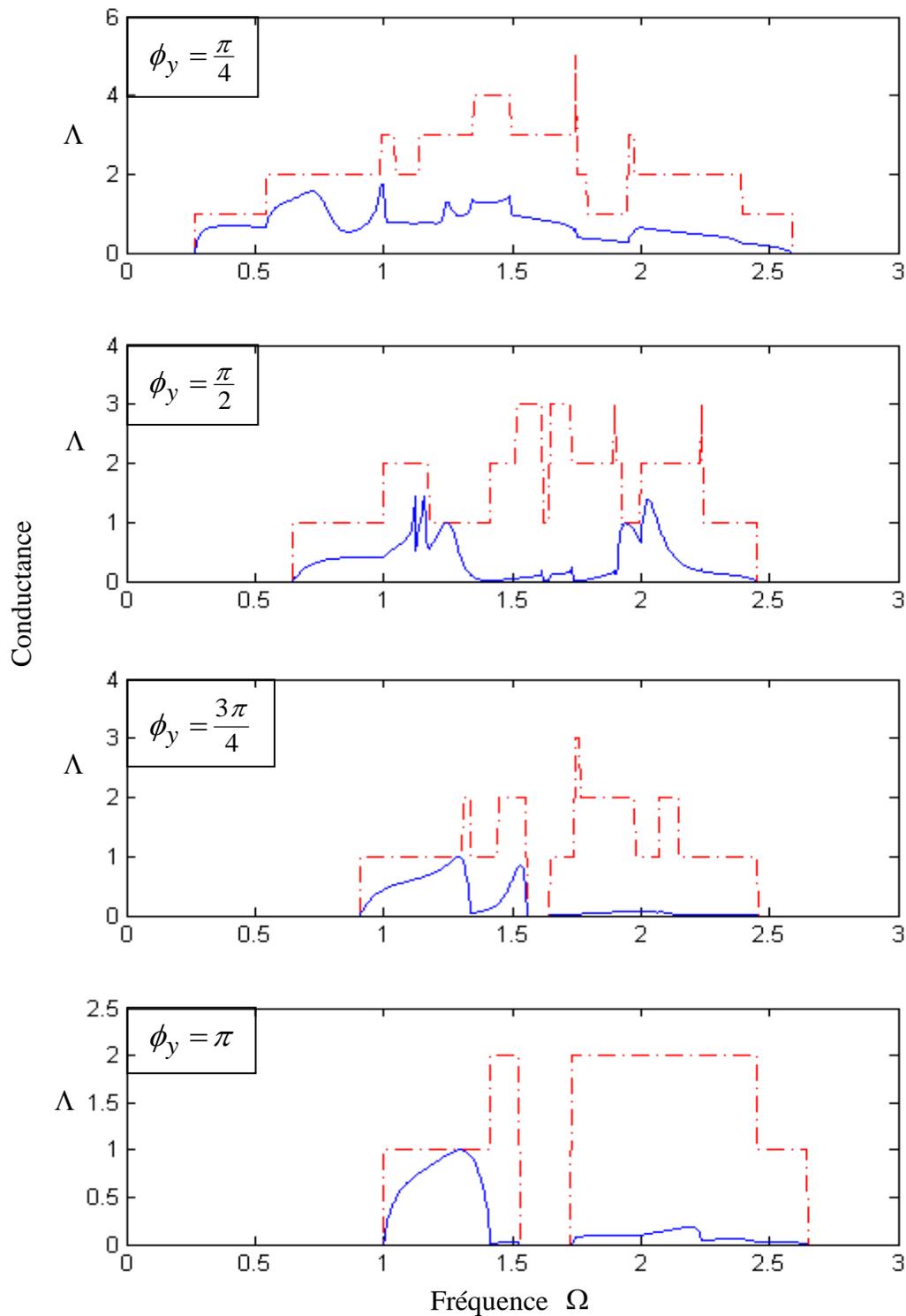


Fig. 3.12 : Probabilités de transmission totale due à la diffusion par un défaut isolé de substitution pour une masse du défaut $m'=2.5 m$. L'histogramme en tirets points se rapporte à la conductance idéale.

3. 4. 1. 4 – Interaction de deux défauts

Nous considérons maintenant le cas de deux colonnes défaut isolées séparées par une portion de guide d'ondes parfait et situées aux positions l et r . La distance entre les défauts est $\delta = (l - r)a$. Pour des raisons de simplicité, nous présentons les résultats pour deux colonnes perturbatrices identiques, symétriquement disposées relativement à l'axe y . La Fig. 3.13 montre l'évolution de la probabilité de transmission en termes de la fréquence sans dimensions dans les modes acoustique t_1 et optique t_5 pour différentes distances δ . En premier lieu, nous considérons une masse de défaut légère ($m' = 0.5 m$). La courbe en tirets se rapporte à la probabilité élastique de transmission dans le cas d'un diffuseur isolé ayant la même masse. Pour une distribution de tels défauts, des oscillations additionnelles de Fabry-Pérot dues à l'interférence entre les multiples ondes diffusées dans la région perturbée sont attendues. On peut voir sur la Fig. 3.13 que leur nombre dans un intervalle de fréquence donné augmente pendant que la distance δ du gap s'élargit. Ce nombre dépend étroitement de la largeur totale δ de la région du défaut qui représente toujours un multiple entier du paramètre de réseau a . L'amplitude des oscillations devient plus significative à l'approche de la limite de zone (ligne verticale en tirets points). Les résultats montrent clairement que les deux diffuseurs placés à distance possèdent toutes les caractéristiques d'un résonateur de Fabry-Pérot. De plus, la courbe de transmission ne présente aucune résonance de Fano dans le mode 1. Ceci peut être expliqué par le fait que toutes les fréquences propres du défaut sont positionnées au delà de la bande de propagation de ce mode [38]. L'énergie totale est quasiment transmise à faible fréquence, comme mentionné précédemment.

Dans le mode optique, en revanche, le spectre de transmission est perturbé par une résonance prononcée de Fano pour $\delta = a$ à $\Omega = 1.3$; mais pour $\delta > a$, une résonance de Fano supplémentaire fait son apparition, comme attendu. Les deux résonances sont associées aux deux états localisés induits par les deux colonnes d'impuretés. Pour des perturbations adjacentes ($\delta = a$), le second pic de résonance est repoussé au-delà du minimum du mode optique 4 et ne peut donc apparaître sur le spectre de transmission [83] de la Fig. 3.13. Les deux états localisés se rapprochent l'un de l'autre avec la distance δ . Notons que l'intervalle de fréquence entre pics de résonance se réduit progressivement pour ensuite disparaître aux grandes distances (voir, par exemple, le cas $\delta = 10a$). Alors, les deux résonances deviennent dégénérées. Ce qui explique l'influence de la distance sur la position relative des minima respectifs de transmission. De plus les minima de transmission n'atteignent pas nécessairement la valeur zéro, comme c'est habituellement le cas.

Par ailleurs, le nombre de pics donne directement la distance entre défauts. La distance entre deux pics successifs varie à cause de la forme des relations de dispersion. Si la courbe de transmission était représentée en fonction du vecteur d'onde et non de la fréquence, ces maxima auraient été régulièrement espacés.

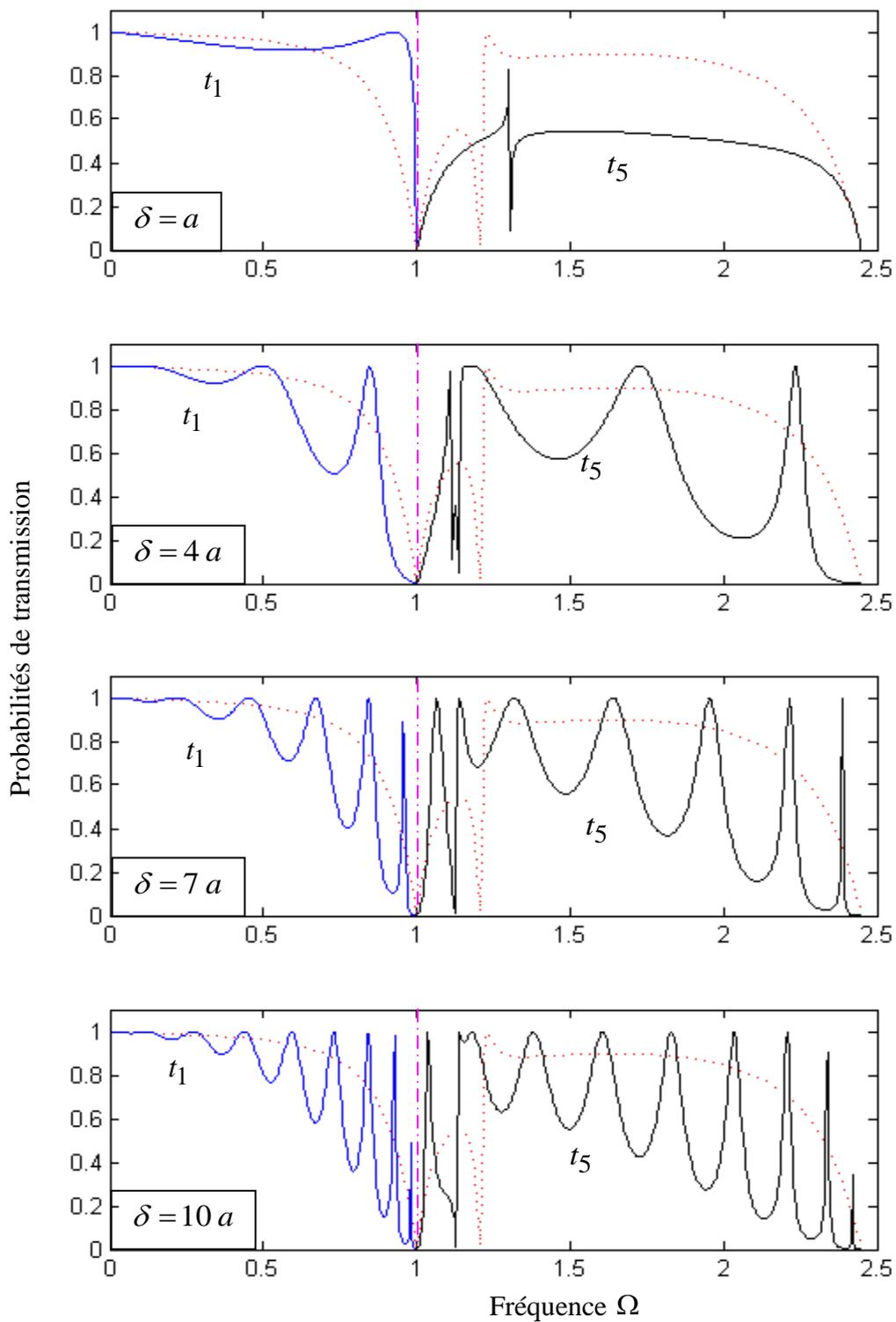


Fig. 3.13 : Probabilités de transmission en fonction de la fréquence normalisée Ω pour deux colonnes défaut, de masse lourde ($m'=0.5 m$), séparées par une distance δ variable. Les courbes en tirets montrent la probabilité de transmission dans le cas d'un défaut isolé de même masse.

L'importance du couplage entre les états localisés induits par le défaut et les modes propageants du guide d'onde est révélée par la présence d'une masse plus lourde ($m' = 3m$) du défaut. Comme attendu, le spectre de transmission devient très affecté (Fig. 3.14). L'amplitude des oscillations est considérable, ce qui réduit d'autant la largeur de bande des résonances. Ce phénomène est certainement dû à l'inertie individuelle de chacune des masses composant la colonne défaut. Néanmoins, le nombre d'oscillations est toujours lié au nombre de paramètres de réseau que renferme la distance entre colonnes. Comme précédemment, les deux colonnes défaut ainsi disposées peuvent être assimilées à un résonateur de Fabry-Pérot. De plus, les résonances Fano viennent se superposer aux résonances Fabry-Pérot et il devient souvent difficile de déterminer l'origine exacte des pics dans les courbes de transmission. Le maximum de résonance n'atteint pas nécessairement la valeur unité, comme c'est habituellement le cas. Le nombre d'oscillations de Fabry-Pérot paraît également inférieur au nombre de paramètres de réseau contenu dans la largeur δ de la région perturbatrice mais ceci est simplement lié à un problème de résolution dans la fréquence utilisée. Notons qu'en moyenne, les oscillations de Fabry-Pérot suivent une courbe dont la forme globale est similaire à celle du défaut isolé de même masse.

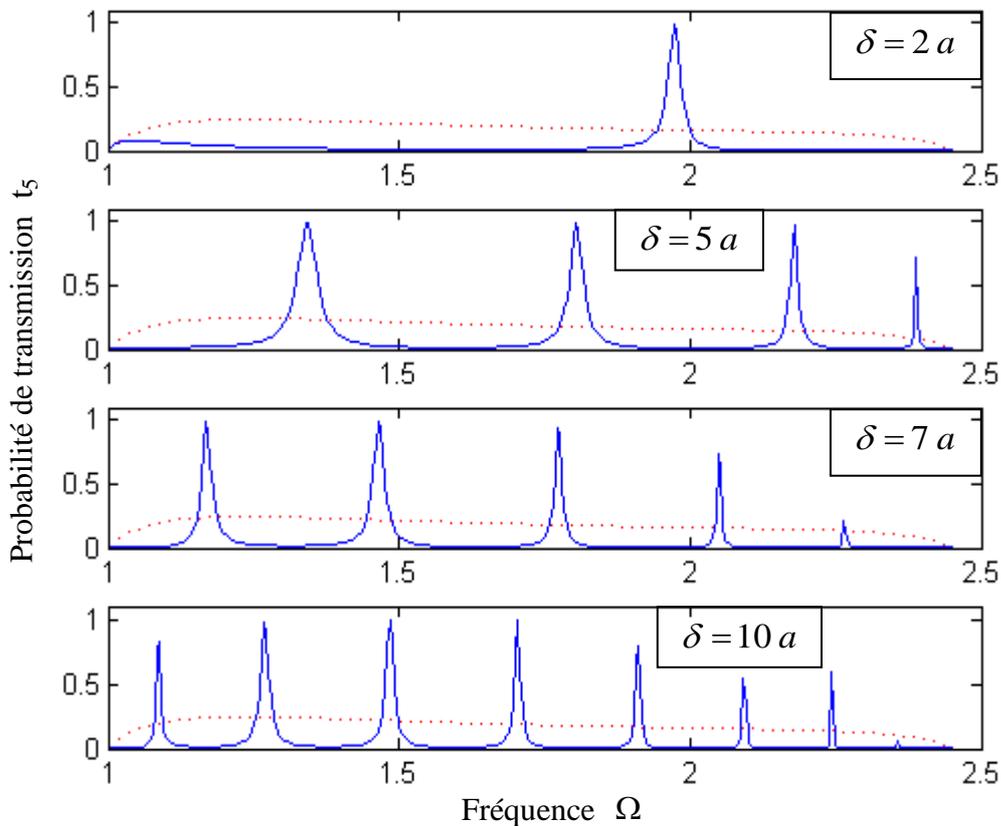


Fig. 3.14 : Probabilités de transmission en fonction de la fréquence normalisée Ω pour deux colonnes défaut, de masse lourde ($m' = 3m$), séparées par une distance δ variable. Les courbes en tirets montrent la probabilité de transmission dans le cas d'une colonne défaut unique de même masse.

3. 4. 1. 3 – Séquences de défauts

Les courbes de transmission dans les modes acoustique 1 et optique 5 pour quatre séries de colonnes défauts régulièrement espacées sont montrées sur les figures 3.15. La masse du défaut est $m' = m/3$. Les schémas des différentes structures correspondantes sont représentés au-dessus de chaque figure. L'augmentation du nombre de défauts n'apporte rien de qualitativement nouveau par rapport au cas de deux défauts séparés. Les effets décrits précédemment se retrouvent mais ils sont encore plus difficiles à isoler en raison du plus grand nombre de résonances proches en fréquences. C'est la raison pour laquelle nous ne considérons pas les régions où se produisent les résonances Fano ; nous nous limiterons à présenter un changement plus global des spectres de transmission provoqué par les interférences Fabry-Pérot.

Les oscillations de Fabry-Pérot, issues de l'interférence entre les multiples ondes diffusées dans la région perturbée, donnent lieu à une séparation en bandes de hautes probabilités de transmission, deux dans le spectre du mode acoustique et trois dans celui du mode optique. Ces bandes dépendent étroitement de la distance entre colonnes de défauts ($\delta = 3a$, dans cet exemple). En revanche, les petites oscillations dans les fenêtres entre bandes dépendent directement de la largeur totale de la région de défaut. Si p indique le nombre de colonnes défauts contenues dans la séquence, les structures apparaissant dans chaque spectre de transmission se subdivisent en $(p-1)$ sous structures. Cette subdivision s'effectue de telle sorte que le nombre de sous structures soit toujours égal au nombre d'intervalles que comporte la séquence de défauts toute entière. Des résultats semblables ont été obtenus lors de la diffusion de phonons par une double chaîne quantique perturbée par des séquences de défauts atomiques régulièrement espacés (guide d'ondes quasi-1D) [24,77]. En étudiant le spectre de transmittance d'un nano fil contenant un ensemble de faisceaux linéaires séparés par différents espacements, V. Pouthier et *al.* [84,85] a aussi observé des résultats similaires. Il est clair que les bandes caractéristiques pour chaque type de défaut résultent de la distribution spatiale de ces derniers dans la zone perturbée. À mesure que le nombre de colonnes défauts augmente, une nouvelle structure périodique, caractéristique de la largeur de bande, est obtenue. Elle peut être considérée comme une signature de cet arrangement structural. Il faudra, cependant, recourir à la détermination des courbes de dispersion pour une telle distribution périodique de défauts afin de comprendre toute la portée de ce phénomène.

Il convient de noter que la forme globale de ces courbes de transmission est tout à fait semblable à celles obtenues dans le cas de deux colonnes défauts séparées par une distance $\delta = 3a$ (courbe en tirets sur la figure 3.15).

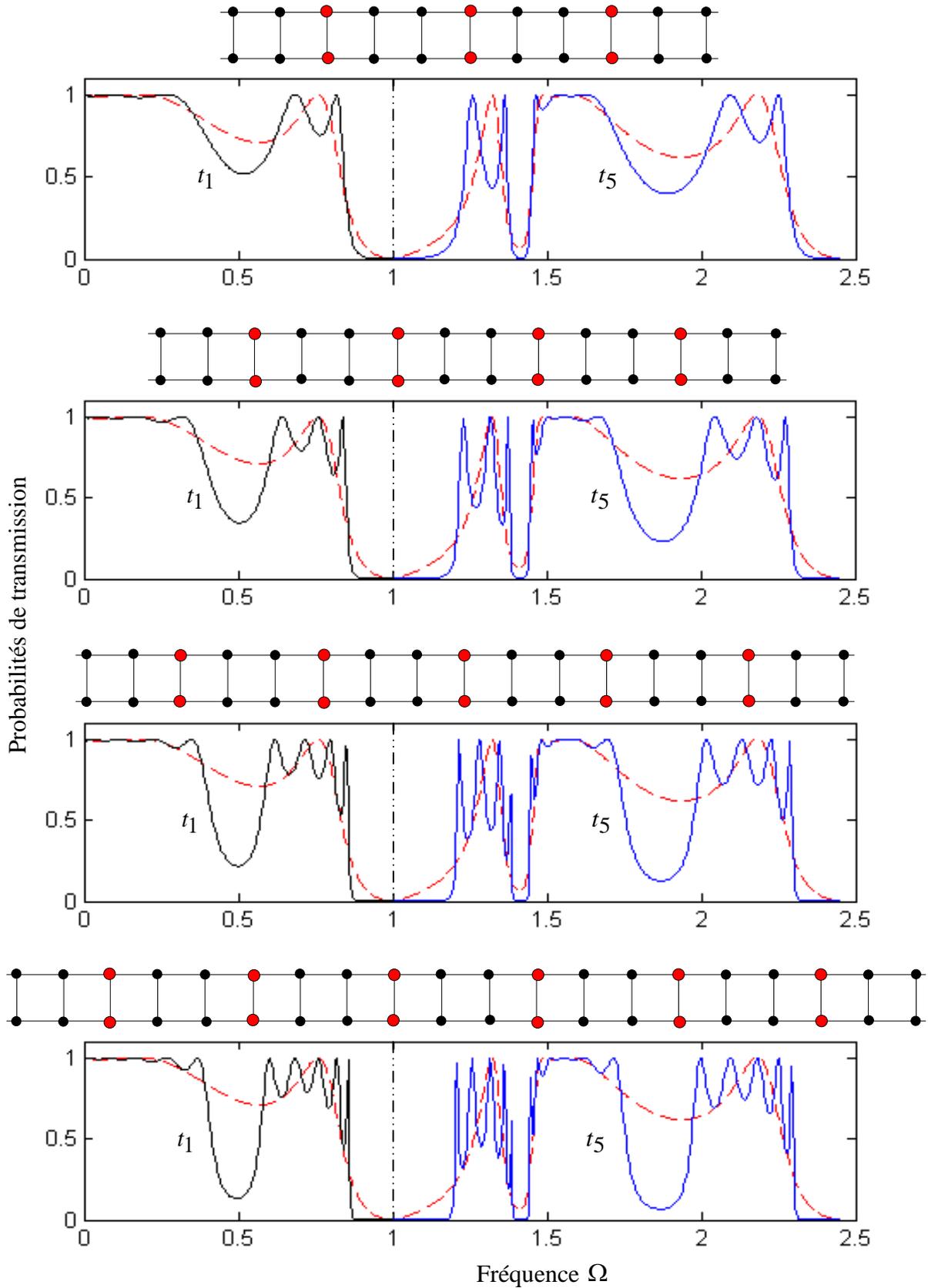


Fig. 3.15 : Probabilité de transmission en fonction de la fréquence normalisée Ω dans les modes acoustique 1 et optique 5 pour 4 séquences de défauts séparés. La structure est montrée en haut de chaque figure. La courbe en tirets se rapporte à deux défauts isolés séparés par la même distance $\delta = 3a$.

3. 4. 1. 5 – Défaut étendu

L'augmentation du nombre N de colonnes défaut a comme conséquence une taille plus importante du système linéaire (3.3), mais la matrice \tilde{D} garde sa structure. Néanmoins, l'analyse spectrale devient de plus en plus complexe. C'est pourquoi nous avons limité nos calculs à $N = 20$ colonnes, ce qui engendre déjà une matrice de dimension (132×144) . Du fait que qualitativement, les coefficients de transmission dans les modes de vibration acoustiques ou optiques indiquent les mêmes caractéristiques spectrales, nous présentons seulement les résultats relatifs à un mode acoustique. La Figure 3. 16 présente le spectre de transmission dans le mode 2 pour différentes valeurs de l'épaisseur N de l'échantillon considéré dans le cas d'un défaut lourd de masse $m' = 2m$. Pour les mêmes raisons que celles mentionnées pour les deux distributions précédentes de défauts, le coefficient de transmission approche l'unité pour $\Omega \rightarrow 0$ et est indépendant du nombre N de diffuseurs contenus dans la région délimitée du défaut. La probabilité de transmission t_2 diminue alors graduellement au détriment du coefficient de réflexion en respectant toujours la complémentarité entre les deux courbes comme l'exige le principe de conservation de l'énergie. De plus, le nombre d'oscillations de Fabry-Pérot issues de l'interférence entre les multiples ondes diffusées dans la région perturbée, correspond exactement au nombre N de colonnes défauts, indépendamment de leur distribution spatiale. En fait, leur nombre apparaît comme égal à $(N - 1)$ mais ceci est dû uniquement à un problème de résolution. Des résultats semblables ont été observés dans la référence [24] lors de la diffusion d'ondes vibratoires dans une double chaîne quantique comportant des impuretés de substitution.

Du fait que la résistance opposée au passage de l'onde dans la région perturbée devient plus significative pour le défaut de masse lourde, l'amplitude des spectres de transmission est plus affectée que celle se rapportant au défaut de masse légère. Le nombre de structures augmente et l'étendue de la plage de propagation diminue (dans le cas du mode 2, elle passe de 1.5 à 1.2, voir Fig. 3.16). Cette influence a également comme conséquence un nombre plus élevé de résonance en raison de certains états localisés, propres au défaut léger, situés au-delà des plages de propagation impliquées, comme souligné précédemment dans le cas du défaut isolé. Ce phénomène a également été observé dans la référence [61] en variant la valeur du paramètre de rigidité λ . Ainsi, la variation de la masse joue-t-elle le rôle inverse de celui du paramètre λ . Notons que les résonances Fano peuvent se superposer complètement aux oscillations de Pérot-Fabry. Comme attendu, nous constatons que l'augmentation de résistance dépend intimement de la taille et du nombre N de défauts, indépendamment de la distribution locale de ces derniers.

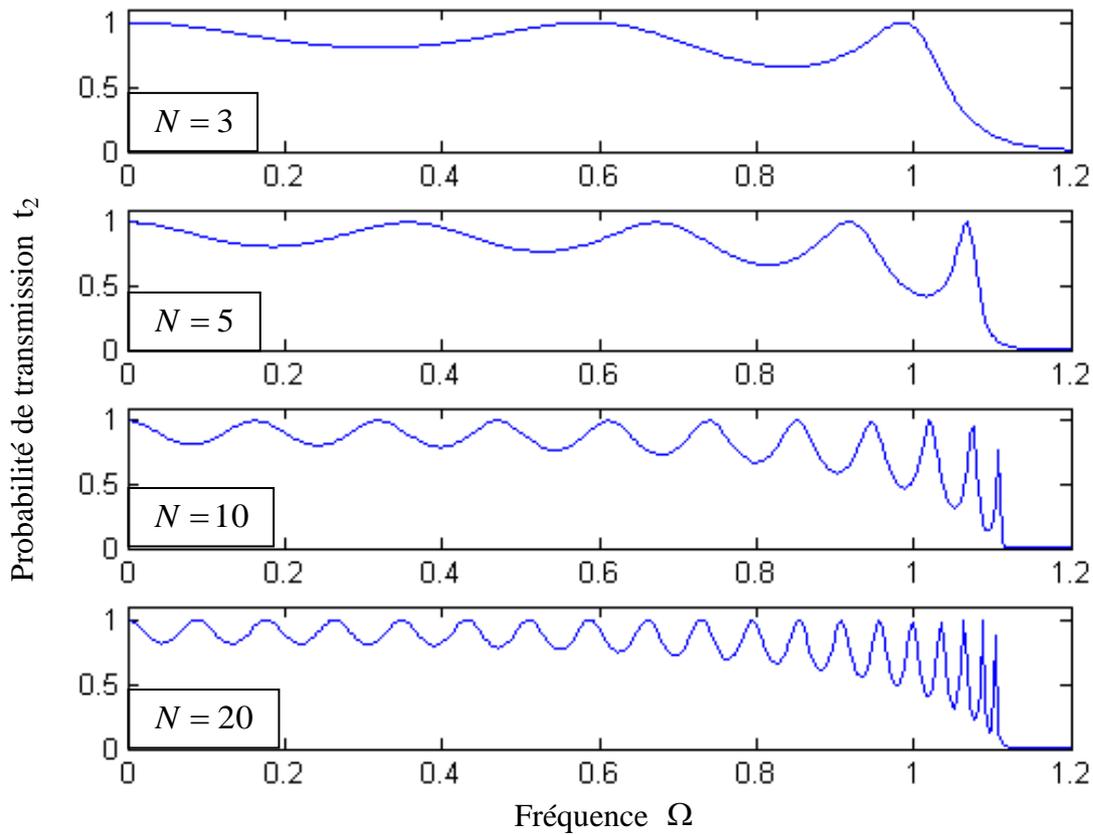


Fig. 3.16 : Probabilités de transmission dans le mode acoustique 2 en fonction de la fréquence de diffusion Ω pour un défaut étendu comportant un nombre N de colonnes variable. La masse du défaut est $m' = 2m$.

3.4.2 – Défaut interstitiel

Pour un défaut interstitiel isolé, le cluster se compose d'un nombre d'atome deux fois et demi plus élevé que pour le même défaut isolé de substitution. De ce fait, la dimension du système d'équations linéaire inhomogène (3.3) devient beaucoup plus importante et le nombre d'inconnues plus élevé. Ce qui nécessite un temps de calcul relativement long. Nous gardons, par ailleurs, les mêmes valeurs que précédemment pour la constante de réseau k_2 et le paramètre de rigidité λ dans la zone perturbée. Les constantes additionnelles qui symbolisent les liaisons du défaut avec les premiers et les seconds voisins du réseau auront respectivement pour valeurs $K_{lv} = \lambda$ et $K_{lv} = 0.5\lambda$. Nous supposons que l'onde incidente se propage toujours de la gauche vers la droite avec une amplitude unité et un déphasage nul sur la colonne d'atomes frontalière (-1) [voir Fig. 3.2]. Ici aussi, nous nous intéresserons au cas où la propagation de l'onde s'effectue parallèlement à l'axe x dans le sens positif, c'est-à-dire sous un angle d'incidence nul.

La Figure 3. 18 montre les résultats relatifs aux probabilités de transmission (en continu) et de réflexion (en tirets) dans les six modes de vibration du double plan dans le cas d'un défaut interstitiel isolé (la structure est représentée au dessus de la Fig. 3.18). Les résultats étant qualitativement les mêmes pour les deux masses de défaut, nous présentons par conséquent ceux obtenus pour la masse légère ($m'=0.5 m$). La courbe en tirets points indique clairement que les deux spectres de transmission et de réflexion sont bien complémentaires, ce qui confirme parfaitement le principe de conservation de l'énergie.

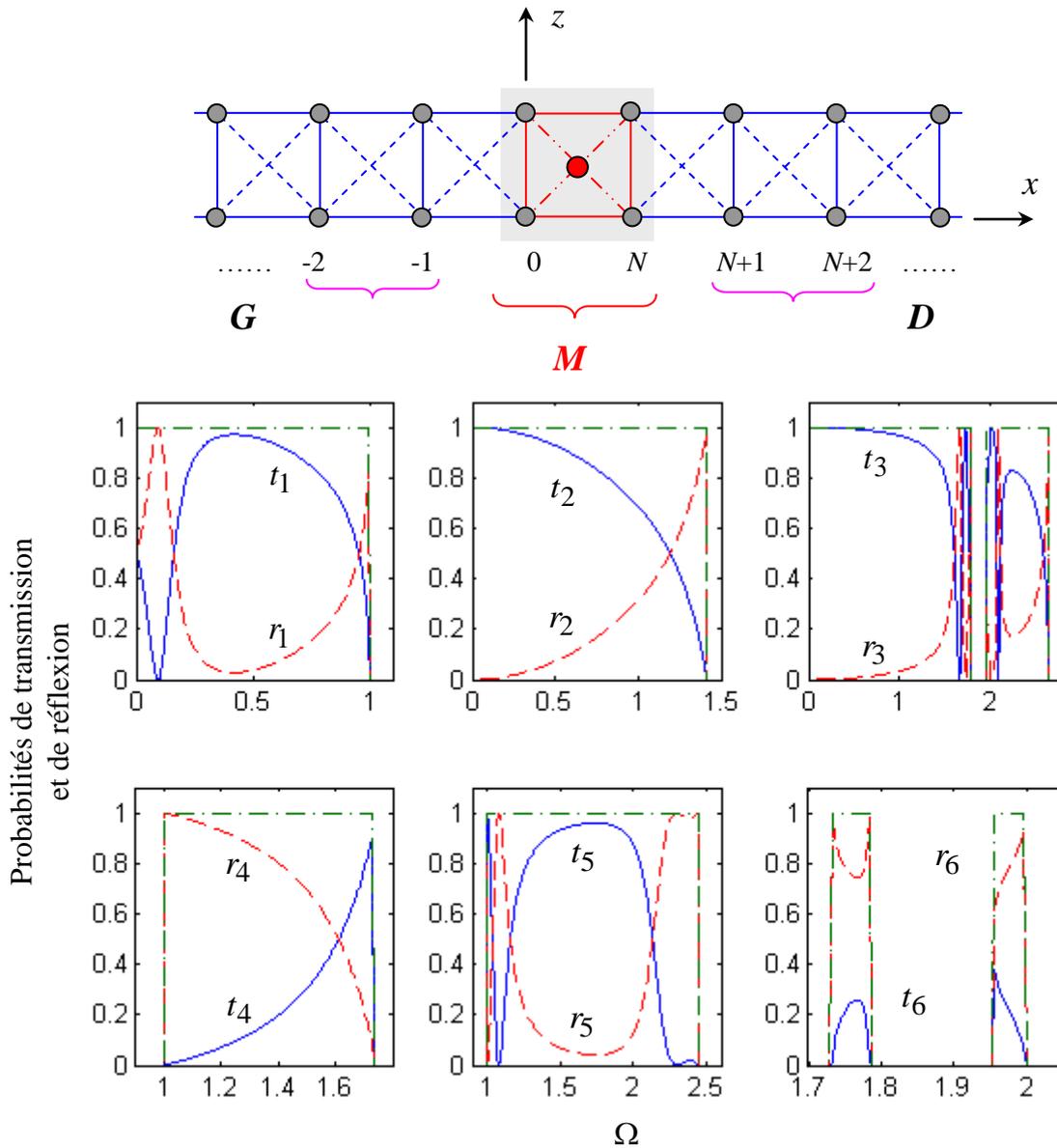


Fig. 3.18 : Probabilités de transmission et de réflexion en fonction de la fréquence normalisée Ω dans les six modes de vibration du double plan pour un défaut interstitiel de masse légère ($m'=0.5 m$). La courbe en tirets points indique la complémentarité parfaite entre les courbes de transmission et de réflexion.

D'autre part, la probabilité de transmission t_1 demeure fortement affectée dans la limite des fréquences extrêmement faibles et s'approche de la valeur $1/2$ plutôt que de l'unité quand la fréquence $\Omega \rightarrow 0$. Ce phénomène étrange, déjà mentionné plus haut, s'explique par le comportement fonctionnel particulier des modes antisymétriques dans la plage des faibles fréquences où il y a coexistence de deux modes, un propageant et l'autre évanescant avec un facteur de phase tendant vers une valeur très proche de l'unité. Sinon, les différents spectres sont marqués par des résonances Fano, comme attendu.

La figure 3.19 montre les probabilités de transmission totale en fonction de la fréquence sans dimension dans le cas de deux défauts interstitiels séparés par différentes distances δ pour une masse lourde ($m'=1.5m$) du défaut. Comme attendu, le spectre de transmission est dominé par les oscillations Fabry-Pérot issues des interférences entre les multiples ondes diffusées dans la région perturbée. Leur nombre est toujours égal au nombre de paramètres de réseau a contenu dans la distance δ . Pour des distances importantes, la résolution graphique devient relativement difficile. Cependant, la forme globale des courbes de conductance est, en moyenne, tout à fait semblable à celle obtenue dans le cas d'un défaut interstitiel isolé de même masse (courbe en tirets sur la Fig. 3.19). Pour comparaison, nous avons représenté également l'histogramme de la conductance idéale du double plan.

Dans cette catégorie de défaut, nous avons aussi considéré quelques séquences de défauts. La figure 3.20 présente les probabilités de transmission en fonction de la fréquence normalisée Ω dans les modes acoustique 2 et optique 4 pour trois séquences de défauts interstitiels. Chaque paire de défauts isolés est séparée par la même distance $\delta = 4a$. Les oscillations F. P. issues de l'interférence entre les multiples ondes diffusées dans la région perturbée, donnent lieu à une séparation en bandes de hautes probabilités de transmission. Le nombre de bandes est donné par le nombre d'intervalles inter défauts isolés moins un ($4 - 1 = 3$, dans cet exemple). Si, comme dans le cas du défaut de substitution, p désigne le nombre de défauts isolés de la séquence, les structures apparaissant dans les spectres de transmission se subdivisent toujours en $(p-1)$ sous structures [24,77,84-85]. Une nouvelle structure périodique, caractéristique de la largeur de bande, est obtenue pour tout nouvel arrangement structural.

Il convient de noter que la forme globale des courbes de transmission est très semblable à celles obtenues dans le cas de deux colonnes défauts séparées par la même distance $\delta = 4a$ (courbe en tirets de la Fig. 3.20).

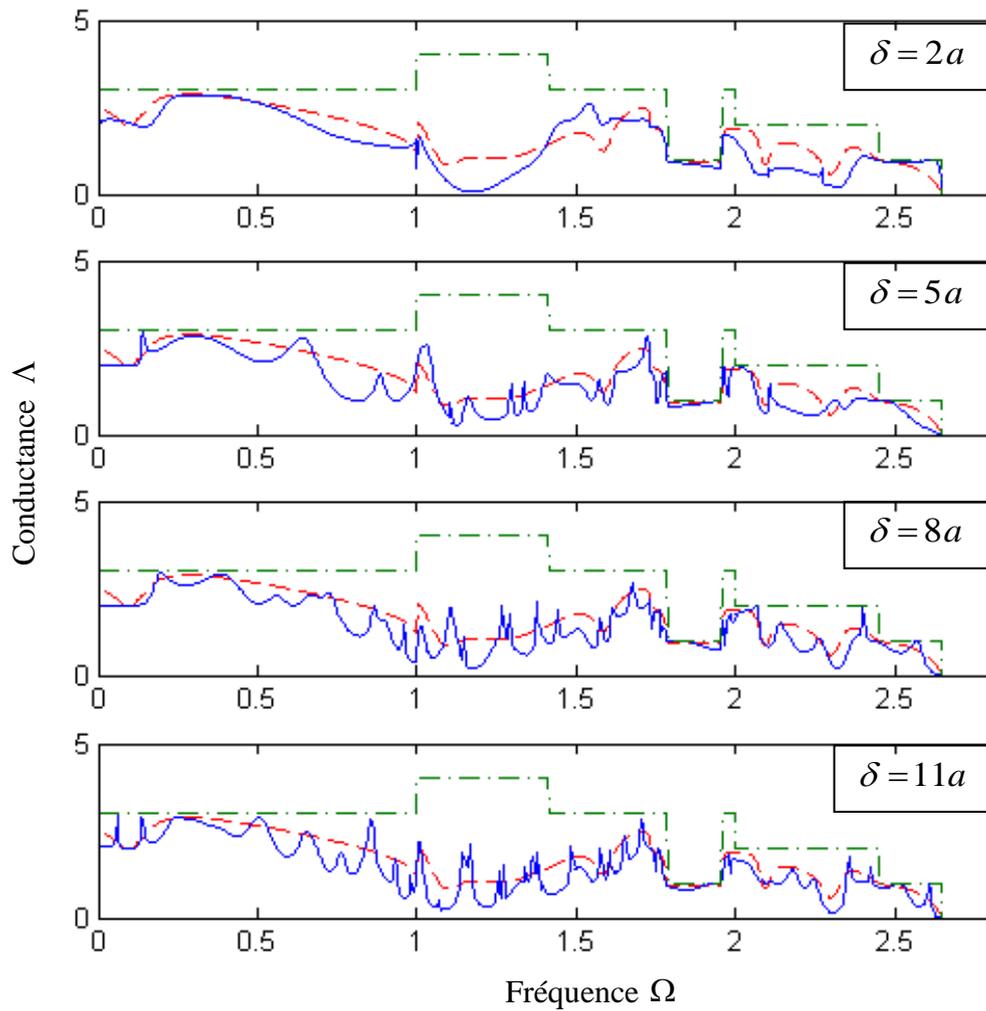


Fig. 3.19 : Probabilités de transmission totale en fonction de la fréquence Ω pour deux défauts interstitiels de masse $m' = 1.5 m$, séparés par une distance δ variable. Les courbes en tirets montrent la conductance dans le cas d'un défaut isolé de même masse ; l'histogramme en tirets points se rapporte à la conductance idéale.

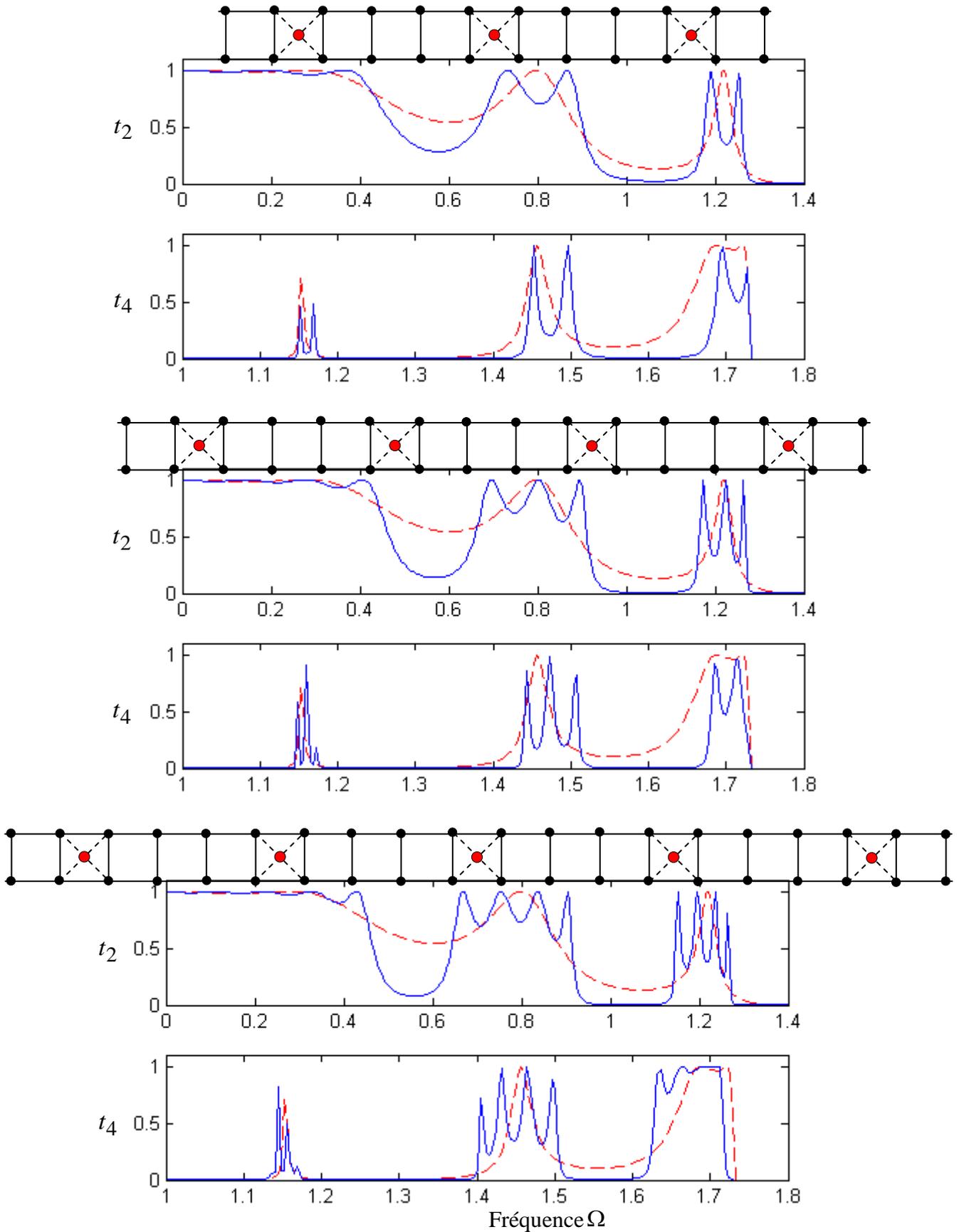


Fig. 3.20 : Probabilité de transmission en fonction de la fréquence normalisée Ω dans les modes acoustique 2 et optique 4 pour trois séquences de défauts interstitiels. La structure est montrée en haut de chaque figure. La courbe en tirets se rapporte à deux défauts isolés séparés par la même distance $\delta = 4a$.

3.4.3 – Défaut lacunaire

La Fig. 3.21 montre les résultats numériques relatifs à la conductance dans le cas d'un défaut lacunaire de largeur L variable (la structure est schématisée au dessus de la figure). Ce spectre illustre le comportement type d'un guide d'onde quasi-3D perturbé. Pour des raisons de simplicité, l'étendue du défaut est limitée. Néanmoins, les résultats doivent être qualitativement similaires pour des défauts de plus grandes largeurs ainsi que pour des guides d'ondes d'épaisseur plus importante [78]; la seule différence est que la densité des oscillations dans le spectre de transmission totale augmente avec le nombre de modes propagants et la résolution graphique devient plus compliquée.

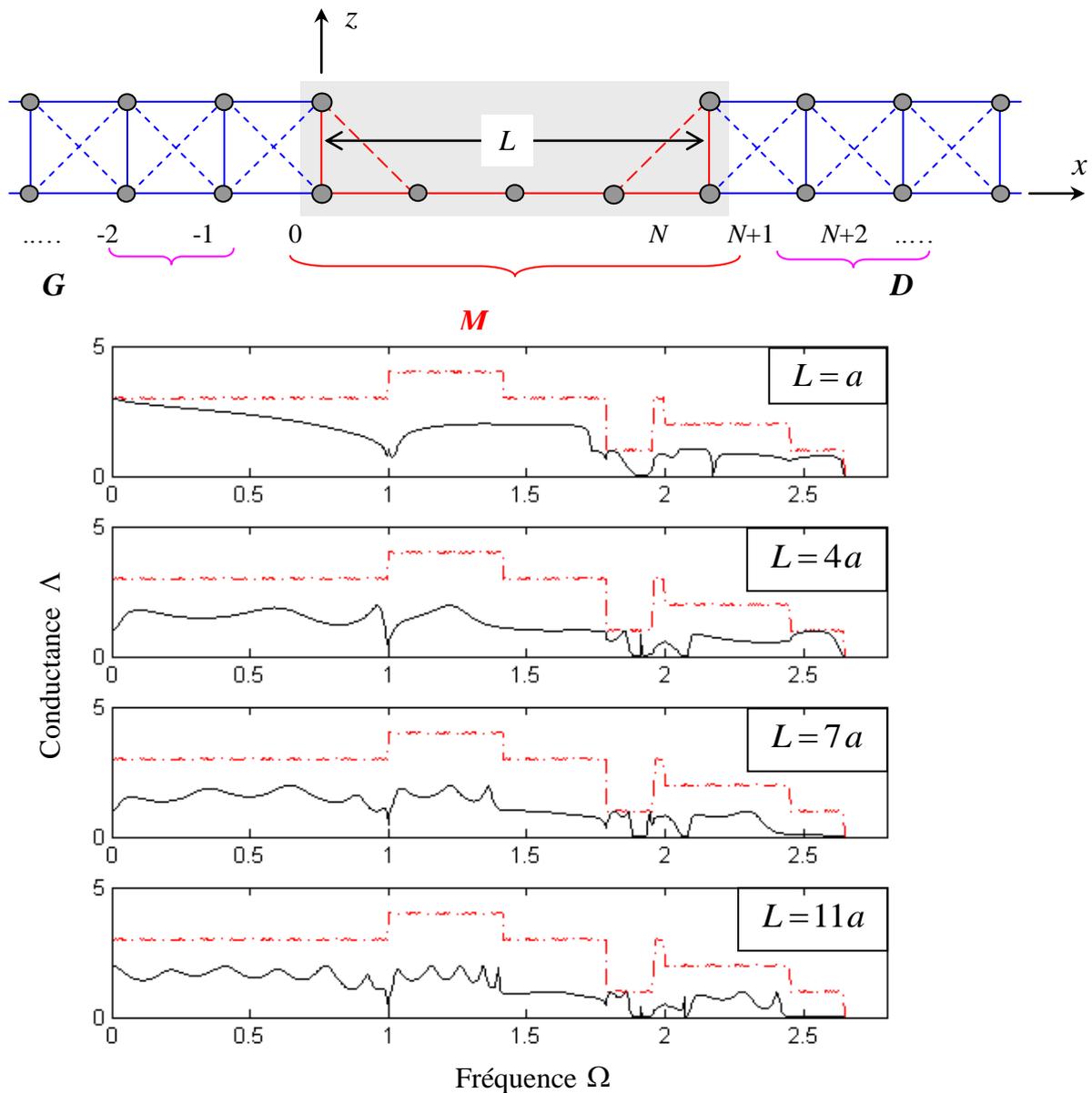


Fig. 3.21 : Evolution de la probabilité de transmission totale due à la diffusion par un défaut lacunaire de largeur δ sous un angle d'incidence nul. L'histogramme en tirets points se rapporte à la conductance idéale.

Pour comparaison nous montrons aussi la conductance du guide d'onde non perturbé (en tirets points sur la figure). Comme attendu, la résistance opposée à la propagation des phonons par le défaut est toujours proportionnelle à l'étendue de ce dernier. En conséquences, le nombre d'oscillations de Fabry-Pérot est plus élevé et le nombre de résonances aussi, comme souligné précédemment.

3.7 - Conclusion

L'existence ou l'introduction d'un diffuseur (ou défaut) dans une structure modifie considérablement ses propriétés physiques et vibrationnelles, particulièrement, par la création de nouveaux états localisés et par une diffusion des phonons dans le volume [21,24,57] et à la surface du matériau [20,21,58,78,85]. Dans les spectres de transmission ou de conductance, cette influence se traduit généralement par des diminutions plus ou moins brutales d'amplitudes provoquées par les résonances de type Fano attribuées à la présence d'états résonants induits par le défaut et/ou à des oscillations de Fabry-Pérot issues des multiples ondes diffusées dans la région du défaut.

Les fréquences de résonance dépendent intimement de la valeur de la masse de l'impureté : les défauts lourds donnent naissance à des états localisés dans la plage des fréquences acoustiques alors que les défauts légers engendrent des modes locaux dont les fréquences peuvent parfois être supérieures aux fréquences maximales des modes optiques. Les positions de résonances se déplacent le long de l'axe des fréquences. Ces déplacements ont lieu à basses fréquences pour les défauts lourds et inversement pour les défauts légers. De plus, les spectres de transmission dans le cas du défaut lourd sont toujours plus affectés que ceux du défaut léger à cause de l'inertie individuelle de la masse des atomes perturbateurs. Conséquemment, la résistance opposée au passage de l'onde par ces derniers est beaucoup plus importante et l'onde ne réussit à traverser la zone perturbée du défaut qu'après un temps relativement long.

Comme dans le cas du défaut de masse, l'influence des constantes de force de liaison sur le spectre de transmission se résume également par un déplacement des pics de résonance mais cette fois dans le sens contraire, *i. e.* vers les hautes fréquences. La bande des pics de résonance s'élargit avec les différentes constantes de raideur symbolisant les forces de liaison. Le spectre de transmission est, d'autre part, caractérisé par une baisse plus ou moins importante d'amplitude. Par ailleurs, nous pouvons obtenir des courbes où la résonance disparaît totalement du spectre. Pour le défaut léger, l'onde devient alors transmise quasi totalement à faible fréquence.

Le changement de l'angle d'incidence agit directement sur les étendues des plages de propagation et les fait se déplacer vers les hautes fréquences. Plusieurs modes se recouvrent alors sur un intervalle de fréquence qui diminue progressivement avec l'angle pour

disparaître, parfois, à certaines valeurs caractéristiques. Dans cette zone de couplage, les modes interagissent fortement. Ceci explique les rapides variations du spectre enregistrées dans ces régions. Cependant, la somme des coefficients de transmission et de réflexion est toujours égale à l'unité conformément à la relation de conservation de l'énergie traduite par l'équation $\sum_{\nu} |r_{\nu\bar{\nu}}| + \sum_{\nu} |t_{\nu\bar{\nu}}| = 1$.

Chapitre 4

Etats d'Energie Localisés au Voisinage du Défaut

4.1 - Introduction

En superposant des modes normaux de vecteurs d'onde \vec{q} proches, il est possible de créer des paquets d'onde correspondant à une amplitude de vibration localisée dans l'espace. Ces "paquets de modes normaux" peuvent se propager dans le cristal et ainsi transférer de l'énergie thermique. Dans le langage des phonons, cela revient à considérer des "phonons localisés" dans une région de dimension faible par rapport aux dimensions macroscopiques et grande par rapport aux distances inter atomiques. En fait, ces "phonons localisés" correspondent à la superposition de modes normaux de vecteurs \vec{q} contenus dans un intervalle $\Delta\vec{q}$. Chaque mode normal correspondant à un nombre d'occupation de phonon bien défini. La perturbation du milieu associée à ces phonons est localisée dans un intervalle

$$\Delta x \approx \frac{\hbar}{\Delta p} \approx \frac{\hbar}{\hbar \Delta q} \approx \frac{1}{\Delta q}. \quad (4.1)$$

Dans un cristal parfaitement harmonique, les modes normaux (phonons) sont des états stationnaires de l'hamiltonien du cristal. Ainsi si une distribution de phonons ayant une

vitesse de groupe non nulle se crée, celle-ci ne sera pas modifiée au cours du temps lors de sa propagation dans le cristal. C'est une situation analogue à celle d'un paquet d'onde se propageant dans un milieu sans perte (par exemple une onde sur une corde). Conséquemment, l'énergie thermique transférée par unité de temps et de surface est non nulle même pour un gradient de température nul.

En revanche, la conductibilité thermique du réseau n'est pas infinie pour des raisons liées aux imperfections du cristal :

- impuretés, défauts structuraux, présences d'isotopes qui brisent la symétrie de translation
- surface de l'échantillon dont l'effet devient non négligeable lorsque le libre parcours moyen des phonons (voir annexe) est de l'ordre de grandeur des dimensions de l'échantillon.

Cependant, même dans un cristal parfait de dimension infinie, les états stationnaires de l'hamiltonien harmonique ne sont pas des états stationnaires de l'hamiltonien réel du cristal qui contient des termes anharmoniques. Ainsi, une superposition de phonons correspondant à un nombre d'occupation bien défini pour chaque mode se modifiera au cours du temps. C'est le phénomène intrinsèque qui conduit à une conductibilité finie.

Notre objectif est de déterminer ces états localisés induits par le défaut pour interpréter les structures apparaissant dans les spectres de transmission et de conductance résultant de la diffusion.

4. 2 - Principe de calcul

La présence d'états localisés du défaut fait apparaître des résonances de type Fano dans les courbes de transmission. Le calcul et l'étude d'un grand nombre de ces courbes ainsi que le mouvement des atomes aux fréquences de résonance permettraient sans doute de classer et de caractériser les modes locaux de vibration. Il est aussi possible d'obtenir des informations sur ces modes en imposant au problème des conditions aux limites plus adaptées à l'étude des modes localisés au lieu de le traiter comme un problème de diffusion.

Un mode de vibration de la région du défaut dont la fréquence tombe en dehors du continuum de propagation est alors localisé, ce qui signifie que :

$$\lim_{i \rightarrow \infty} u^i = \lim_{i \rightarrow -\infty} u^i = 0, \quad (4.2)$$

et les déplacements des atomes sont symétriques par rapport à l'origine :

$$u^i = u^{-i}. \quad (4.3)$$

Nous réécrivons les équations dynamiques pour les atomes de la région perturbée sous ces nouvelles conditions. Après quelques transformations, les énergies des états localisés sont déterminées en annulant le déterminant du produit des matrices défaut \tilde{D} et raccordement $[R]$, i.e. :

$$\text{Det} \left\{ \left[\tilde{D}(\Omega, \phi_y, r_2, \lambda, Z) \right] [R] \right\} = 0. \quad (4.4)$$

Les valeurs Ω qui satisfont l'équation de compatibilité précédente sont les fréquences, réelles, des modes propres de vibration des états liés. En effet, si on se place à une fréquence où existent un ou plusieurs modes propageants et qu'on effectue le même calcul sous des conditions de bord similaires pour tous les modes, les résultats obtenus sont complexes. Les valeurs $\Omega = \Omega_r + i\Omega_\theta$ qui satisfont l'équation (4.4) caractérisent toujours les états localisés, mais le fait qu'elles soient complexes traduit leur nature résonante ; à cause de la présence des modes propageants auxquels ils sont couplés, ces états ont une durée de vie finie dont la partie imaginaire de la fréquence de vibration indique la mesure. Concrètement, plus la quantité Ω_θ est éloignée de l'axe réel, plus l'amplitude de l'onde plane diminue rapidement en fonction du temps. En d'autres termes, la largeur de la résonance de Fano, à laquelle on a accès par des mesures de diffusion, est aussi une mesure du temps de vie de l'état résonant. Conséquemment, la partie imaginaire Ω_θ de la fréquence qui annule le déterminant (4.4) doit être extrêmement petite de telle sorte que la partie réelle Ω_r se confonde avec la fréquence de transmission nulle. Dans le cas contraire, ces deux fréquences n'ont rien avoir l'une avec l'autre, le zéro du déterminant est alors approximé par la fréquence correspondant au maximum de la transmission.

4.3 – Résultats et discussions

Les branches de phonons Rayleigh [43,87], engendrées par la brisure de symétrie suivant la direction normale à la surface, représentent les courbes de dispersion des phonons localisés induits par le défaut. La résolution numérique de l'équation de compatibilité (4.4) permet de trouver leurs fréquences en fonction de l'angle d'incidence. En pénétrant dans le continuum de propagation, les phonons Rayleigh interagissent fortement avec lui. Ce qui donne

naissance à des résonances issues de la dégénérescence des modes du défaut avec ceux du continuum. Naturellement, les fréquences de résonance dépendent des valeurs des constantes de force, de l'angle d'incidence de l'onde plane et de la nature du défaut.

Les Figures 4.1 à 4.3 présentent les résultats des états localisés relatifs à quelques défauts simples de substitution, interstitiel et lacunaire étudiés lors de la diffusion au chapitre précédent. La région hachurée, délimitant la bande passante du système, est donnée par la relation (2.8) pour des solutions itinérantes des phonons de volume du guide d'onde parfait [voir § 2.2.5 du chapitre 2]. La présence des petites fenêtres [25], interdites aux phonons de volume, est engendrée par la superposition des bandes passantes individuelles des six modes de vibration qui caractérisent le double plan.

4. 3. 1 - Défaut de substitution

Sur la Fig. 4.1a, sont indiquées les branches de phonons Rayleigh (en tirets) pour différentes masses dans le cas du défaut de substitution. Pour un angle d'incidence donné, les fréquences de résonance de type Fano issues du couplage continuum-états discrets du défaut se déterminent par les intersections de ces branches avec la verticale issue de l'angle ϕ_y . Notons que les positions des résonances se déplacent vers les basses fréquences quand la masse du défaut augmente, en conformité avec la relation $\omega = \sqrt{k/m}$ donnant la fréquence de vibration d'un oscillateur harmonique isolé. L'ensemble des résultats obtenu est aussi en conformité avec ceux obtenus lors de la diffusion. L'évolution de ces courbes en fonction de la constante de rigidité λ dans la région perturbée (Fig. 4.1b) indique, au contraire, que les fréquences de résonance augmentent avec λ . Ainsi, la constante de rigidité λ joue-t-elle un rôle inverse de celui de la masse. Ce phénomène a déjà été observé par J. Szeftel et ses collaborateurs [88].

Défaut de masse

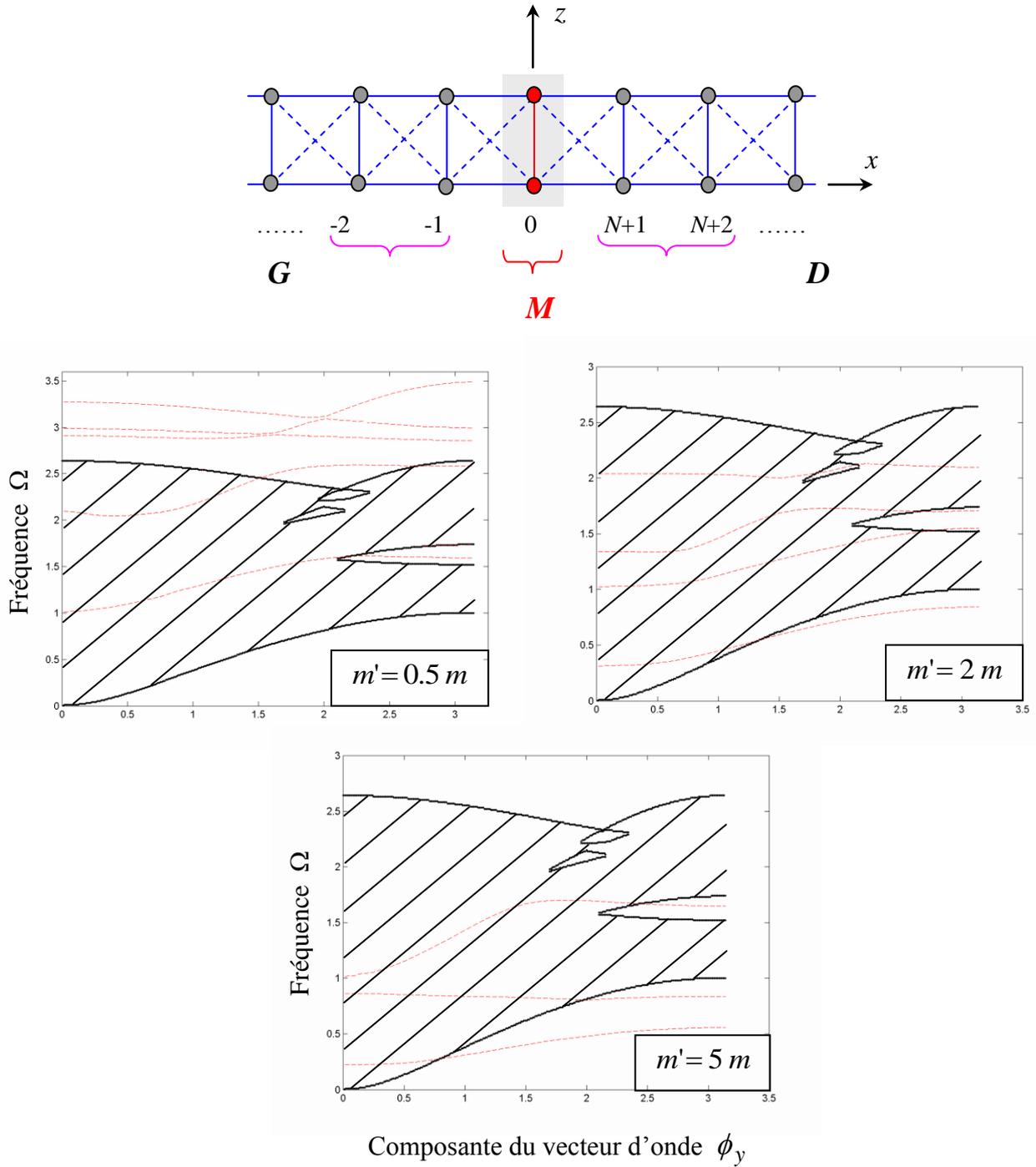


Fig. 4. 1a : Modes localisés (en tirets) d'un défaut de substitution pour une masse de défaut différente de celle des atomes du réseau (défaut de masse). La région hachurée se rapporte aux limites de la bande passante en volume du double plan pour une constante de réseau $r_2 = 0.5$.

Défaut de ressort

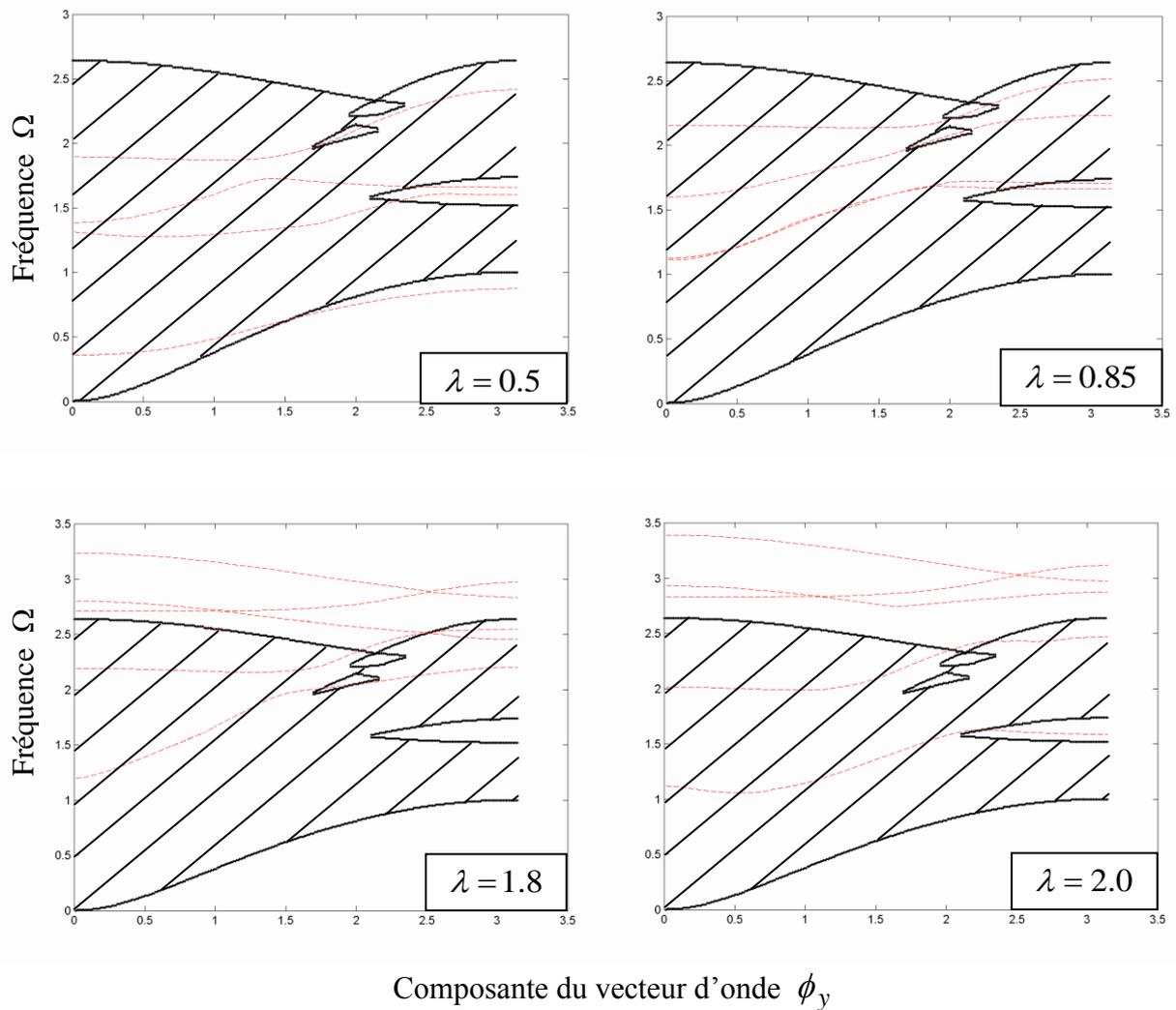


Fig. 4.1b : Branches de dispersion des modes localisés (en tirets) d'un défaut de substitution de masse $m'=m$ pour différentes valeurs de la constante de rigidité λ (défaut de ressort). La région hachurée se rapporte aux limites de la bande passante en volume du double plan pour un paramètre de réseau $r_2 = 0.5$

4.3.2 - Défaut interstitiel

Dans ce cas de défaut, le nombre de branches d'états localisés devient plus important à cause de l'étendue du défaut composé de cinq atomes (voir schéma de la structure représentée en haut de la Fig. 4.2 pour un seul site interstitiel occupé) et des nombreuses interférences dans cette région. La matrice de défaut possède déjà une dimension (27X39) relativement importante.

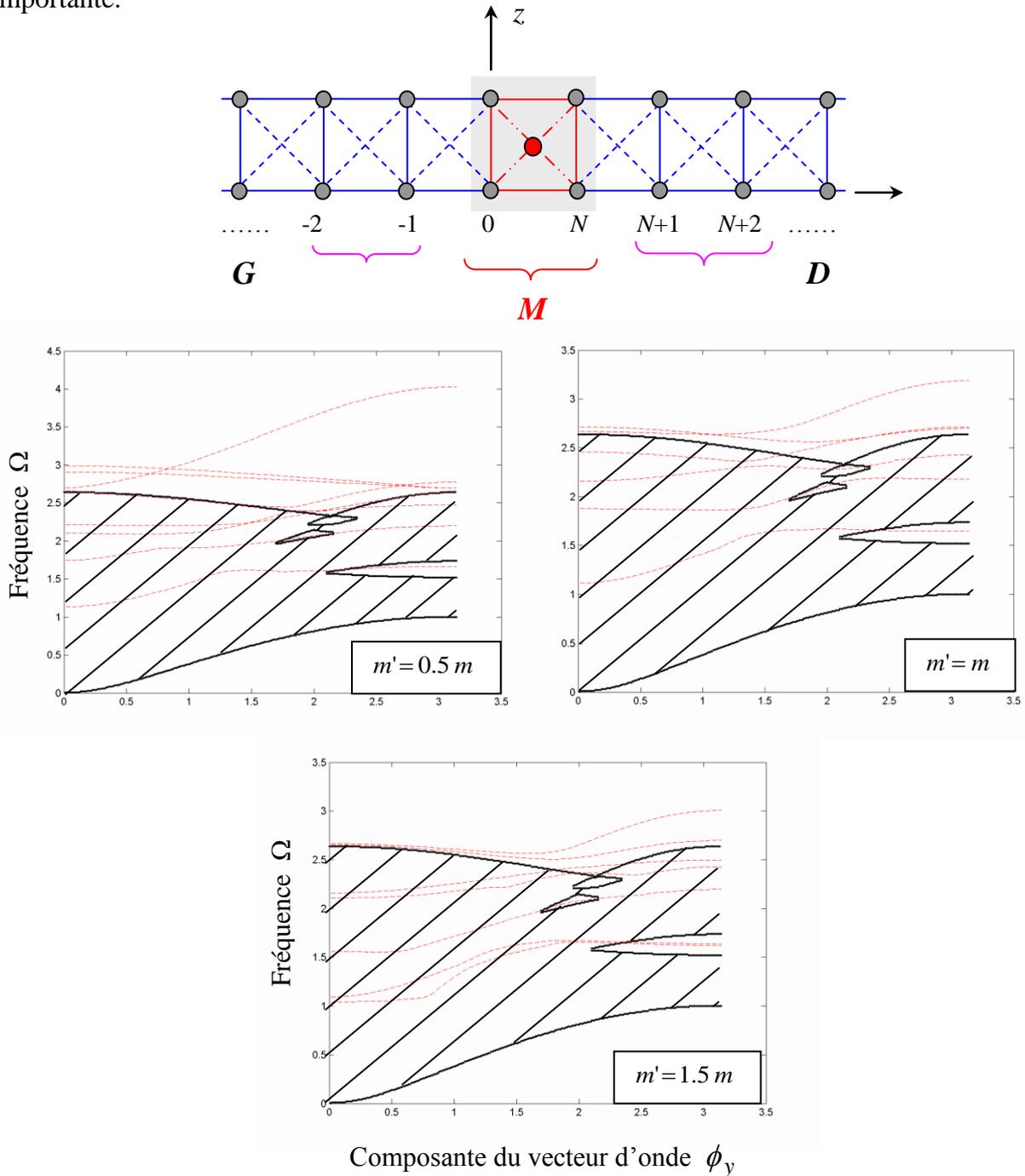


Fig. 4. 2 : Branches de dispersion des états localisés (en tirets) d'un défaut interstitiel pour différentes masses de défaut avec une constante de rigidité $\lambda = 1.15$. La région hachurée représente la bande passante du double plan pour une constante de réseau $r_2 = 0.5$

4.3.3 - Défaut lacunaire

La figure 4.3 s'intéresse à l'évolution des branches des états localisés en fonction de la largeur du défaut réticulaire en considérant la même constante de rigidité $\lambda = 1.2$ dans la région perturbée. Le nombre d'états localisés augmente avec la largeur du défaut à cause de la multitude d'ondes qui interfèrent dans la zone perturbée.

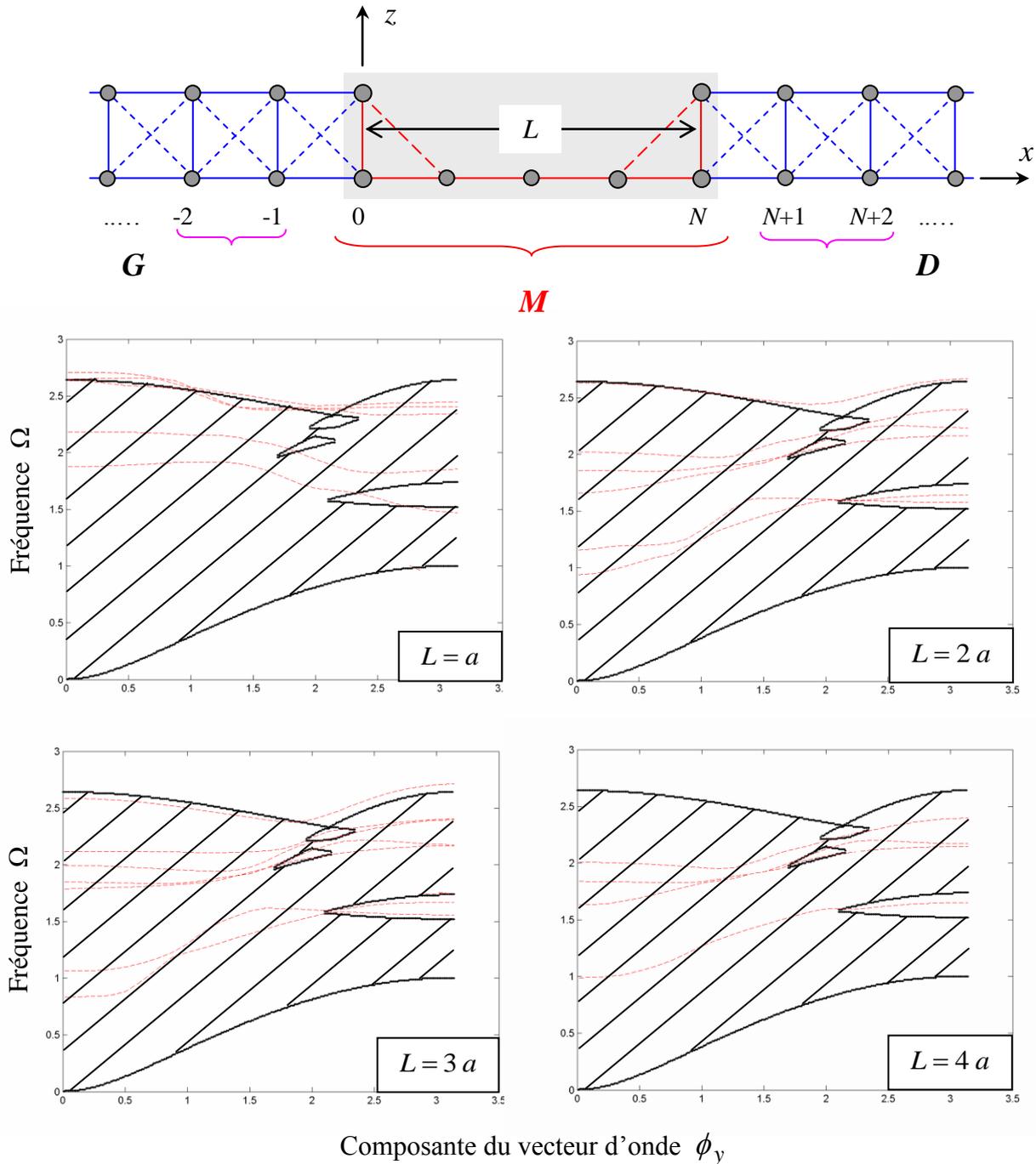


Fig. 4. 3 : Branches de dispersion des modes localisés (en tirets) d'un défaut lacunaire pour différentes largeur L de défaut dans le cas d'une constante de rigidité $\lambda = 1.2$. La région hachurée représente la bande passante du double plan pour une constante de réseau $r_2 = 0.5$

4.4 – Conclusion

La présence ou l'introduction d'un défaut réticulaire dans un cristal modifie considérablement ses propriétés mécaniques et vibrationnelles par une diffusion d'onde de vibration, en volume et en surface. De tels effets peuvent avoir une influence substantielle sur diverses caractéristiques, en particulier, dynamiques, thermodynamiques et cinétiques de la matière. Les états localisés induits par le défaut donnent alors lieu à des résonances dans le spectre de transmission en interagissant avec le continuum de propagation. Par contre, l'inverse n'est pas toujours vrai : il arrive très fréquemment, en effet, que les états prétendument séparés interagissent entre eux et avec le continuum de manière telle qu'aucune structure claire ne soit visible dans les courbes de transmission.

Par ailleurs, la connaissance des modes évanescents du défaut, se mouvant perpendiculairement à la direction de propagation de l'onde incidente, est nécessaire pour une description plus complète de la diffusion par les systèmes mésoscopiques désordonnés. Néanmoins, ces modes ne transportent aucune énergie. L'étude de l'interaction des phonons avec le défaut réticulaire [1-8] présente un intérêt considérable puisque les caractéristiques cinétiques dans les cristaux ou aux interfaces peuvent être observées expérimentalement. De plus, la méthode développée jette un éclairage nouveau sur les états résonants étudiés car elle permet d'interpréter en termes de temps de vie la largeur du pic de résonance.

Contrairement à ce que peuvent laisser croire les cas traités précédemment, le problème de l'existence et du nombre d'états localisés créés par un défaut quelconque est loin d'être trivial. Dans le monde des phonons, il est en fait l'équivalent du problème électronique de l'existence et du nombre d'états liés créés par un potentiel quelconque.

Chapitre 5

Densités Spectrales et Densités d'Etats des Phonons

5.1 - Introduction

La définition de la "densité d'états" est une fonction de l'énergie, notée $\rho(E)$, telle que pour toute fonction f ne dépendant que de l'énergie, on ait $\langle f \rangle = \int f(E) \rho(E) dE$. Or, en considérant les états d'une bande $E(\vec{k})$ repérés par leur vecteur d'onde \vec{k} , avec des conditions aux limites périodiques et un espace de dimension donnée d , on a aussi

$\langle f \rangle = \left(\frac{L}{2\pi}\right)^d \int d^d k f[E(\vec{k})]$ qu'on peut réécrire sous la

forme $\langle f \rangle = \left(\frac{L}{2\pi}\right)^d \int d^d k \int dE f(E) \delta[E - E(\vec{k})]$. On en extrait la formule générale de la densité d'états

$$\rho(E) = \sum_n \left[\frac{L}{2\pi}\right]^d \iiint d^d k \delta[E - E(\vec{k})], \quad (5.1.1)$$

où on a rajouté l'indice n qui désigne chacune des bandes contribuant. Elle présente donc une singularité à chaque minimum de bande E_{\min} .

Dans l'hypothèse d'une masse effective isotrope, $E(\vec{k}) = E_0 + \hbar^2 k^2 / 2m^*$ et d'une dégénérescence g_s de spin seulement, on obtient:

$$\mathbf{3D} \quad \rho_{3D}(E) = V \frac{g_s}{4\pi^2} \frac{(2m^*)^{3/2}}{\hbar^3} \sqrt{E - E_0} ; \quad (5.1.2)$$

$$\mathbf{2D} \quad \rho_{2D}(E) = S \frac{g_s}{2\pi} \frac{m^*}{\hbar^2} Y(E - E_0) ; \quad (5.1.3)$$

$$\mathbf{1D} \quad \rho_{1D}(E) = L \frac{g_s}{2\pi} \frac{(2m^*)^{1/2}}{\hbar} \frac{1}{\sqrt{E - E_0}} . \quad (5.1.4)$$

Alors qu'à trois dimensions dans un cristal massif, la densité d'états est une fonction continue variant comme la racine carrée de l'énergie, à une dimension elle varie comme l'inverse de la racine carrée de l'énergie. On remarquera que la densité d'états est nécessairement proportionnelle au "volume" de matériau envisagé (V , S ou L , caractéristique de la dimensionnalité du système; de façon générale, L^d). Ensuite, par un simple argument d'équation aux dimensions (au sens, unité à utiliser, en l'occurrence la densité d'états est un nombre par intervalle d'énergie), on s'attend à ce que la densité d'états soit proportionnelle à $\left[L \sqrt{2mE/\hbar} / E \right]^d$ et seul le facteur numérique sans dimension reste à calculer.

Les formes de ces densités d'états ont des conséquences sur toutes les propriétés physiques (électroniques, optiques, magnétiques...) du système étudié.

5. 2 - La matrice de Green $G(\omega^2)$

Si la matrice dynamique D constitue l'outil de base pour l'étude des états vibratonnaux, certaines grandeurs physiques, comme les densités spectrales, peuvent être calculées plus simplement à l'aide de la matrice $G(\omega^2)$ des fonctions de Green [75,86] :

$$G(\omega^2) = \left[\omega^2 I - D \right]^{-1}. \quad (5.2.1)$$

Pour expliciter les éléments des matrices D et $G(\omega^2)$, de rang $3N$, considérons la base des $3N$ vecteurs $|e_n\rangle$ définis comme suit :

$$|e_n\rangle = \begin{pmatrix} \vdots \\ \delta_{nm} \\ \vdots \end{pmatrix} \Big|_m \quad \text{soit} \quad |e_m\rangle = \begin{pmatrix} \text{---} & m & \text{---} \\ \dots & \delta_{nm} & \dots \end{pmatrix} \quad \text{avec} \quad n, m = 1, \dots, 3N.$$

Désignons leur produit scalaire par $\langle e_n | e_m \rangle = \sum_i \delta_{ni} \delta_{im}$.

Alors, la relation d'orthonormalité et la matrice identité sont simplement notées :

$$\langle e_n | e_m \rangle = \delta_{nm}, \quad (5.2.2)$$

$$I = \sum_k |e_k\rangle \langle e_k|. \quad (5.2.3)$$

Car, en tenant compte de la relation (A2), les éléments de $\sum_k |e_k\rangle \langle e_k|$ dans la base des vecteurs $|e_n\rangle$ s'expriment par :

$$\begin{aligned} |e_n\rangle \left(\sum_k |e_k\rangle \langle e_k| \right) |e_m\rangle &= \sum_k \langle e_n | e_k \rangle \langle e_k | e_m \rangle \\ &= \sum_k \delta_{nk} \delta_{km} = \delta_{nm} \end{aligned}$$

Soient $|u_p\rangle$ ($p=1, \dots, 3N$) les vecteurs propres de la matrice dynamique D et ω_p^2 les valeurs propres correspondantes. La base formée de ces vecteurs propres est normalisée ($\langle e_n | e_m \rangle = 1$). Nous pouvons, de ce fait, écrire :

$$\langle u_{p'} | D | u_p \rangle = \omega_p^2 \langle u_{p'} | u_p \rangle.$$

Comme la matrice D exprimée dans la base principale est diagonale, le produit scalaire entre les vecteurs $|u_{p'}\rangle$ et $|u_p\rangle$ est nul dans le cas où $|u_{p'}\rangle \neq |u_p\rangle$. D'où l'égalité :

$$\langle u_{p'} | u_p \rangle = \delta_{pp'}. \quad (5.2.4)$$

En reliant les deux bases $|e_n\rangle$ et $|u_p\rangle$ par les matrices de passage B et B^+ (voir annexe A1) et en tenant compte de la symétrie de la matrice dynamique D , les éléments de $G(\omega^2)$ s'écrivent :

$$\langle e_n | G(\omega^2) | e_m \rangle = \sum_p \sum_{p'} \langle e_n | u_p \rangle^* \frac{\delta_{pp'}}{(\omega^2 - \omega_p^2)} \langle e_m | u_p \rangle \quad (5.2.5)$$

$$\langle e_n | G(\omega^2) | e_m \rangle = \sum_p \frac{\langle e_n | u_p \rangle^* \langle e_m | u_p \rangle}{(\omega^2 - \omega_p^2)}.$$

5.3 - Densité spectrale du système

Désignons par $\nu(\omega)$ le spectre de fréquence (densité d'états) du système :

$$\nu(\omega) = \sum_p \delta(\omega - \omega_p). \quad (5.2.6)$$

La quantité physique $\nu(\omega)$ représente le nombre d'états vibrationnels dont la fréquence est égale à ω . Comme la matrice B est unitaire, $\nu(\omega)$ peut être exprimée de la façon suivante :

$$\nu(\omega) = \frac{1}{3N} \sum_n \nu_n(\omega), \quad (5.2.7)$$

où $\nu_n(\omega)$ est la densité spectrale de vibration atomique. Elle est définie par :

$$\nu_n(\omega) = \sum_p \left| \langle e_n | u_p \rangle \right|^2 \delta(\omega - \omega_p) \quad (5.2.8)$$

Physiquement, $\nu_n(\omega)$ désigne la somme des carrés des amplitudes de vibration de tous les modes propres de fréquence $\omega_p = \omega$ auxquels est soumis un atome qui se déplace suivant une direction cartésienne donnée.

$$\lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} \frac{\varepsilon/\pi}{(\omega^2 - \omega_p^2) + \varepsilon^2} = \delta(\omega^2 - \omega_p^2); \quad (5.2.9)$$

$$v_n(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \text{Im} \langle e_n | G(\omega^2) | e_n \rangle. \quad (5.2.10)$$

Rappelons que les valeurs propres ω_p^2 de la matrice dynamique D représentent les pôles des éléments de $G(\omega^2)$. Afin d'éviter toute divergence dans les calculs, une partie imaginaire infiniment petite ε est ajoutée à la variable ω^2 . Ce qui engendre la densité spectrale :

$$v_n(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \left\{ \text{Im} \langle e_n | G(\omega^2 + j\varepsilon^+) | e_n \rangle \right\}. \quad (5.2.11)$$

L'élément $\langle e_n | G(\omega^2 + j\varepsilon^+) | e_n \rangle$ désigne la diagonale de la matrice $G(\omega^2 + j\varepsilon^+)$

5.4 - Densité spectrale dans la région de volume

Comme la région de volume du double plan possède une structure diatomique à deux atomes par maille élémentaire, le système linéaire (2.8) établi pour les deux atomes de volume du réseau parfait suffit amplement à décrire les différentes densités spectrales associées aux modes vibrationnels d'un réseau infini de même structure. Le calcul peut être mené à l'aide de l'opérateur de Green $G(\phi_y, \omega^2 + j\varepsilon)$ en utilisant la méthode de raccordement [75] :

$$G(\phi_y, \omega^2 + j\varepsilon) = \left[(\omega^2 + j\varepsilon)I - D(\phi_y, r_2, \lambda, Z) \right]^{-1}, \quad (5.2.12)$$

où $D(\phi_y, r_2, \lambda, Z)$ est la matrice dynamique [de dimension (6X6)] du réseau parfait.

Pour déterminer la densité spectrale $v_n(\omega)$ ($n = x, y, z$), on remplace le complexe Z par $\exp(jk_z a)$ où a représente le paramètre de maille du réseau cubique simple puis intégrer, en utilisant la relation (5.2.11), sur la première zone de Brillouin 3D :

$$v_n(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} \left\{ \sum_{\substack{ZB \\ (3D)}} \text{Im} \langle e_n | G(Z_\nu, k_z, \omega^2 + j\varepsilon) | e_n \rangle \right\}. \quad (5.2.13)$$

La symétrie de la région de volume de la structure donne lieu à des densités spectrales identiques suivant les trois directions cartésiennes de l'espace. Cette caractéristique permet

d'identifier, à une constante près, les densités spectrales $v_n(\omega)$ à la densité d'états vibrationnelle du réseau cubique simple illimité.

Une deuxième méthode de calcul de densités spectrales de volume [23] consisterait à utiliser la matrice $G(Z, \omega^2 + j\varepsilon)$, définie précédemment par l'équation (5.2.12), en identifiant pour chaque point (\vec{k}, ω) les différents modes vibrationnels de volume par les n_v triplets (\vec{k}, ω, Z_v) en prenant $Z_v = 1$. Dans ce cas, l'intégrale dans (5.2.13) est remplacée ici par une intégrale portant sur les vecteurs d'onde \vec{k} de la première zone de Brillouin du réseau réciproque 2D puis sommée sur les n_v lorsque $Z_v = 1$. Les valeurs de Z_v sont déterminées préalablement par l'équation de compatibilité (2.8).

$$v_n(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} \left\{ \sum_v \sum_{\substack{ZB \\ (3D)}} \text{Im} \langle e_n | G(Z_v, k_z, \omega^2 + j\varepsilon) | e_n \rangle \right\}. \quad (5.2.14)$$

Cette deuxième méthode (2D+1D) offre l'avantage d'être plus économique en temps de calcul et donne des résultats assez proches de ceux obtenus par intégration sur la première zone de Brillouin 3D. Ces résultats sont aussi en bon accord avec la densité spectrale déterminée par la méthode de diagonalisation directe [43,72].

5.5 - Résultats et discussions

5.5.1 - Défaut de substitution

Les figures 5.1 et 5.2, se rapportant au défaut simple de substitution, donnent respectivement les densités spectrales suivant les trois directions de l'espace et la densité d'états de chacun des deux atomes composant le défaut (schématisé en haut de la figure 5.1). Deux masses de défaut, légère $m' = 0.5 m$ (en trait continu) et lourde $m' = 2.5 m$ (en pointillés), sont considérées en imposant une même constante de rigidité $\lambda = 0.8$. Par ailleurs, nous montrons sur les figures les densités spectrales ainsi que la densité d'états (en tirets points) pour les deux mêmes atomes dans le cadre du réseau parfait pour mettre en évidence la perturbation introduite par le défaut.

Comme déjà mentionné précédemment, les résonances se produisent toujours aux basses fréquences pour les défauts lourds ; d'où le confinement des densités relatives à ce type de défaut dans la plage des basses fréquences [82,89] (Fig. 5.1 et 5.2), indépendamment

de la direction. Ce comportement se retrouve, par ailleurs, pour les autres types de défaut étudiés.

Les d'atomes (A) et (B), situés l'un au dessus de l'autre (voir schéma de la structure en haut de la Fig. 5.1), présentent une grande similitude dans leur spectre suivant les axes x et y . A cause de l'extension finie du cristal suivant le troisième axe z , le spectre correspondant à cette direction diffère. La courbe du défaut lourd (courbe en pointillés) se caractérise par une résonance prononcée aux fréquences $\Omega \approx 0.9$ suivant x et z , et $\Omega \approx 1.2$ suivant y . Dans le cas du défaut léger (en continu), en revanche, le nombre de résonances augmente (voir particulièrement la courbe des densités d'états s'y rapportant en Fig. 5.1). Ces résonances sont dues aux interactions des états localisés induits par le défaut avec le continuum de propagation (voir les branches de dispersion des états localisés au chap. 4).

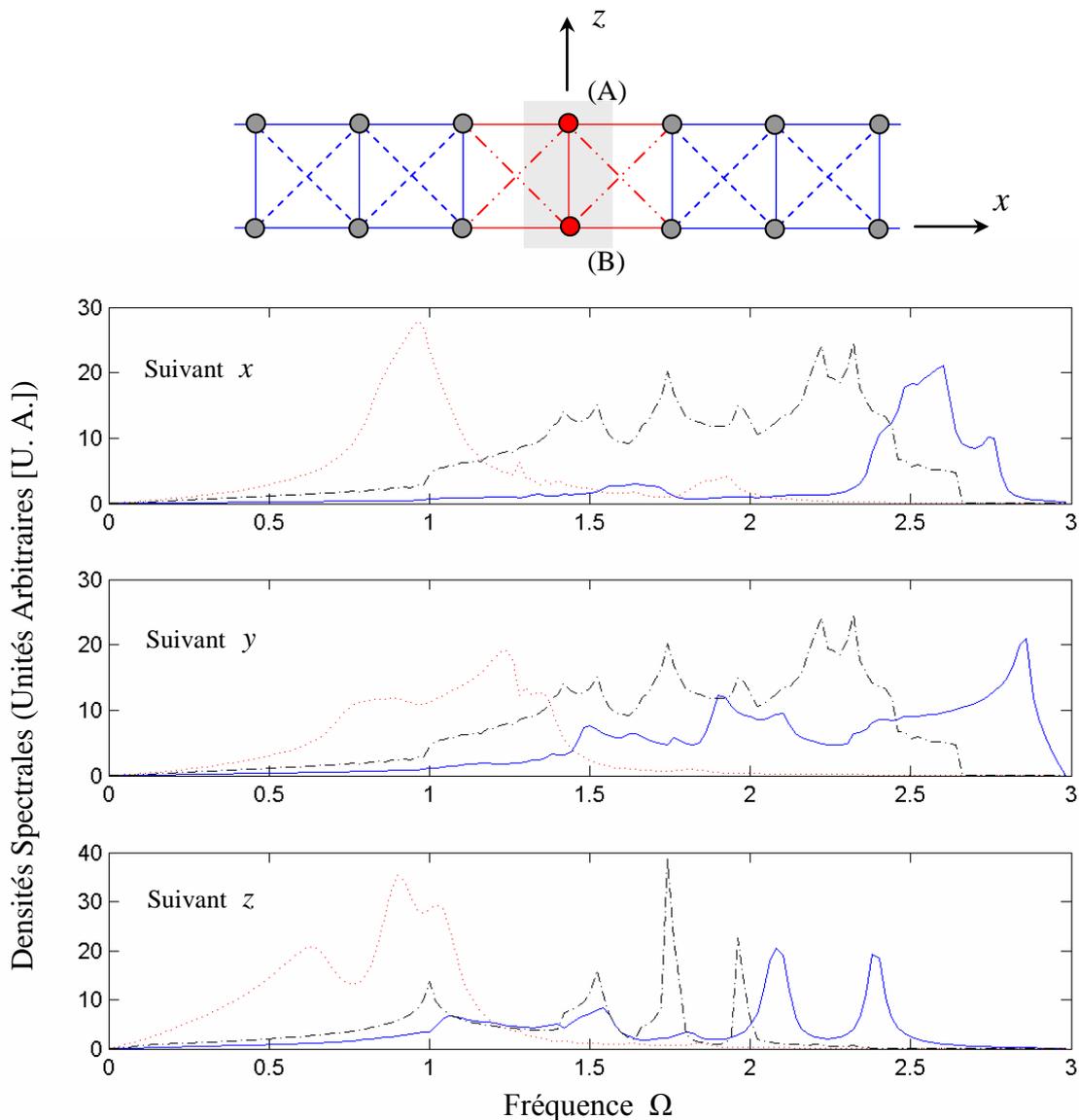


Fig. 5.1 : Densités spectrales des phonons suivant les trois directions de l'espace pour les atomes de substitution de masses $m'=0.5m$ en continu et $m'=2.5m$ en pointillés pour une valeur de $\lambda = 0.8$. La courbe en tirets points se rapporte à la densité spectrale des phonons de volume du guide d'onde parfait suivant les mêmes directions.

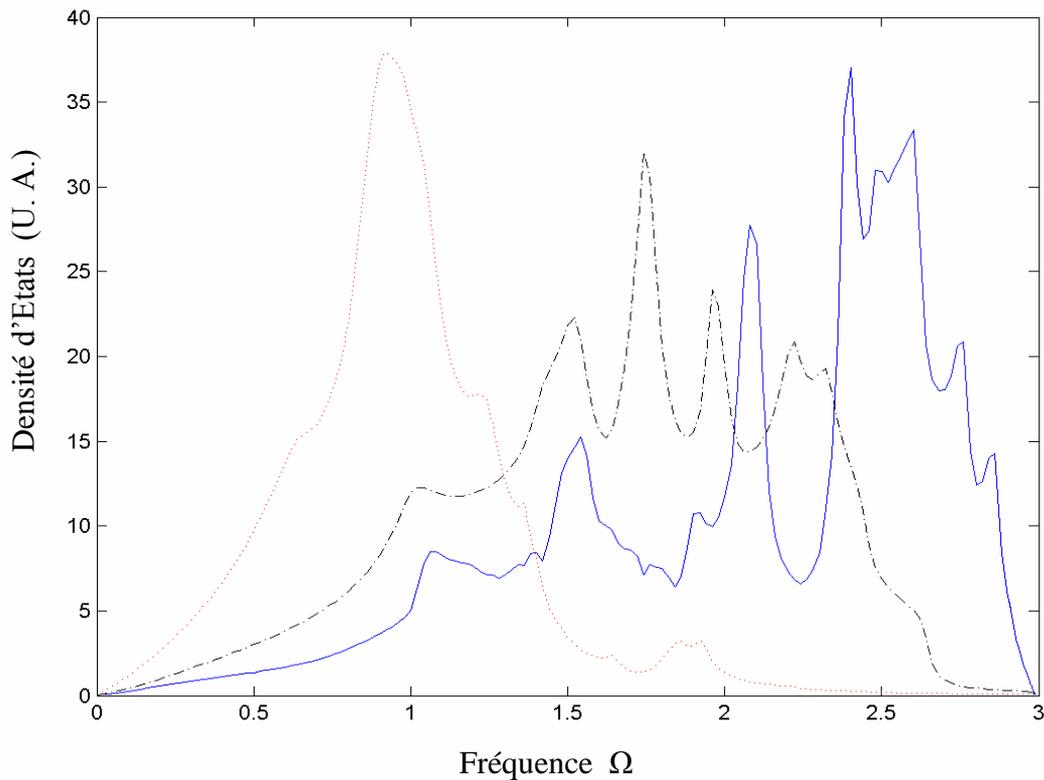


Fig. 5.2 : Densités d'états des phonons d'un atome de substitution de masse $m' = 0.5 m$ en continu et $m' = 2.5 m$ en pointillés ($\lambda = 0.8$). La courbe en traits points se rapporte à la densité d'états des phonons de volume du guide d'onde parfait.

5.5.2 - Défaut interstitiel

Les densités spectrale et d'états du défaut interstitiel sont représentées sur les figures 5.3, 5.4, 5.5 et 5.6. Les courbes spectrales pour les atomes irréductibles du défaut (A) et (B) ainsi que (D) et (E) localisés en des sites équivalents, placés l'un au dessus de l'autre (voir schéma en haut de la Fig. 5.3), présentent des spectres identiques [72,90]. L'allure des courbes suivant les trois directions semble, d'autre part, relativement perturbée comparée à celle des courbes de volume du réseau parfait (courbes en tirets points). Cependant l'atome (C), à cause des liaisons avec le réseau toutes de type deuxième voisin, indique une évolution spectrale remarquable pour les deux masses de défaut. Dans tous les cas, les courbes relatives à cet atome présentent un comportement doublement résonant pour la masse lourde (en tirets) et simplement résonant pour la masse légère (en trait continu) dans la direction y de plus grande symétrie. L'apparition de ces pics s'explique par l'existence des branches optiques localisées qui interagissent avec le continuum (voir Fig. 4.2 du chapitre 4). Le nombre de résonances devient nettement plus important pour les atomes (A) et (B) ou (D) et (E) du fait qu'ils ont

probablement plus de liberté de mouvement dans leurs déplacements suivant les directions longitudinale et transversales particulièrement. Une plus grande amplitude des courbes confirme bien ce comportement. Les résonances observées résultent du couplage des états d'énergie de la bande passante et des états induits par le défaut [87,91], d'une part, et des interactions entre modes [25] qui se trouvent excités simultanément, d'autre part.

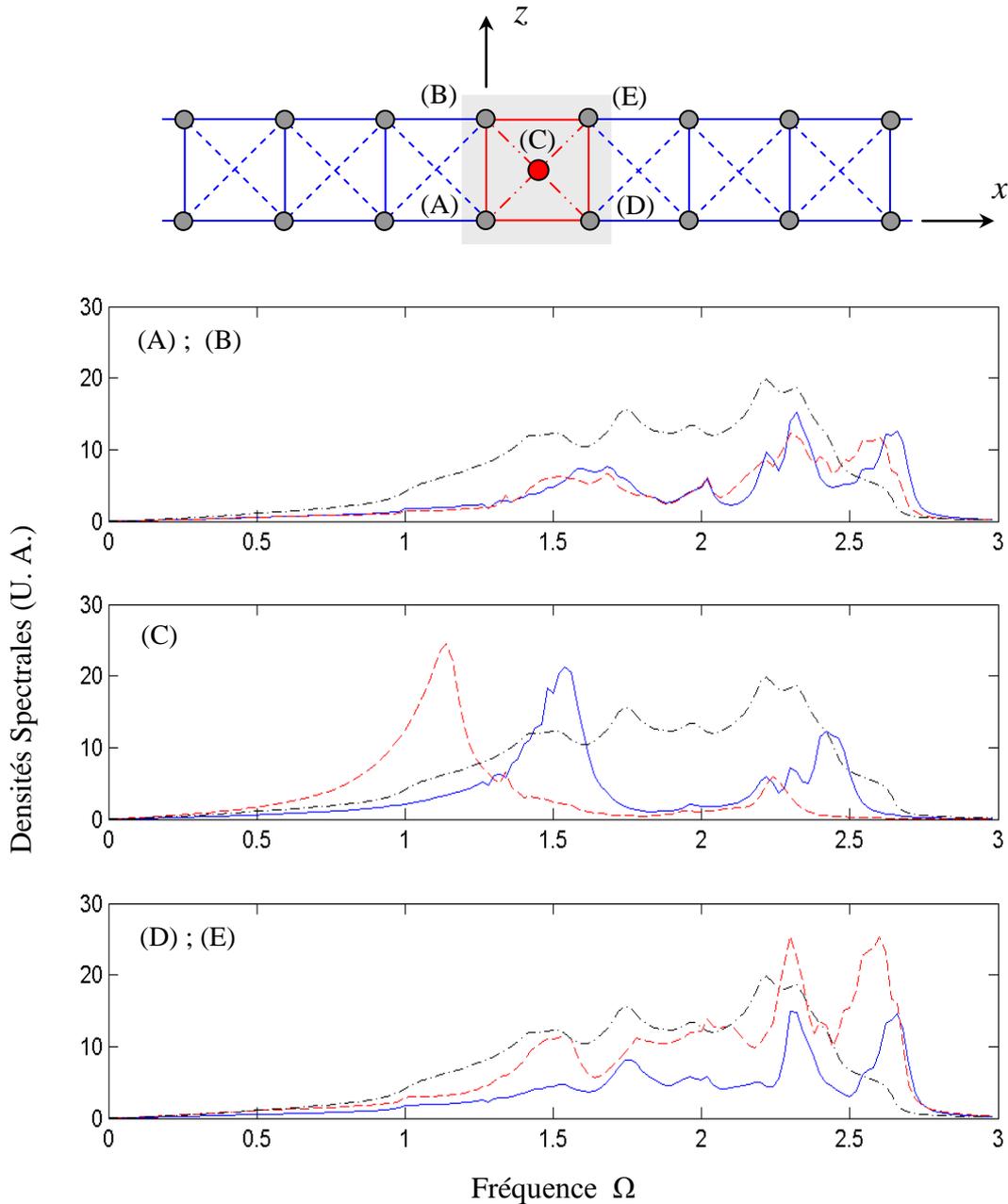


Fig. 5.3 : Densités spectrales des phonons suivant la direction de propagation x pour l'ensemble des sites atomiques composant le défaut interstitiel isolé pour une masse de défaut $m'=m$ (en continu) et une masse lourde $m' \neq m$ (en tirets). La courbe en pointillés se rapporte à la densité spectrale des phonons de volume du guide d'onde parfait suivant la même direction.

Sur la figure 5.3, nous présentons les résultats se rapportant à la densité d'états de l'ensemble des cinq atomes irréductibles constituant le défaut interstitiel. Nous observons alors une grande similitude des courbes densités des atomes ayant des sites équivalents (A) et (B) et (D) et (E), comme attendu. Le spectre relatif à l'atome (C) est beaucoup plus affecté dans le cas du défaut lourd (courbe en tirets) à cause d'une liberté de mouvement restreinte dans ses déplacements suivant les trois directions. Il faut noter que les symétries géométrique et physique de la configuration ainsi que des liaisons jouent un rôle extrêmement important dans ce comportement.

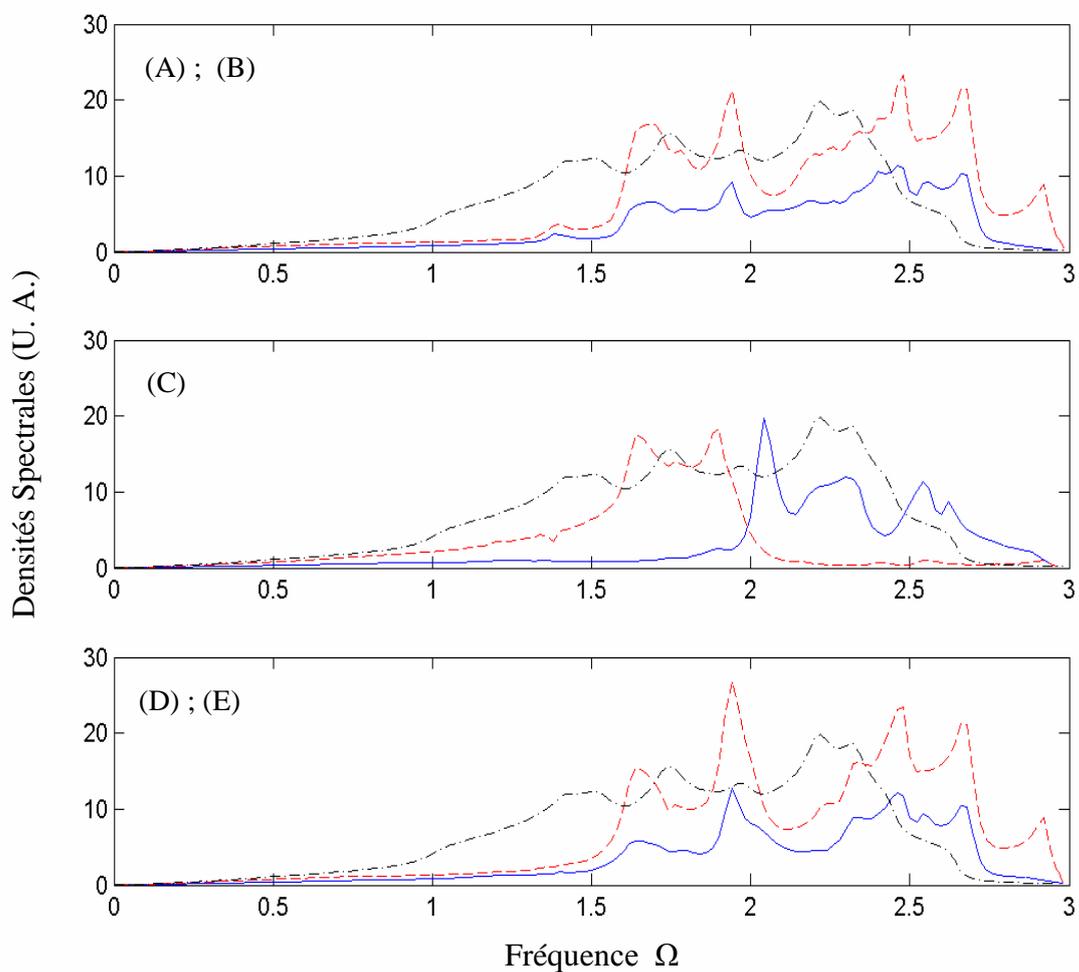


Fig. 5.4 : Densités spectrales des phonons suivant la direction y pour l'ensemble des sites atomiques composant le défaut interstitiel isolé pour une masse de défaut $m'=m$ (en continu) et une masse lourde $m'=2m$ (en tirets). La courbe en pointillés se rapporte à la densité spectrale des phonons de volume du guide d'onde parfait suivant la même direction.

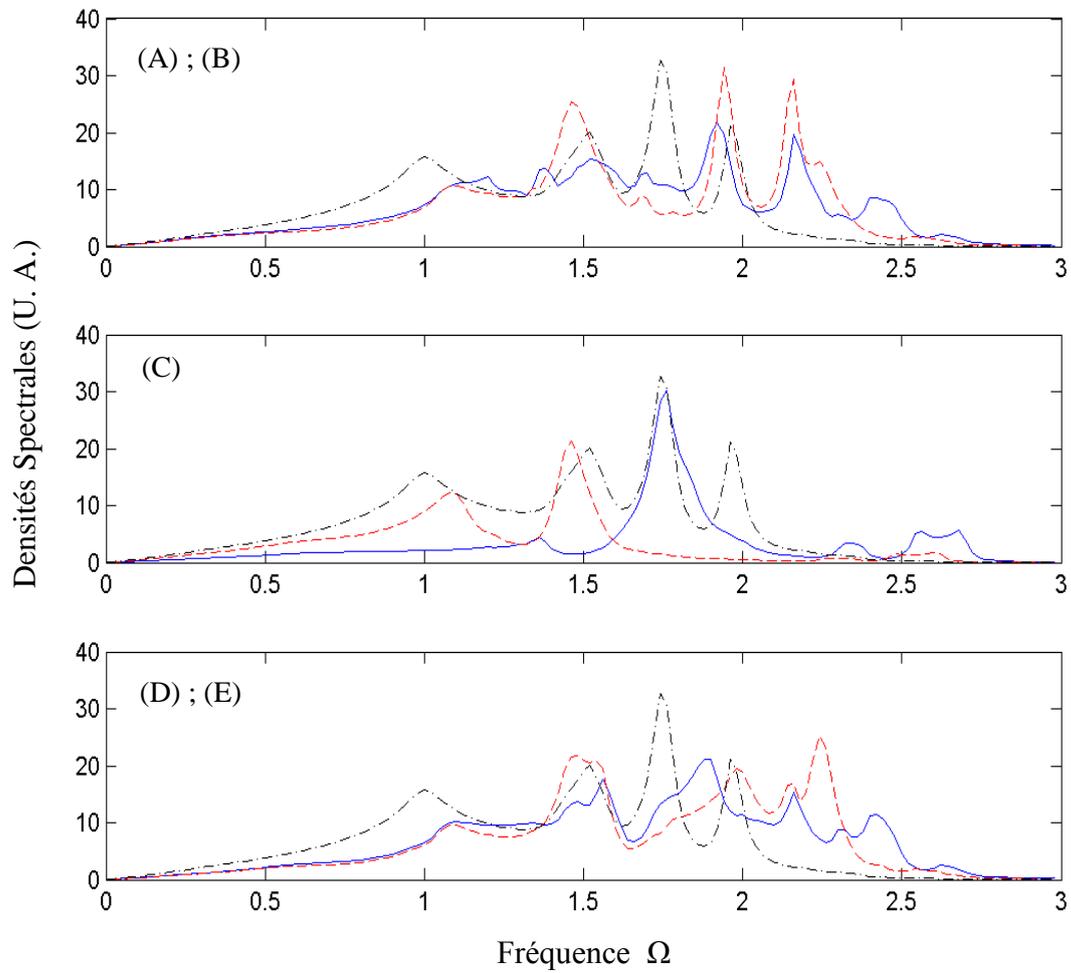


Fig. 5.5 : Densités spectrales des phonons suivant la direction z pour l'ensemble des sites atomiques composant le défaut interstitiel isolé pour une masse de défaut $m'=m$ (en continu) et une masse lourde $m'=m$ (en tirets). La courbe en pointillés se rapporte à la densité spectrale des phonons de volume du guide d'onde parfait suivant la même direction.

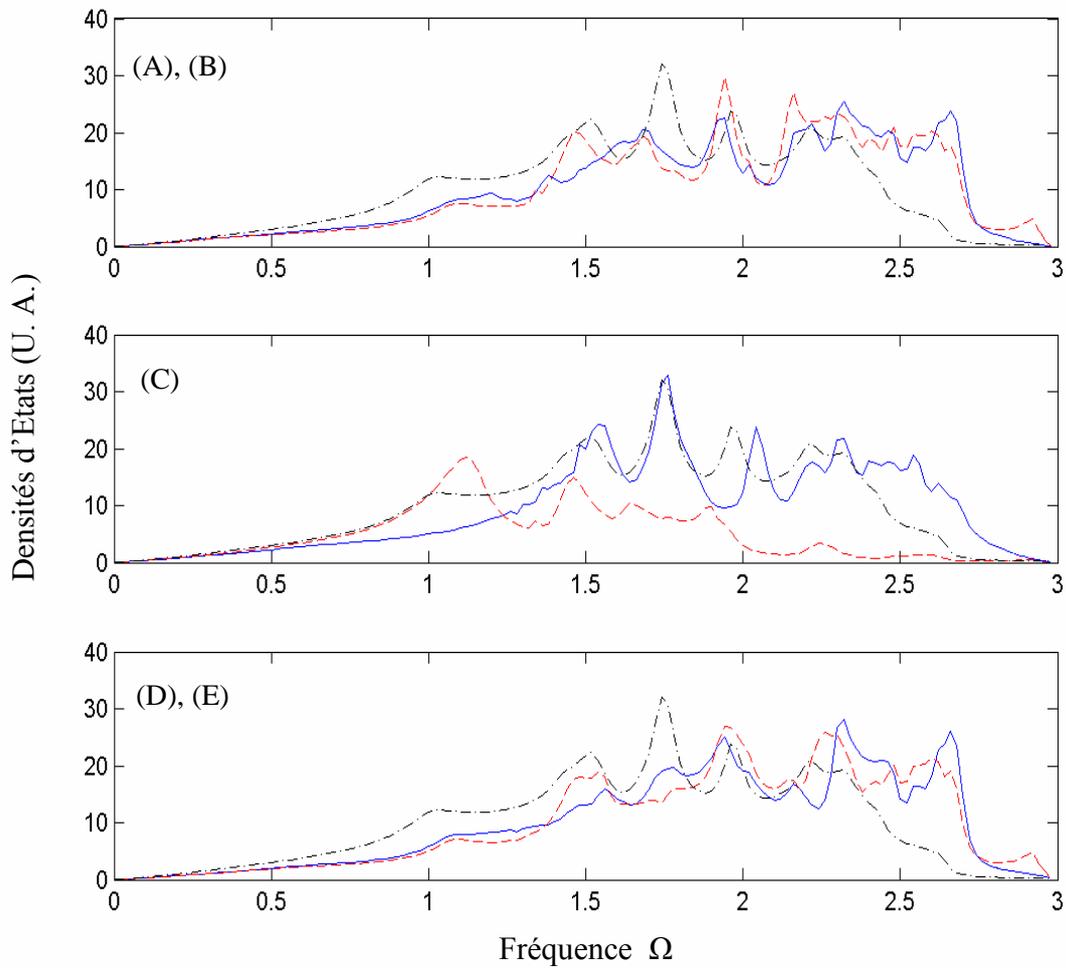


Fig. 5.6 : Densités d'états des phonons des sites atomiques composant le défaut interstitiel isolé pour une masse de défaut $m'=m$ (en continu) et une masse lourde $m'=m$ (tirets). La courbe en pointillés se rapporte à la densité d'état des phonons de volume du guide d'onde parfait.

5.5.3 - Défaut lacunaire

Les résultats relatifs aux densités spectrales et densités d'états des atomes composant le défaut lacunaire, de largeur $2a$, sont indiquées sur les figures 5.7, 5.8 et 5.9. Nous retrouvons toujours une certaine similitude dans le comportement des atomes occupant les sites (A) et (E), (B) et (D) équivalents (schéma en haut de la Fig. 5.7). Dans la cavité, représentant la région perturbée, une multitude d'ondes incidentes et réfléchies interfèrent. Ce phénomène régit les résonateurs de Fabry-Pérot dont notre système possède bien toutes les caractéristiques.

Trois pics de résonances sont observés pour toutes les courbes le long de l'axe x (Fig. 5.7) dans la plage des hautes fréquences. Dans La Fig. 5.8, sont montrées les spectres obtenus le long des axes y et z simultanément. Suivant la direction de plus grande symétrie y plusieurs pics de résonance (Fig. 5.8a), survenant à des fréquences autres que celles correspondant à l'axe x , sont observés.

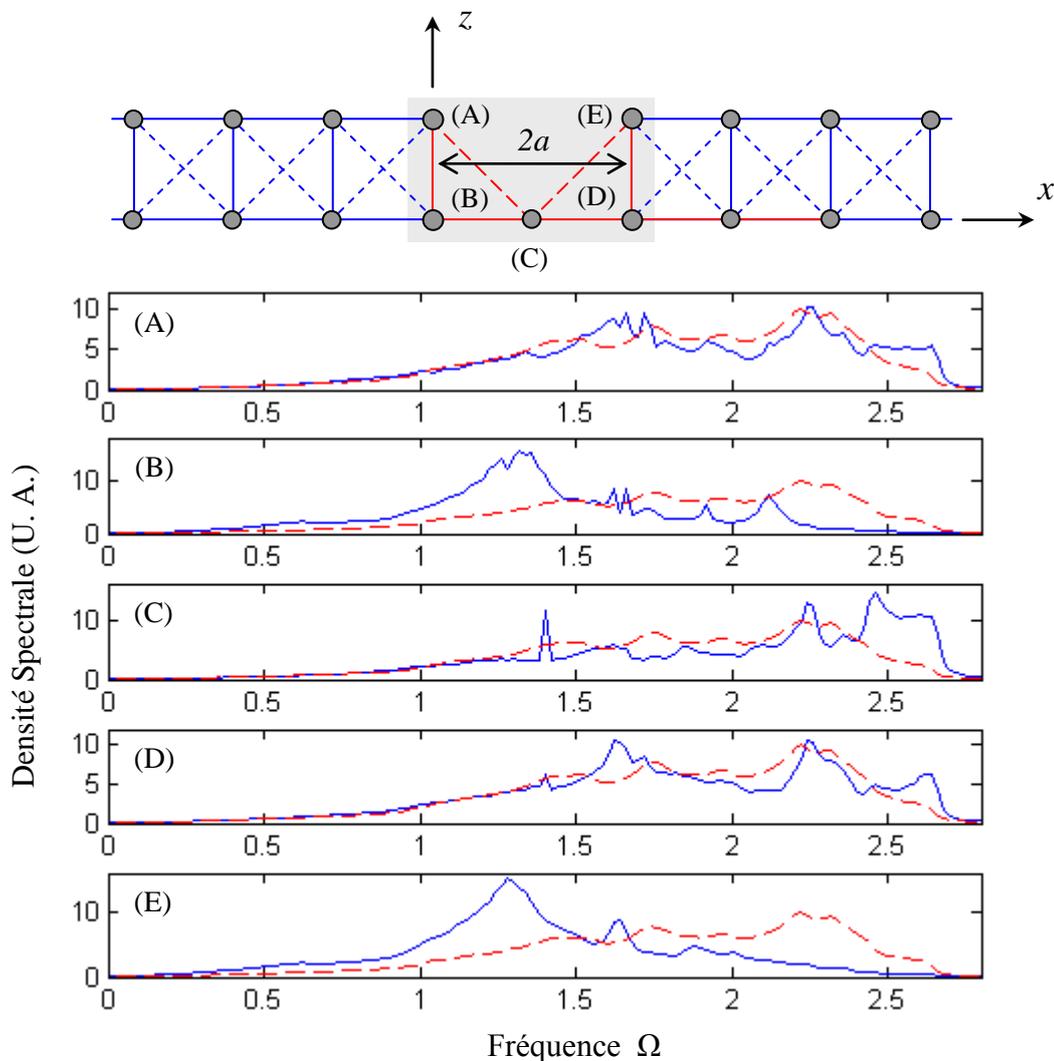


Fig. 5.7: Densités spectrales des phonons suivant la direction de propagation x pour l'ensemble des sites atomiques composant le défaut lacunaire pour $\lambda = 1.2$. La courbe en tirets se rapporte à la densité spectrale des phonons de volume du guide d'onde parfait suivant la même direction.

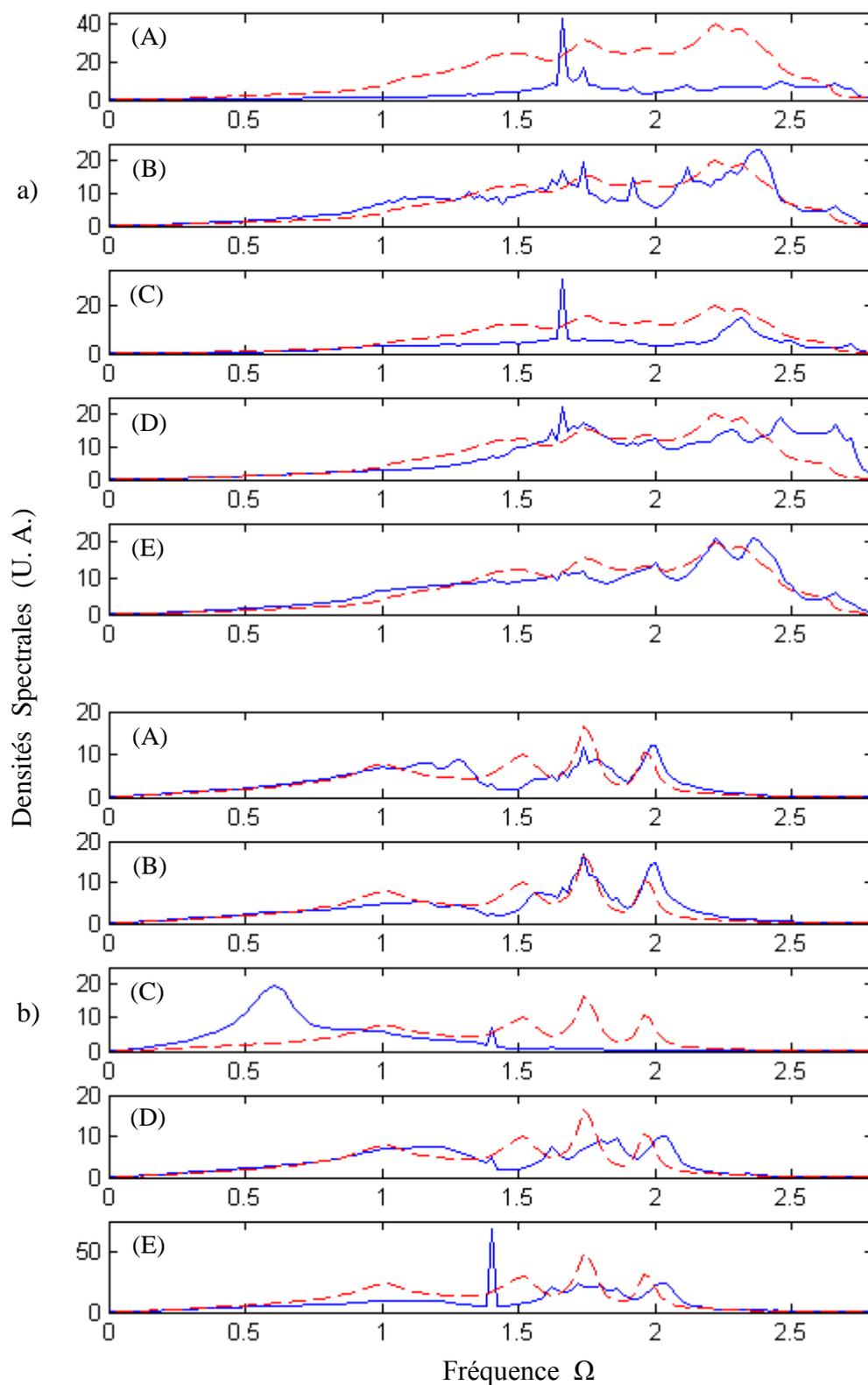


Fig. 5.8 : Densités spectrales des phonons suivant les directions y (a) et z (b) pour l'ensemble des sites atomiques composant le défaut lacunaire pour une constante de rigidité $\lambda = 1.2$. La courbe en tirets se rapporte à la densité spectrale des phonons de volume du guide d'onde parfait suivant les mêmes directions.

Cependant, les couples de sites équivalents présentent un comportement similaire, comme attendu. Les deux résonances de l'atome (C) se produisent aux fréquences respectives de $\Omega \approx 1.65$ et $\Omega \approx 2.35$ (5.8a). Ces résonances se sont déplacées vers les basses fréquences dans les courbes de densité suivant l'axe z , le pic correspondant à la fréquence de résonance $\Omega \approx 0.6$ devenant beaucoup plus prononcé. Les états résonants sont engendrés par la dégénérescence des états localisés induits par le défaut et des états énergétiques de volume de la structure (Fig. 4.3, chap. 4).

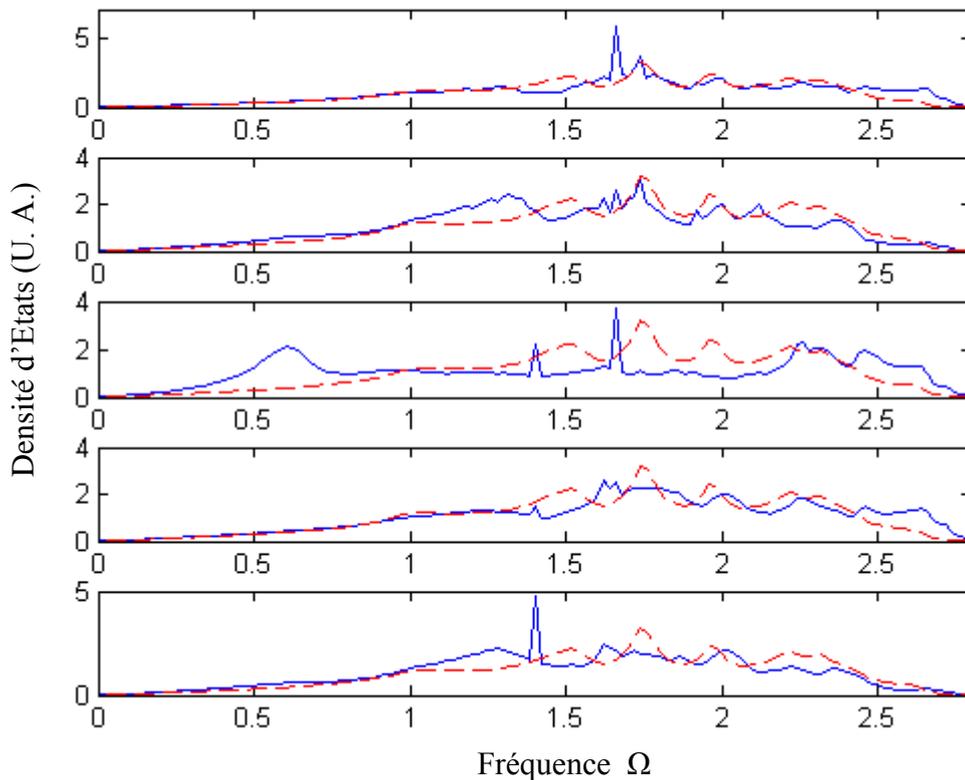


Fig. 5.9 : Densités d'états des phonons des sites atomiques composant le défaut lacunaire pour $\lambda=1.2$. La courbe en tirets se rapporte à la densité d'états des phonons de volume du guide d'onde parfait.

5.6 – Conclusion

La méthode de raccordement combinée aux fonctions de Green a été utilisée pour calculer les densités spectrales ainsi que les densités d'états des phonons se propageant dans un nano cristal comportant différents types de défauts réticulaires localisés en volume. Des densités spectrales et d'états typiques sont présentées numériquement pour l'ensemble des sites atomiques irréductibles composant le défaut, qu'il soit substitutionnel, interstitiel ou lacunaire.

Des résultats précédents, l'on peut alors comprendre et analyser les comportements spectraux des atomes du défaut ainsi que leur évolution en se référant aux trois régions distinctes du réseau perturbé, des liaisons inter atomiques et de la symétrie du système. L'interprétation des courbes repose essentiellement sur l'apparition de structures hyperfines visibles dans les spectres de transmission et des densités spectrales. Elles sont induites principalement par l'interaction des branches de dispersion des phonons localisés au voisinage du défaut avec le continuum de propagation ou/et par l'interaction des modes excités simultanément.

Conclusions & Perspectives

Dans ce travail, nous avons étudié l'influence des défauts réticulaires de volume sur les propriétés de diffusion d'ondes élastiques par les systèmes mésoscopiques désordonnés, multicanaux et quasi-tridimensionnels. Le modèle considéré consiste en une structure cubique simple composée de deux plans atomiques infinis formant ainsi un guide d'onde parfait. Notre approche numérique, basée sur le principe de Landauer, s'appuie sur la méthode de raccordement pour calculer les probabilités de transmission et déterminer la conductance en résolvant l'équation dynamique de Newton avec des conditions aux limites de diffusion. La combinaison de cette méthode avec les fonctions de Green a permis également de déterminer les densités spectrales et les densités d'états de l'ensemble des atomes irréductibles de la région perturbée.

Bien que la méthode présentée s'inspire des travaux menés sur les guides d'onde électroniques, le cas d'ondes vibratoires demeure beaucoup plus compliqué que le cas de l'électron. La différence essentielle étant que les fonctions d'onde dans l'équation de Schrödinger sont des *scalaires* complexes (densités de charge), alors que les fonctions d'onde vibratoires sont des *vecteurs* complexes. Dans ce sens, notre travail constitue une base pour l'étude des phénomènes d'interférence impliquant des vecteurs d'onde polarisables tels que les ondes électromagnétiques. En fait, le mode induit par un défaut couplant des modes propageants joue un rôle important dans la théorie des guides d'onde électromagnétiques et a fait l'objet de plusieurs investigations. Particulièrement, en régime micro-onde, les résonances de Fano sont communément utilisées pour la construction de filtres de fréquence [92]. Aux fréquences optiques, cependant, les effets d'interférence sont évacués à cause d'un fort couplage entre les ondes électromagnétiques guidées et des modes de radiation à l'extérieur du guide d'onde [93]. Ces effets sont par ailleurs exploités pour les performances et la conception des transducteurs ainsi que le contrôle du bruit [94]. D'autre part, en composant des défauts simples, nous avons pu fabriquer des résonateurs appelés Fabry-Pérot par analogie aux cavités résonantes optiques.

Nos résultats numériques montrent que, malgré leurs différents caractères, la diffusion d'ondes vibratoires et la diffusion d'ondes électroniques présentent beaucoup de similitudes et peuvent être décrites essentiellement en termes d'oscillations de Fabry-Pérot et de résonances de type Fano. Ces deux phénomènes sont d'ailleurs basés sur le même mécanisme d'interférences entre la multitude d'ondes diffusées dans la région perturbée. Les oscillations

de Fabry-Pérot impliquent une diffusion multiple d'ondes propageantes, alors que les résonances de Fano n'interviennent que pour décrire l'interférence entre un mode propageant transmis et un mode localisé créé par le défaut par dégénérescence avec des états évanescents du guide d'onde. Il est, par conséquent, évident que les modes évanescents sont nécessaires pour une description complète de toute la dynamique et des amplitudes de diffusion dans un système à plusieurs canaux, même s'ils ne contribuent aucunement au transport d'énergie. Les résultats montrent également que les défauts réticulaires laissent une empreinte caractéristique dans les courbes de transmission. De ce fait, les spectres de transmission obtenus par des expériences de diffusion peuvent servir à identifier des défauts de structures spécifiques et être alors utilisés pour leur caractérisation. Les ondes vibratoires peuvent aboutir à une alternative intéressante dans l'investigation des propriétés structurelles des matériaux dans le cas où les probabilités de diffusion inélastique peuvent être gardées suffisamment petites.

Par analogie au cas électronique, les ondes vibratoires sont responsables du transport de chaleur dans les isolants. Dans ce cas, nous pouvons exprimer facilement la conductivité thermique en fonction des probabilités de transmission de ces ondes [voir éq. 3.8]. La différence avec les électrons réside essentiellement dans le fait que les phonons obéissent à la statistique de Bose-Einstein. Par conséquent, la conductivité est donnée par une moyenne des probabilités de transmission dans tout l'intervalle de fréquence, plutôt que par la somme des probabilités de transmission calculée à une fréquence unique. Bien que les mesures de probabilités de transmission soient plutôt laborieuses, des mesures directes de transmission totale $\Lambda(\Omega)$ devraient être faisables. L'expérience type consisterait à coupler un receveur et un émetteur avec des caractéristiques de fréquence connues aux extrémités du guide d'onde en évitant les retours éventuels de réflexion aux jonctions.

Les phénomènes d'interférence discutés dans ce mémoire dérivent des équations dynamiques qui peuvent s'appliquer à n'importe quelle échelle de longueur, à condition que la cohérence de phase ne soit pas détruite par des effets dissipatifs. Concernant la dépendance sur le système et l'intervalle de fréquence, la cohérence de phase peut souvent être gardée plutôt large. En d'autres termes, les résultats du spectre de transmission obtenus dans le cas des ondes vibratoires ne se limitent pas à l'échelle nanométrique, comme pour la diffusion d'électron cohérent, mais peuvent aussi intéresser les effets d'interférence induits par un défaut dans les systèmes macroscopiques (assemblages de masses et de ressorts).

Quoique nous ayons restreint notre présente discussion au cas de guides d'onde quasi plans, notre approche peut être étendue sans difficultés à la description des guides d'onde à

plusieurs degrés de liberté telles que les structures infinies bidimensionnelles ayant une certaine épaisseur cristalline. Ceci serait bien pratique dans le calcul des spectres de transmission des systèmes réels; d'ailleurs nous ne nous attendons pas à des différences notables.

De nombreuses voies sont maintenant ouvertes : nous pourrions d'abord approfondir cette étude où certains éléments restent mal, voire pas du tout compris. Il suffit de penser à la forme des relations de dispersion du guide d'ondes non perturbé, à la détermination du nombre d'états localisés, sans parler des coefficients de transmission et de conductance pour des défauts complexes. D'autre part, il faudrait passer à des systèmes plus étendus et introduire la troisième dimension. On pourrait également s'intéresser au problème de la transmission de la chaleur afin d'aborder le transport thermique.

Comme nous le voyons, les possibilités de développement ne manquent pas, et il n'est pas interdit d'espérer arriver à des résultats numériques comparables avec des mesures expérimentales sur des composés de faibles dimensions. De récents progrès dans le domaine des ondes acoustiques [95,96] laissent à penser que des mesures d'une grandeur proche de la conductance vibrationnelle devraient être réalisables dans un futur pas trop éloigné, du moins pour des fréquences correspondantes.

Annexe A1

Calcul des éléments de la matrice de Green

Les éléments $\langle e_n | G(\omega^2) | e_m \rangle$ de la matrice $G(\omega^2)$, fonction des valeurs et des vecteurs propres de la matrice dynamique D , peuvent être déterminés en utilisant la matrice de passage qui relie les deux bases $|e_n\rangle$ et $|u_p\rangle$:

$$\begin{pmatrix} \vdots \\ |u_p\rangle \\ \vdots \end{pmatrix} = B \begin{pmatrix} \vdots \\ |e_n\rangle \\ \vdots \end{pmatrix} \Leftrightarrow \begin{pmatrix} \vdots \\ |e_n\rangle \\ \vdots \end{pmatrix} = B^{-1} \begin{pmatrix} \vdots \\ |u_p\rangle \\ \vdots \end{pmatrix}. \quad (\text{A1.1})$$

Conséquemment, le vecteur propre $|u_p\rangle$ constitue une combinaison linéaire des $3N$ vecteurs de base $|e_n\rangle$. D'où,

$$|u_p\rangle = \sum_{n=1}^{3N} \langle e_p | B | e_n \rangle |e_n\rangle, \quad (\text{A1.2})$$

où l'élément $\langle e_p | B | e_n \rangle$ de la matrice de passage B représente la projection du vecteur propre $|u_p\rangle$ sur la direction du vecteur $|e_n\rangle$. En effet, d'après l'égalité (A2),

$$\begin{aligned} \langle e_k | u_p \rangle &= \sum_{n=1}^{N_0} \langle e_p | B | e_n \rangle \langle e_k | e_n \rangle = \sum_{n=1}^{N_0} \langle e_p | B | e_n \rangle \delta_{kn}, \\ \Rightarrow \langle e_k | e_p \rangle &= \langle e_p | B | e_k \rangle. \end{aligned} \quad (\text{A1.3})$$

En utilisant les expressions (A1.3) et (A1.2), l'unitarité de la matrice B peut s'exprimer alors par l'écriture du produit scalaire $\langle u_{p'} | u_p \rangle$ en fonction des matrices B et B^+ ,

$$\begin{aligned} \langle u_{p'} | u_p \rangle &= \sum_n \sum_{n'} \langle e_n | B^+ | e_{p'} \rangle \langle e_n | B | e_m \rangle \delta_{nm}, \\ \Rightarrow \langle u_{p'} | u_p \rangle &= \sum_n \langle e_{p'} | B | e_m \rangle \langle e_m | B^+ | e_p \rangle = \langle u_{p'} | u_p \rangle = \langle e_{p'} | B B^+ | e_p \rangle. \end{aligned}$$

$$\text{Et } \langle e_{p'} | B B^+ | e_p \rangle = \delta_{pp'}. \quad (\text{A1.4})$$

La relation précédente indique que la matrice B , définie dans (A1.1), vérifie bien l'identité

$$B B^+ = I \Rightarrow B^+ = B^-. \quad (\text{A1.5})$$

Cette propriété permet aisément d'établir, dans la base propre, la relation de fermeture :

$$I = \sum_p |u_p\rangle\langle u_p|, \quad (\text{A1.6})$$

qui peut aussi s'écrire, compte tenu des expressions (A1.3) et (A1.4), comme :

$$\begin{aligned} |e_n\rangle \left(\sum_p |u_p\rangle\langle u_p| \right) |e_m\rangle &= \sum_p \langle e_n | u_p \rangle \langle u_p | e_m \rangle \\ &= \sum_p \langle e_p | B | e_n \rangle \langle e_p | B | e_m \rangle^* \\ &= \sum_p \langle e_m | B^+ | e_p \rangle \langle e_p | B | e_n \rangle \\ &= \langle e_m | B^+ B | e_n \rangle \\ &= \delta_{nm} \end{aligned}$$

Soit L la matrice diagonale dont les éléments sont définis comme suit :

$$\langle e_n | L | e_m \rangle = \omega_n^2 \delta_{nm}. \quad (\text{A1.7})$$

A l'aide la relation identité (A1.3), les éléments de la matrice $B^+ L B$ peuvent être explicités de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \langle e_n | B^+ L B | e_m \rangle &= \langle e_n | B^+ I L I B | e_m \rangle \\ &= \sum_i \sum_j \langle e_n | B^+ | e_i \rangle \langle e_i | L | e_j \rangle \langle e_j | B | e_m \rangle \\ &= \sum_i \sum_j \langle e_i | B | e_n \rangle^* \omega_i^2 \delta_{ij} \langle e_j | B | e_m \rangle \\ &= \sum_i \omega_i^2 \langle e_i | B | e_n \rangle^* \langle e_i | B | e_m \rangle \end{aligned}$$

D'autre part, les équations (5.2.3) et (A1.6) combinées à la définition des vecteurs $|e_n\rangle$ permettent d'écrire aussi que :

$$\begin{aligned}
\langle e_n | B^+ L B | e_m \rangle &= \sum_i \omega_i^2 \langle e_m | u_i \rangle \langle u_i | e_n \rangle \\
&= \sum_i \langle e_m | D | u_i \rangle \langle u_i | e_n \rangle . \\
&= \langle e_m | D | e_n \rangle
\end{aligned}$$

Finalement, si la matrice D est symétrique, elle vérifie automatiquement l'équation

$$D = B^+ L B. \quad (\text{A1.8})$$

D'après les équations (5.2.1) et (A1.6), la matrice $G(\omega^2)$ peut s'exprimer en fonction des matrices B , B^+ et L :

$$\begin{aligned}
G(\omega^2) = (\omega^2 I - D)^{-1} &\Rightarrow G(\omega^2) = (\omega^2 I - B^+ L B)^{-1} \\
&\Rightarrow G(\omega^2) = (B^+ (\omega^2 I - L) B)^{-1}.
\end{aligned}$$

On en déduit

$$G(\omega^2) = B^+ (\omega^2 I - L)^{-1} B. \quad (\text{A1.9})$$

Et en utilisant (A7), les éléments $\langle e_n | (\omega^2 I - L)^{-1} | e_m \rangle$ de la matrice $(\omega^2 I - L)$ deviennent :

$$\langle e_n | (\omega^2 I - L)^{-1} | e_m \rangle = \frac{\delta_{nm}}{(\omega^2 - \omega_n^2)}. \quad (\text{A1.10})$$

En fin de compte, en combinant l'ensemble des trois équations (5.2.2), (A1.9) et (A1.10), les éléments de $G(\omega^2)$ s'écrivent comme indiqué dans la relation (5.2.5).

Annexe A2

Approximation Harmonique des Forces Centrales

Dans un référentiel galiléen, muni d'une base cartésienne orthonormée $(O, \vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)$, nous considérons un solide composé de N atomes dont le centre de gravité est supposé immobile. A un instant t donné, la position d'un atome (l) sera repérée par le vecteur position

$$\vec{r}(l, t) = \vec{r}_0(l) + \vec{u}(l, t), \quad (\text{A2.1})$$

où le vecteur $\vec{r}_0(l)$ indique la position de l'atome (l) dans la configuration d'équilibre et $\vec{u}(l, t)$ son déplacement. Par la suite, les déplacements $\vec{u}(l, t)$ seront considérés comme des variables dynamiques en supposant que le système électronique n'est pas perturbé par les oscillations des atomes autour de leur position d'équilibre. L'énergie d'une vibration du réseau ou onde élastique étant quantifiée, le quantum d'énergie est appelé *phonon* par analogie au *photon*, quantum d'énergie électromagnétique.

Si $\phi(\vec{r})$ désigne l'énergie potentielle des interactions atomiques du solide, la force de rappel $\vec{F}(l, t)$ exercée sur l'atome (l) par le reste du système s'écrit :

$$\vec{F}(l, t) = -\nabla \phi(\vec{r}). \quad (\text{A2.2})$$

La fonction $\phi(\vec{r})$ assure la cohésion des particules du solide et entretient les vibrations atomiques. Elle peut alors être décomposée, dans le cadre de l'approximation des forces centrales, en une somme d'énergies potentielles à deux atomes,

$$\phi(\vec{r}) = \frac{1}{2} \sum_{l' \neq l} \sum_l \phi(l, l'). \quad (\text{A2.3})$$

Chaque terme $\phi(l, l')$ ne dépend que des positions relatives des deux atomes (l) et (l') . Explicitement, $\phi(l, l')$ est une fonction des trois composantes $r_i(l, l', t)$, ($i = x, y, z$) du vecteur

$$\vec{r}(l, l', t) = \vec{r}(l', t) - \vec{r}(l, t). \quad (\text{A2.4})$$

D'où la variation élémentaire du vecteur $\vec{r}(l, l', t)$ en fonction des déplacements des atomes (l) et (l')

$$d\vec{r}(l, l', t) = \vec{u}(l', t) - \vec{u}(l, t). \quad (\text{A2.5})$$

Si le déplacement des atomes autour de leur position d'équilibre est suffisamment petit, le recours à l'hypothèse de l'approximation harmonique permet de négliger les termes d'ordre supérieur à 2 dans les développements de Taylor des fonctions $\phi(l, l')$:

$$\begin{aligned} \phi(l, l') \approx & \phi_0(l, l') + \sum_l \phi'_l(l, l') [u_i(l', t) - u_i(l, t)] \\ & + \frac{1}{2} \Psi_{ij}(l, l') [u_i(l', t) - u_i(l, t)] [u_j(l', t) - u_j(l, t)] \end{aligned} \quad (\text{A2.6})$$

avec
$$\phi'_l(l, l') = \left(\frac{d\phi(l, l')}{dr_i(l, l')} \right)_0 \quad (\text{A2.7a})$$

$$\Psi_{ij}(l, l') = \left(\frac{d^2\phi(l, l')}{dr_i(l, l') dr_j(l, l')} \right)_0. \quad (\text{A2.7b})$$

L'indice zéro indique que les fonctions sont calculées dans la configuration d'équilibre, ce qui annule les constantes $\phi'_{ij}(l, l')$ et $(i, j = x, y, z)$. Le premier terme $\phi_0(l, l')$, se rapportant à un potentiel statique, est sans intérêt dans le cas de la description dynamique.

La relation fondamentale de la dynamique stipule que la force de rappel qu'exercent les atomes du système sur l'atome (l) , de masse $M(l)$, s'exprime comme :

$$F_i(l, t) = M(l) \frac{d^2 u_i(l, t)}{dt^2}. \quad (\text{A2.8})$$

En utilisant (A2.2), (A2.3) et (A2.6), la composante $F_i(l, t)$ peut aussi s'écrire :

$$F_i(l, t) = \sum_{l' \neq l} \sum_j \Psi_{ij}(l, l') [u_j(l', t) - u_j(l, t)]. \quad (\text{A2.9})$$

Dans cette équation, $\Psi_{ij}(l, l')$ a la même dimension qu'une constante de force $K(l, l')$ définie, en général, par :

$$K(l, l') = \left(\frac{d^2\phi(l, l')}{dr^2(l, l')} \right)_0 \quad (l' \neq l). \quad (\text{A2.10})$$

L'établissement de la relation entre les constantes $\Psi_{ij}(l, l')$ et $K(l, l')$ s'obtient, en procédant par décomposition des dérivées de (A2.7), de la façon suivante :

La relation $\frac{d}{dr_j} = \frac{d}{dr_j} \left(\frac{dr}{dr_j} \right)$ permet d'exprimer successivement que

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \phi(l, l')}{dr_i dr_j} &= \frac{d}{dr_i} \left(\frac{d\phi(l, l')}{dr} \frac{dr}{dr_j} \right) \\ \Rightarrow \frac{d^2 \phi(l, l')}{dr_i dr_j} &= \frac{r_j}{r} \frac{d}{dr_i} \left(\frac{d\phi(l, l')}{dr} \right) + \left(\frac{d\phi(l, l')}{dr} \right) \frac{d}{dr_i} \left(\frac{r_j}{r} \right) \\ \Rightarrow \frac{d^2 \phi(l, l')}{dr_i dr_j} &= \frac{nr_j}{r^2} \left(\frac{d^2 \phi(l, l')}{dr_i dr_j} \right) + \left(\frac{d\phi(l, l')}{dr} \right) \frac{d}{dr_i} \left(\frac{r_j}{r} \right) \end{aligned}$$

où $r = \left(r_x^2 + r_y^2 + r_z^2 \right)^{\frac{1}{2}}$ est le module du vecteur position \vec{r} alors que l'indice i désigne les directions cartésiennes x, y, z .

A la position d'équilibre, le deuxième terme du membre de droite contenant $\frac{d\phi(l, l')}{dr}$ s'annule,

$$\text{d'où} \quad \Psi_{ij}(l, l') = \left(\frac{r_i r_j}{r^2} \right)_0 k(l, l'). \quad (\text{A2.11})$$

En tenant compte des relations (A2.8) et (A2.9), l'équation du mouvement de l'atome (l) peut alors s'écrire :

$$M(l) \frac{du_i(l, t)}{dt^2} = \sum_{l \neq l'} \sum_j \left(\frac{r_i r_j}{r^2} \right)_0 K(l, l') [u_j(l', t) - u_j(l, t)]. \quad (\text{A2.12})$$

Dans le cadre de l'approximation harmonique, l'excitation d'un mode propre de vibration du réseau cristallin ayant une fréquence angulaire ω engendre des oscillations régulières qui peuvent se décrire, pour une température donnée, par des équations de la forme :

$$u_i(l, t) = u_i(l, \omega) \exp(j\omega t), \quad (\text{A2.13})$$

où $u_i(l, \omega)$ est l'amplitude du déplacement de l'atome (l) suivant la direction i .

En insérant l'équation (A2.12) dans (A2.13), nous déduisons l'expression

$$\omega^2 M(l) u_i(l, \omega) = \sum_{l \neq l'} \sum_j K(l, l') \left(\frac{r_i r_j}{r^2} \right) [u_j(l', \omega) - u_j(l, \omega)]. \quad (\text{A2.14})$$

Dans le cadre de l'approximation harmonique associée aux forces centrales, cette équation traduit les corrélations entre les déplacements induits par l'agitation thermique des atomes.

Annexe A3

Déplacement quadratique moyen

La description des vibrations atomiques engendrées par les variations thermiques doit tenir compte de l'ensemble des modes propres du système considéré. Les déplacements seront alors exprimés comme une superposition des $3N$ oscillateurs harmoniques propres.

Soit $|u_p(t)\rangle$ le vecteur déplacement généré par le p -ième mode dont la variation temporelle est donnée par l'équation

$$|u_p(t)\rangle = e^{j\omega_p t} |u_p\rangle. \quad (\text{A3. 1})$$

ω_p désigne la fréquence de vibration du p -ième mode.

Le vecteur déplacement $|u(t)\rangle$ résultant s'exprime par une série de la forme

$$|u(t)\rangle = \sum_p C_p |u_p(t)\rangle. \quad (\text{A3. 2})$$

La projection de $|u(t)\rangle$ suivant les directions $|e_n\rangle$, ($n = 1, \dots, 3N$) permet de déterminer les fonctions $u_n(t) = \langle e_n | u(t) \rangle$ des déplacements atomiques dans les trois directions

$$u_n(t) = \sum_p \langle e_n | u_p \rangle \varphi_p(t), \quad (\text{A3. 3})$$

φ_p étant la fonction temporelle du p -ième oscillateur propre dont l'accélération est

$$\ddot{\varphi}_p(t) = -\omega_p^2 \varphi_p(t). \quad (\text{A3. 4})$$

En exprimant $\varphi_p(t)$ en fonction des opérateurs de création $a_p^+(t)$ et d'annihilation $a_p(t)$ des phonons du mode p , l'équation (A3. 3) permet d'écrire le déplacement $|u_n(t)\rangle$ d'un atome de masse M_n sous la forme suivante :

$$u_n(t) = \sum_p \langle e_n | u_p \rangle \left(\frac{\hbar}{2\omega_p M_n} \right)^{\frac{1}{2}} \left(a_p^+ e^{j\omega_p t} + a_p e^{-j\omega_p t} \right). \quad (\text{A3. 5})$$

Si $H = \sum_p \hbar \omega_p \left(a_p^+ a_p + \frac{1}{2} \right)$ désigne l'Hamiltonien du solide et $\rho = \frac{1}{Z} e^{-\frac{H}{k_B T}}$ sa distribution canonique, les moyennes des opérateurs se déduisent :

$$\langle a_p^+ a_{p'}^+ \rangle = \langle a_p a_{p'} \rangle = 0, \quad (\text{A3. 6a})$$

$$\langle a_p^+ a_p \rangle = \text{Tr } \rho(a_p^+, a_p) = \delta_{pp'} n(\omega_p), \quad (\text{A3. 6b})$$

$$\langle a_p a_p^+ \rangle = \text{Tr } \rho(a_p, a_p^+) = \delta_{pp'} (n(\omega_p) + 1), \quad (\text{A3. 6c})$$

avec

$$n(\omega) = \left\{ \exp\left(\frac{\hbar \omega}{k_B T}\right) - 1 \right\}^{-1} \quad (\text{A3. 7})$$

D'après les relations (A3. 5) et (A3. 6), les déplacements quadratiques moyens $\langle |u_m(t)|^2 \rangle$ s'écrivent

$$\langle |u_m(t)|^2 \rangle = \frac{\hbar}{M_m} \sum_p \left(n(\omega_p) + \frac{1}{2} \right) \frac{|\langle e_n | u_p \rangle|^2}{\omega_p}. \quad (\text{A3. 8})$$

Cette dernière expression indique que les moyennes $\langle |u_m(t)|^2 \rangle$ sont indépendantes du temps. Ainsi, nous pouvons les désigner par $\langle |u_m|^2 \rangle$. Pour les transcrire à l'aide des éléments de la matrice de Green $G(\omega^2)$, il faut introduire les fonctions $\nu_n(\omega)$ définies dans (A2. 18). Alors, si ω_m symbolise la fréquence de vibration maximale possible dans le solide, l'équation (A3. 8) devient :

$$\langle |u_m|^2 \rangle = \frac{\hbar}{M_m} \int_{0^+}^{\omega_m} \left(n(\omega) + \frac{1}{2} \right) \nu_n(\omega) d\omega. \quad (\text{A3. 9})$$

En utilisant (A2. 21), l'équation précédente peut s'écrire sous la forme

$$\langle |u_m|^2 \rangle = \frac{2\hbar}{\pi M_m} \int_{0^+}^{\omega_m} \left(n(\omega) + \frac{1}{2} \right) \text{Im} \langle e_m | G(\omega^2 + j0^+) | e_m \rangle d\omega. \quad (\text{A3. 10})$$

Bibliographie

- [1] **Y. Imry**, *Introduction to Mesoscopic Physics*, (Oxford University Press, Oxford, 1997).
- [2] **E. H. Lieb** and **D. C. MATTIS**, *Mathematical Physics in One Dimension*, (Academic, New York, 1966).
- [3] **B. Kramer**, *Quantum Coherence in Mesoscopic Systems*, (plenum, New York, 1991).
- [4] **H. Ibach** and **D. L. Mills**, *Electron Energy Loss Spectroscopy and Surface Vibrations*, (New York : Academic, 1982).
- [5] **H. Taub**, **K. Carneiro**, **J.K. Kjems**, **L. Passell**, and **J.P. McTague**, *Phys. Rev. B* **16**, 4551 (1977).
- [6] **K. D. Gibson** and **S.J. Sibener**, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 1514 (1985).
- [7] **K. D. Gibson**, **S.J. Sibener**, **B.M. Hall**, **D.L. Mills**, and **J.E. Black**, *J. Chem. Phys.* **83**, 4256 (1985).
- [8] **K. Kern**, **R. David**, **R.L. Palmer**, and **G. Comsa**, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 2823 (1986).
- [9] **K. Kern**, **R. David**, **R.L. Palmer** and **G. Comsa**, *Surf. Sci.* **175**, L669 (1986).
- [10] **P. Zeppenfeld**, **U. Becher**, **K. Kern**, and **G. Comsa**, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **54**, 265 (1990).
- [11] **P. Zeppenfeld**, **S. Horch** and **G. Comsa**, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1259 (1994).
- [12] **W. Allers**, **A. Schwarz**, **V.D. Schwarz** and **R. Wiesendanger**, *Europhys. Lett.* **48**, 276 (1999).
- [13] **L. G. C. Rego** and **G. Kirczenow**, *Phys. Rev. B* **59** (20), 13080 (1999).
- [14] **M. Büttiker**, *Phys. Rev. Lett.*, **57**, 1761 (1986).
- [15] **E. Tekman** and **P. F. Bagwell**, *Phys. Rev.*, **B 48**, 2553 (1993).
- [16] **P. F. Bagwell**, *Phys. Rev.*, **B41**, 10354 (1990); *J. Phys. Condens. Matter* **2**, 6179 (1993).
- [17] **C. Berthod**, **F. Gagel**, and **K. Maschke**, *Phys. Rev.*, **B 50**, 18 299 (1994).
- [18] **R. Landauer**, *J. Phys. Condens. Matter*, **1**, 8099 (1989).
- [19] **F. Gagel** and **K. Maschke**, *Phys. Rev.*, **B 52**, 2013 (1995).
- [20] **M. S. Rabia**, **H. Aouchiche** and **O. Lamrous**, *Eur. Phys. J. – A. P.* **23**, 95-102 (2003).

-
- [21] **M. Belhadi, O. Rafil, R. Tigrine, A. Khater, J. Hardy, A. Virlovvet and K. Maschke**, *Euro. Phy. J. B* **15**, 435-443 (2000).
- [22] **V. Pouthier and C. Girardet**, *Surf. Sci.* **502/503**, 503-512 (2002); *Surf. Sci.* **511**, 203-214 (2002).
- [23] **A. Virlovvet, H. Grimech, A. Khater, Y. Pennec, K. Maschke**, *J. Phys.: Condens. Matter* **8**, 7589 (1996).
- [24] **A. Fellay, F. Gagel, K. Maschke, A. Virlovvet and A. Khater**, *Phys. Rev.*, **B 55**, 1707 (1997).
- [25] **A. Virlovvet, A. Khater, H. Aouchiche, O. Rafil and K. Maschke**, *Phys. Rev.*, **B 59**, 4933 (1999).
- [26] **A. A. Maradudin, E. W. Montroll, G. H. Weiss and Ipatova**, *Theory of lattice Dynamics in the Harmonic Approximation*, Academic Press New York and London (1971).
- [27] **J. Szeftel and A. Khater**, *Phys. Rev. C : Solid State Phys.* **20**, 4725 (1987).
- [28] **T. E. Feuchtwang**, *Phys. Rev.* **155**, 731 (1967).
- [29] **P. W. Anderson**, *Phys. Rev.* **109**, 1492 (1958).
- [30] **T. V. Ramakrishnan**, Waves and electrons in inhomogeneous media. In les Houches XLVI, chance and matter, page 213, Amsterdam, North Holland (1987).
- [31] **B. Souillard**, Waves and electrons in inhomogeneous media. In les Houches XLVI, chance and matter, page 213, Amsterdam, North Holland (1987).
- [32] **A. Khater, N. Auby, and D. Kechrakos**, *J. Phys. : Condens. Matter*, **4**, 3743 (1992).
- [33] **J. P. Toennies**, *J. Vac. Sci. Technol.*, **A 5**, 440 (1987).
- [34] **M. Born and T. Von Karman**, *Z. Physik* **13**, 297 (1912).
- [35] **M. Born and K. Huang**, *Dynamical Theory and Crystal Lattices*, Oxford University Press, New York (1954).
- [36] **G. Liebfrid**, *Hanbuk der Physik*, edited by S Flügge (Spinger-Verlag, Berlin, 1955), **Vol. VII**, part I, p.104.
- [37] **G. Liebfrid and W. Ludwig**, *Solid State Physics*, edited by F. Seitz and Turnbull (Academic Press Inc., New York, 1961), **Vol. 12**, p 275.
- [38] **A. A. Maradudin, E. W. Montroll and G. W. Weiss**, *Solid State Physics*, edited by F. Seitz and Turnbull (Academic Press Inc., New York, 1963), Supl., **Vol. 3**.
- [39] **W. Ledermann**, *Proc. Roy. Soc. (London)*, **A182**, 362 (1944).
- [40] **I. M. Lifshitz and L. N. Rosenzweig**, *Zh. Ekperim. Teor. Fiz.*, **18**, 1012 (1948).
-

-
- [41] **I. M. Lifshitz**, *Nuovo Cimento Suppl.* **3**, 732 (1956).
- [42] **A. A Maradudin, R.F. Wallis and L. Dobrzynski**, *Handbook of Surfaces and Interfaces*, vol. 3 (New York: Garland STPM) (1980).
- [43] **R. E. Allen, G. P. Alldredge and F. W. Wette**, *Phys. Rev. B* **4**, 1648, (1971).
- [44] **J. E. Black and P. Bopp**, *Surf. Sci.* **140**, 275 (1984).
- [45] **A. Lock, J. P. Toennies, G. Witte**, *J. Elec. Spec. & Related Phen.*, **54/55**, 309 (1990).
- [46] **P. Knipp**, *Phys. Rev.*, **B43**, 6908 (1991).
- [47] **A. A Maradudin, and J. Melangalis**, *Phys. Rev. A***133**, 1118 (1967)
- [48] **L. Dobrzynski and D. L. Mills**, *J. Phys. Chem. Solids* **30**, 1043 (1969); **L. Dobrzynski**, *Surf. Sci. Reports* **6**, 119 (1986)
- [49] **G. Armand**, *Phys. Rev. B***14**, 2218 (1976); **G. Armand**, *J. Physique* **38**, 989, (1977).
- [50] **G. Armand and P. Masri**, *Surf. Sci.* 130, 89 (1983).
- [51] **F. Garcia-Moliner**, *Ann. Phys. Paris* **2**, 179 (1977).
- [52] **P. Masri G. Allan and L. Dobrzynski**, *J. Phys.* 33, 85 (1972).
- [53] **P. Knipp and B. M. Hall**, *Surf. Sci.* 224, 983, (1989).
- [54] **A. Kara, C. S. Jayanthi, S. Y. Wu and F. Ercollessi**, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2223 (1994).
- [55] **A. Kara, S. Durukanoglu and T. Rahman**, *Phys. Rev. B***53**, 15489 (1996).
- [56] **E. J. Mele and M. V. Pykhtin**, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3878 (1995).
- [57] **M. S. Rabia**, 16^{ième} *Congrès Français de Mécanique* (cfm2003), 1–5 septembre 2003, Nice, France.
- [58] **M. S. Rabia, H. Aouchiche et A. Khater**, 7^{ième} *rencontre de la physique statistique et de la matière condensée* (7rpsmc), Méknes, Maroc, (2001).
- [59] **L. Van Hoove**, *Phys. Rev.*, **89**, 1189 (1953).
- [60] **H. Jones**, *The Theory of Brillouin Zones and Electronic State in Crystals*, (Amsterdam : North-Holland, 1975).
- [61] **J. Szeftel and S. Lehwald**, *Surf. Sci.*, **143**, 11, (1984).
- [62] **M. Tinkham**, *Group Theory and Quantum Mechanics* (New York : McGraw-Hill, 1964).
- [63] **C. Kittel**, *Physique de l'état solide*, 5^e édition, (Dunod, Paris, 1994)

-
- [64] **V. Bortolani, A. M. Marvin, F. Nizzoli and G. Santoro**, *J. phys. C : Solid State Phys.* **16**, 1757 (1983).
- [65] **G. Brusdeylins, R. B. Doak and J. P. Toennies**, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 1417 (1980).
- [66] **J. A. Stroschio, M. Persson, S.R. Bare and Ho W.**, *Phys. Rev. Lett.* **54**, 1428 (1985).
- [67] **T. S. Rahman, J. E. Black and D. L. Mills**, *Phys. Rev.* **B 25**, 883 (1982).
- [68] **S. Andersson, P. A. Karlsson and M. Persson**, *Phys. Rev. Lett.* **51**, 2378 (1983).
- [70] **M. Persson**, *Phys. Scr.* **29**, 181 (1984).
- [71] **M. Rocca, S. Lehwald, H. Ibach and T. S. Rahman**, *Surf. Sci.* **171**, 632 (1986).
- [72] **G. Tréglia and M.C. Desjonquères**, *J. Physique* **46**, 987 (1985).
- [73] **C. S. Clay and H. Medwin**, *Acoustical Oceanography : Principles and Applications*. John Wiley & Sons (1977).
- [74] **M. Lax**, "Multiple scattering of waves," *Reviews of Modern Physics*, vol. **23**, no. 4, p. 287 (1951).
- [75] **H. Grimech and A. Khater**, *Surf. Sci.*, **323**, 198 (1995).
- [76] **Y. Pennec and A. Khater**, *Surf. Sci. Lett.*, 348, L82 (1996).
- [77] **M. S. Rabia**, *J. Mol. Struc-Theochem*, **777**, 131-138 (2006).
- [78] **M. S. Rabia**, 7^{ième} *rencontre de la physique statistique et de la matière condensée* (INCONA05), Annaba, Algérie, (2005).
- [79] **D. E. Angelescu, M. C. Cross, and M. L. Roukes**, *Superlattice and Microstructure*, **23**, 673 (1998)
- [80] **L. C. Rego and G. Kirczenow**, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 232 (1998).
- [81] **M. P. Blencowe**, *Phys. Rev.* **B 59**, 4992 (1999).
- [82] **Z. J. Tian and J. E. Black**, *Surf. Sci.*, **303**, 395 (1994).
- [83] **A. Kumar and P. F. Bagwell**, *Phys. Rev.*, **B 43**, 9012 (1991).
- [84] **V. Pouthier and C. Girardet**, *J. Chem. Phys.* **112**, 5100-5104 (2000).
- [85] **V. Pouthier and C. Girardet**, *Phys. Rev.* **B65**, 035414:1-13 (2001).
- [86] **V. R. Velasco, F. Garcia-Moliner, L. Miglio and L. Colombo**, *Phys. Rev.* **B 38**, 3172-3179 (1988).
- [87] **G. Witte, J. Braun, A. Lock and J. P. Toennies**, *Phys. Rev.* **B52**, 2165 (1995).

- [88] **J. Szeftel, A. Khater, F. Mila, S. D. Addato** and **N. Auby**, *J. Phys. C, Solid State Phys.* Vol. **21**, no. 11, pp. 2113-2136 (1988).
- [89] **G. Brusdeylins, R. B. Doak.** and **J. P. Toennies**, *Phys. Rev. Lett.*, **B.27**, 3662 (1983).
- [90] **A. Lahee, J. R. Manson** and **J. P. Toennies**, *Phys. Rev. Lett.* **57** 471 (1986).
- [91] **G. P. Alldredge, R. E. Allen** and **F. W. Wette**, *Phys. Rev.*, **B4**, 1648, (1971).
- [92] **M. Guglielmi, F. Montauti, L. Pellegrini,** and **P. Arcioni**, *IEEE Trans. Microwave Theory Technol.* **43**, 1991 (1995).
- [93] **D. Marcuse**, in *Quantum Electronics-Principles and Applications*, edited by P. F. Liao And P. L. Kelley (Academic, New York, 1991).
- [94] **M. S. Kushwaha, A. Akjouj, B. Djafari-Rouhani, L. Dobrzynski, J.O. Vasseur,** *Solid state Commun.* **106**, 659 (1998).
- [95] **J. P. Wolfe**, *Physics Today* **70**, 34 (1995).
- [96] **B. Scheffold** and **O weis**, *Zeitschrift für Physik* **B 98**, 479 (1995).