

MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE MOULOUD MAMMERI DE TIZI-OUZOU

FACULTE DES SCIENCES
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE



THESE DE DOCTORAT ES SCIENCES

SPECIALITE : PHYSIQUE

OPTION : SCIENCES DE LA MATIERE

Présentée par :

Fazia LEKADIR épouse SAIDJ

Sujet

***Modélisation théorique des propriétés vibrationnelles
d'interfaces et surfaces métalliques ordonnées dans des
structures cfc suivant les directions de haute symétrie***

Soutenue, le 03/06/2017

Devant la commission d'examen composée de :

M. Slimane Hellal	Professeur	UMMTO	Président
M. Rachid Tigrine	Professeur	U. Adrar	Rapporteur
M. Boualem Bourahla	Professeur	UMMTO	Examineur
M. Mourad Djebli	Professeur	USTHB	Examineur
M. Hocine Aouchiche	Professeur	UMMTO	Examineur
M. Mohamed Halit	MCA	U. Laghouat	Examineur

Remerciements

Le travail présenté dans cette thèse a été effectué au laboratoire de Physique et Chimie Quantique (L.P.C.Q) de l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou sous la direction du Professeur Tigrine Rachid.

Je tiens à exprimer mes plus vifs remerciements au Professeur Rachid Tigrine de m'avoir accepté au sein de son équipe et de m'avoir dirigé et encadré avec beaucoup de compétence et de patience.

Je remercie également, le professeur Boualem Bourahla, qui m'a fait sentir que j'avais une place dans ce domaine, ses aides précieuses, et ses conseils m'ont permis de mener à terme mon travail. Qu'il trouve ici ma profonde reconnaissance. Sans oublier le professeur Antoine Khater de l'université du Maine, France, pour son accueil, lors de mon stage de courte durée, au sein de son laboratoire (Institut des Molécules et des Matériaux du Mans).

J'exprime toute ma gratitude au Professeur Slimane Hellal de l'université Mouloud Mammeri qui m'a fait l'honneur de bien vouloir assurer la présidence du jury.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance aux membres du jury : Dr Mohamed Halit de l'université de Laghouat, Pr Hocine Aouchiche et Pr Boualem Bourahla de l'université Mouloud Mammeri, Pr Mourad Djebli de l'université Sciences et Technologie, Houari Boumediene, pour l'honneur qu'ils m'ont fait d'avoir acceptés de faire partie du jury.

Je remercie tous les membres du laboratoire, ainsi que je remercie le directeur et surtout les membres de l'équipe excitations magnétiques et vibrationnelles de LPCQ, pour la bonne humeur qu'ils apportent au sein de l'équipe.

Je tiens à remercier tous les membres de ma famille particulièrement mes chers parents, ma famille, ainsi que mon mari, mes amis et toute personne qui a contribué de près ou de loin à la réalisation de ce modeste travail.

Fazia LEKADIR

Table des matières

Introduction générale	1
Chapitre I : Introduction à la dynamique vibrationnelle des systèmes ordonnés et désordonnés	6
Introduction	6
I. 1. Historique de la dynamique du réseau	7
I. 2. Dynamique vibrationnelle des systèmes ordonnés et désordonnés	8
I. 2. 1. Dynamique vibrationnelle des systèmes ordonnés	9
I. 2. 2. Dynamique vibrationnelle des systèmes désordonnés	12
I. 3. Méthodes théoriques utilisées pour l'étude de la dynamique vibrationnelle des systèmes désordonnés	13
I. 3. 1. La méthode de diagonalisation directe	13
I. 3. 2. La méthode des fonctions de Green	14
I. 3. 3. La méthode de raccordement	15
I. 4. Calcul des densités d'états vibrationnelles	19
Conclusion	20
Références du chapitre I	21
Chapitre II : Propriétés vibrationnelles d'une interface métallique ordonnée de type A/B dans une structure cfc suivant [100]	24
Introduction	24
II. 1. Calcul des limites de la zone de Brillouin d'une structure cfc suivant la direction [100]	25
II. 2. Premières zones de Brillouin et direction de symétrie dans le cas d'une direction [100]	25
II. 3. Dynamique vibrationnelle en volume	26
II. 3. 1. Relations de dispersion	29
II. 3. 2. Interprétation des résultats	29
II. 4. Dynamique vibrationnelle de l'interface	30
II. 4. 1. Matrice dynamique du système perturbé	31
II. 4. 2. Matrice de raccordement	32
II. 5. Résultats de calculs et discussion	34
II. 6. Interprétation des résultats	36
II. 6. 1. Cas d'une interface métallique ordonnée Cu/Pd	37
II. 6. 2. Cas d'une interface métallique ordonnée Cu/Pt	38

II. 7. Spectres des densités d'états vibrationnelles	39
II. 7.1. Densités d'états	40
II. 7.2. Interprétation des résultats	42
Conclusion	43
Références du chapitre II	44
Chapitre III : Propriétés dynamiques d'interfaces métalliques dans des structures cfc, suivant [110]	45
Introduction	45
III. 1. Dynamique du guide d'onde cfc parfait	46
III. 2. Calcul des limites de la zone de Brillouin d'une structure cfc [110]	46
III. 3. Dynamique vibrationnelle en volume	48
III. 4. Dynamique vibrationnelle de l'interface	53
III. 4.1. Description du modèle perturbé	53
III. 4.2. Matrice dynamique du système perturbé	53
III. 4.3. Matrice de raccordement	54
III. 5. Résultats et discussions	57
III. 5.1. Les états localisés	57
III. 5.2. Interprétation des résultats	60
III. 5.3. Les densités d'états vibrationnelles locales	61
III. 6. Application aux cas réels	62
III. 6.1. Etats localisés	62
III. 6.1.1. Cas du système Cu/Pt	62
III. 6.1.2. Cas du système Au/Pd	63
III. 6.1.3. Cas du système Cu/Pd	64
III. 6.2. Densités d'états vibrationnelles	64
III. 6.2.1. Interface Cu/Pt et Pt/Cu	64
III. 6.2.2. Interface Au/Pd et Pd/Au	65
III. 6.2.3. Interface Cu/Pd et Pd/Cu	67
III. 7. Structure A/B/A	69
III. 7.1. Les états localisés au niveau d'une lame insérée	70
III. 8. Application aux systèmes sandwichs réels	74
III. 8.1. Cas d'une interface Au/Pd/Au	74
III. 8.2. Cas d'une interface Cu/Pt/Cu	74
III. 8.3. Cas d'une interface Cu/Pd/Cu	75
III. 9. Densités d'états vibrationnelles locales	76
III. 9.1. Densités d'états vibrationnelles des sites Cu et Pt	76
III. 9.2. Densités d'états vibrationnelles des sites Au et Pd	77
III. 9.3. Densités d'états vibrationnelles des sites Cu et Pd	78
Conclusion	80
Références du chapitre III	81

Chapitre VI : Propriétés vibrationnelles d'une surface alliage ordonnée Cu/Pt[111]	82
Introduction	82
IV. 1 Première zone de Brillouin et direction de symétrie de la surface [111]	83
IV. 2. Représentation d'une structure cristalline cfc[111]	85
IV. 3. Dynamique vibrationnelle d'un guide d'ondes parfait	86
IV. 4. Courbes de dispersion	87
IV. 5. Calcul des facteurs de phase	89
IV. 6. Matrice dynamique du système de surface alliage Cu – Pt[111]	89
IV. 7. Matrice de raccordement	92
IV. 8. Les états localisés	94
IV. 8. 1. Les états localisés au niveau d'une interface propre en platine Pt[111]	94
IV. 8. 2. Les états localisés au niveau d'une interface Alliage Cu- Pt[111]	95
IV. 9. Densité d'état vibrationnelle	96
Conclusion	98
Références du chapitre IV	99
Conclusion & perspectives	100

Introduction générale

Les nanomatériaux sont des solides avec une dimension, au moins, qui varie sur une échelle de l'ordre de quelques nanomètres. L'étude de leurs propriétés physiques présente un grand intérêt d'un point de vue technologique. Ces matériaux peuvent se présenter sous plusieurs formes selon la dimensionnalité du caractère nanostructuré. On peut distinguer les nanoparticules, les films minces, les multicouches, les poudres nanostructurées (particules microniques constituées de grains nanométriques), les alliages nanocristallins (nanograins cristallins au sein d'une matrice métallique amorphe), les clusters dispersés dans une matrice, etc.

Ces matériaux ont une proportion atomique relativement importante comprise dans les surfaces (nanoparticules), les interfaces (multicouches, nanocristallins) et au sein des joints de grain (poudres nanostructurées). Ils possèdent des propriétés physiques assez différentes de celles des matériaux microcristallins et revêtent un aspect fondamental important. Leur étude a été très ouverte dès les années 90 et leurs applications constituent un des challenges technologiques actuellement [1].

Les surfaces et les interfaces, possèdent un environnement atomique très atypique. Les atomes ont une coordination et une structure électronique différentes par rapport à ceux du volume. Il en résulte que les structures de la surface et de l'interface peuvent être totalement différentes de celle de volume. Cette dernière peut être vue, idéalement, comme un empilement compact et régulier d'atomes. Il existe au sein du cristal des plans de haute symétrie, où la densité des atomes est plus élevée qu'ailleurs. Ces plans atomiques denses apparaissent naturellement lorsque le cristal est taillé; ce sont aussi des plans naturels de croissance des cristaux, et ils forment des facettes caractéristiques observables à l'échelle macroscopique.

Les études concernant les surfaces des solides et les interfaces entrent divers matériaux ont connu un développement important ces dernières années, notamment les propriétés électroniques et dynamiques. Les conséquences scientifiques et les applications industrielles paraissent fort importantes. La maîtrise des phonons de surface dans une structure cristalline semi-infinie est importante pour toute application industrielle. En 1912, Born et Von Karman [2] fournirent la première théorie microscopique des phonons de volume dans un réseau cristallin à trois dimensions et donnèrent ainsi naissance à la théorie de la dynamique des

réseaux cristallins. Cette théorie ainsi que ses nombreuses applications sont discutées dans plusieurs références [3-6].

Les systèmes cristallins réels ne sont jamais des cristaux parfaits. Ils présentent toujours de nombreux défauts. Ces derniers sont soit présents à l'équilibre thermique ou non, soit introduits lors de la fabrication du matériau ou encore lors de leurs utilisations. Les propriétés physiques et chimiques macro - et microscopiques des systèmes (élasticité, plasticité, fragilité, stabilité, mobilité, etc.) sont très souvent directement reliées à la présence et à la nature de ces défauts. L'étude des défauts dans les métaux est par conséquent, un vaste domaine de recherche en métallurgie et plus généralement en physique du solide. Les techniques expérimentales ne sont pas toujours en mesure de fournir une interprétation satisfaisante de leurs propriétés (taille des défauts, complexité des structures, énergies, ...). Dans ce cas là, les simulations numériques, et en particulier, la modélisation à l'échelle atomique sont des outils très utiles pour interpréter certains de ces mécanismes élémentaires physiques qui ont lieu dans le matériau [7].

Malgré toutes ces limitations que nous venons d'évoquer et le fait que bien d'autres détails ne sont pas pris en compte dans la conception du modèle, ces simulations permettent une grande flexibilité par rapport aux informations détaillées fournies par d'autres méthodes de calculs numériques. Elles permettent également des comparaisons avec des mesures expérimentales, telles que la diffraction d'électrons, la microscopie à effet tunnel, etc. Comme nous le verrons par la suite, ces simulations permettent d'atteindre un but principal : reproduire les morphologies de croissance des surfaces réelles avec des ingrédients bien déterminés, modifiables à souhait, et par conséquent de voir l'effet de tel ou tel mécanisme microscopique sur la morphologie de la surface. Ce type de simulation a aussi l'avantage de pouvoir vérifier ou d'écarter certaines hypothèses théoriques [8].

Il y a essentiellement deux motivations pour toute étude théorique des propriétés physiques, en générale et vibrationnelles, en particulier, d'un système nanostructuré. La première est le développement d'un plan approprié pour décrire l'effet des défauts sur les propriétés de localisation et la seconde est reliée au rôle de la détermination des constantes de forces interatomiques dans la construction de la matrice dynamique et l'utilisation des structures. Comme le montre la littérature, l'outil mathématique pour étudier ce phénomène n'a cessé d'être approfondi et généralisé pour qu'il soit adapté aux différentes structures des matériaux [9].

L'étude des phonons au voisinage d'une inhomogénéité est complexe et diffère de celle d'un guide d'ondes parfait. L'inhomogénéité modifie considérablement les propriétés du système; en donnant naissance à de nouveaux états localisés au voisinage des zones perturbées et elle assure la diffusion de phonons vers le volume.

De plus, les inhomogénéités modifient les propriétés mécaniques et thermiques de la structure, considérée par la physique du solide comme un réseau cristallin et par la mécanique ondulatoire comme un guide d'ondes. Les ondes diffusées permettent une analyse approfondie des propriétés vibrationnelles du guide d'ondes (empreinte caractéristique). La connaissance de ces dernières présente un intérêt important dans plusieurs domaines d'application de la technologie moderne, entre autres la catalyse, la corrosion, la métallurgie, l'aéronautique et l'optoélectronique [10].

Ce travail de thèse constitue une étude théorique accompagnée de simulations numériques, consacrée à la description de la dynamique des interfaces et surfaces métalliques dans des structures cubiques à faces centrées, suivant les trois directions de haute symétrie à savoir [100], [110] et [111]. Dans cette optique, la modélisation numérique est nécessaire en vue d'une utilisation technologique optimisée des surfaces et interfaces et du développement de nouveaux matériaux. La méthode de raccordement [11-13], que nous employons dans cette thèse, a été étendue avec succès aux calculs des propriétés de diffusion d'ondes élastiques dans les systèmes de basses dimensions.

L'objectif de ce travail est de comprendre la dynamique des matériaux cfc en présence d'un défaut. Nous examinons aussi l'influence des surfaces et les interfaces à cristallisation cubique à faces centrées sur les propriétés vibrationnelles des matériaux, d'une manière générale, c'est la compréhension de l'impact et le rôle des surfaces et les interfaces sur les propriétés vibrationnelle de ces systèmes.

L'ensemble du travail que nous présentons est structuré de la façon suivante :

Dans le premier chapitre nous avons présenté les notions de base de la dynamique vibrationnelle et les différentes méthodes utilisées pour les systèmes désordonnés. Nous détaillons la méthode théorique que nous avons appliquée pour mener à bien ce travail, à savoir la méthode de raccordement introduite pour la première fois par Feuchtwang [14], reprise et appliquée par le Professeur A. Khater et ses collaborateurs.

Le deuxième chapitre est réservé à l'étude vibrationnelle d'une interface métallique de type A/B dans des structures cubiques à faces centrées suivant la direction [100]. Cette interface est obtenue par juxtaposition de deux matériaux à maillages semblables, nous avons calculé la relation de dispersion pour un guide d'ondes parfait et aussi les états localisés au niveau de

cette interface en considérant les différents cas de la constante élastique, à savoir, le cas de l'adoucissement, l'homogénéité et le durcissement, nous avons aussi calculé les densités d'états associées aux sites localisés dans la zone perturbée.

Le troisième chapitre est subdivisé en deux parties : la première est une étude d'interface de type A/B, suivant la direction [110] ; quant à la deuxième est l'étude des structures de type sandwich, A/B/A, suivant la direction [110]. Nous avons aussi calculé les états localisés au niveau des zones perturbées, par application de la méthode de raccordement. Par la suite, nous avons calculé les densités d'états associés aux sites atomiques des différentes inhomogénéités structurelles.

Le quatrième chapitre est consacré à une application de notre étude sur une surface métallique Cu-Pt(111), obtenue par dépôt d'atomes de cuivre sur un substrat de platine orienté suivant la direction [111]. Nous avons calculé les états localisés de la surface propre Pt(111) utilisée comme référence, et pour la surface métallique Cu-Pt(111) et aussi nous avons calculé les densités d'états pour les deux cas. Nous terminons la thèse par une conclusion générale et nous donnons les perspectives offertes par ce travail.

Référence

- [1] H. Guérault, Thèse de doctorat Université du Maine, Le Mans (2000).
- [2] M. Born von Karman, *Phys. Z.*, 13, 297 (1912).
- [3] M. Born and K. Huang, *Dynamical theory of crystal lattices* (Oxford University Press, New York, 1954).
- [4] G. Liebfried, *In handbuch der physik*, (Springer-Verlag, Berlin, 1955).
- [5] G. Liebfried and W. Ludwig, *Solid state physics*, edited by F. Seitz and Turnbull (Academie Press Inc, New York, 1963), vol. 12, p.275.
- [6] A. A. Maradudin, E. W. Montroll and G. H. Weiss, *Solid State Physics*, edited by F. Seitz and Turnbull (Academie Press Inc., New York, 1963), Supl., vol. 3.
- [7] D. Kandaskalov, Thèse de doctorat, Université de Toulouse (2013).
- [8] H. Ajmi Ben Hadj. Thèse de doctorat Université de Clermont-Ferrand II, (2007).
- [9] M. Belhadi, R. Tigrine, A. Khater and J. Hardy, *Phys. Chem. News* 8, 23 (2002).
- [10] H. Aouchiche and M. S. Rabia, *Phys. Chem. News* 8, 32 (2002).
- [11] B. Bourahla, O. Rafil, R. Tigrine and A. Khater, *J. Phys. Condens. Matter* 18, 8683 (2006).
- [12] G. Belkacemi and B. Bourahla, *Superlattices and Microstructures* 85, 226 (2015).
- [13] G. Belkacemi and B. Bourahla, *Inter. J. Modern Phys. B* 31, 1750155 (2017).
- [14] T. E. Feuchtwang, *Phys. Rev.* **155**, 731 (1967).

Chapitre I

Introduction à la dynamique vibrationnelle des systèmes ordonnés et désordonnés

Objectif du chapitre

L'objectif de ce chapitre est de présenter un ensemble d'outils mathématiques et les méthodes qui permettent de décrire le mouvement des atomes dans différentes structures en présence de surfaces et interfaces. Tout d'abord, nous rappelons les outils de base qui sont nécessaires pour mener à bien nos différents calculs. Puis, nous présentons en détails comment obtenir la matrice dynamique des différents systèmes examinés. Ces matrices sont introduites dans des programmes informatiques élaborés par les membres de notre équipe de recherche, pour calculer les propriétés vibrationnelles.

Introduction

L'étude des propriétés physiques des matériaux, à l'échelle nanométrique, présente un intérêt immense dans les domaines scientifiques et industriels. En effet, lorsqu'on diminue la taille d'un objet pour atteindre une taille nanométrique, les propriétés physiques de ces objets seront modifiées. Le développement de la science des matériaux et plus particulièrement de la physique de l'état condensé a poussé les physiciens et les chimistes à comprendre que les propriétés d'un matériau dépendaient étroitement de sa structure (défauts compris).

En parallèle, l'étude de la dynamique des réseaux parfaits a suscité un intérêt considérable. Son développement a été rendu possible grâce au développement des techniques expérimentales. Ces dernières permettent d'avoir accès aux propriétés à partir des courbes de dispersion obtenues par diffusion de neutrons. Par ailleurs, un intérêt de la connaissance précise de la dynamique d'un réseau parfait est qu'elle sert de base à une description d'un réseau perturbé par des défauts atomiques [1].

Le problème de la dynamique de réseau est de chercher et de caractériser les modes de vibration d'un cristal. Il s'agit de calculer les énergies ou les fréquences de vibration des phonons en fonction de leur vecteur d'onde q . Les grandeurs nécessaires aux calculs des fréquences sont les constantes de force entre les différentes paires d'atomes.

La suite du chapitre est structurée comme suit, après la présentation du formalisme de la dynamique de réseau classique dans lequel interviennent les constantes de force, nous décrivons les principaux modèles phénoménologiques utilisés dans la littérature pour accéder aux spectres de phonons [2].

I. 1. Historique de la dynamique du réseau

La dynamique des réseaux cristallins, est une branche importante en physique de l'état solide [3]. Nous citons : « Planck's Theory of Radiation and the Theory of Specific Heat » un article qui a été publié par Einstein en 1907 [4], « On Vibrations in Space Lattices » par Born et Von Karman en 1912 et « On the Theory of Specific Heat » par Debye dans la même année [5]. Plusieurs autres articles portent sur la dynamique des réseaux cristallins, sans oublier ceux de Debye et de Waller sur l'influence de la température sur les diffusions des rayons X par un cristal. Dans les années 1920, Peierls [6-7] apporta des contributions fondamentales à la théorie de la conductivité thermique et de la conductivité électrique incluant la dynamique du réseau cristallin, et dans les années 1930, Blackman montra les limites de la théorie (simplifiée) de Debye sur la chaleur spécifique et premières publications sur les effets anharmoniques dans l'absorption de radiation infra-rouge par des cristaux ioniques [8-11]. Le travail mentionné est basé sur la théorie formelle de la dynamique du réseau cristallin en prenant en compte toutes les propriétés, dont thermiques, des réseaux cristallins. Ce n'est qu'en 1940 que Kellermann [12-13] fit la première tentative, avec un succès mitigé, pour prédire les propriétés dynamiques d'un cristal à partir d'outils s'approchant des « premiers principes » (first principles), et c'est à la fin des années 1950 que le développement, de la technique de diffusion inélastique par les neutrons, a rendu possible, pour la première fois, l'acquisition d'une connaissance détaillée du spectre des vibrations du réseau cristallin. Le développement de cette technique expérimentale, dont le précurseur est Brockhouse [14-16] a probablement constitué la principale impulsion de l'activité florissante sur le sujet de la dynamique des réseaux cristallins dans les années suivantes. La théorie formelle de la dynamique des réseaux cristallins, dans le cadre de l'approximation harmonique, repose désormais sur une fondation solide, largement grâce aux travaux de Born et de ses

collaborateurs, et elle a été formalisée par Maradudin, Montroll et Weiss dans un livre synthétique [17].

L'intérêt de la communauté scientifique s'est accrue jusqu'aux années 1990 autour de la physique des réseaux cristallins, comme en atteste l'abondance de travaux pointus, théoriques qu' et expérimentaux, sur les spectres de vibrations cristallins, la théorie des phonons, le transport thermique, etc. Les simulations numériques sont devenues des outils incontournables dans l'étude théorique des interactions phononiques et de la dispersion des phonons. Mais jusqu'à nos jours, au début de la deuxième décennie du vingtième siècle, les approximations de Debye et Einstein pour les spectres de dispersion des phonons, et des approximations éclipsant toutes les propriétés physiques inhérentes à l'anharmonicité, sont utilisés pour la résolution des problèmes relatifs à la dynamique des cristaux, même les lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, sont encore approximées d'une manière assez grossière.

I. 2. Dynamique vibrationnelle des systèmes ordonnés et désordonnés

Lorsque les atomes sont liés les uns aux autres par les liaisons chimiques, on observe qu'ils ont des distances à l'équilibre bien déterminées, à condition que leur énergie totale soit au minimum. Dans un solide, ce minimum est atteint lorsque tous les atomes sont dans un environnement identique, ce qui conduit à l'arrangement périodique tridimensionnel, c'est-à-dire à un état cristallin. L'existence de la périodicité simplifie considérablement la description théorique d'un solide. Bien qu'un solide réel ne possède jamais une périodicité parfaite, on fait l'hypothèse de la périodicité et on traite les défauts comme une perturbation du solide parfait.

Les atomes dans un matériau se placent, en général, sur un réseau cristallin. Ces atomes, ne sont pas immobiles mais, effectuent des déplacements et des oscillations en fonction de l'agitation thermique autour de leur position d'équilibre [18]. L'ordre à longue portée, dans ces solides, permet aux oscillations locales de se propager comme des ondes élastiques au sein du système.

La théorie classique des phénomènes vibrationnelles, dans les réseaux cristallins, a été formulée pour la première fois par les physiciens Born et Von Karman [19], en terme des conditions aux limites périodiques. La dynamique des réseaux est étudiée par plusieurs auteurs, citons Leibfried [20], Born et Huang [21], Maradudin, Montroll et Weiss [22].

Pour étudier les propriétés physiques liées à la dynamique vibrationnelle, dans les solides cristallins, et présentant des défauts de structure, plusieurs techniques de calcul ont été développées et adaptées; par exemple on peut citer la méthode de diagonalisation directe, la méthode des fonctions de Green et la méthode de raccordement.

Dans la suite, on rappelle quelques notions de base sur la dynamique vibrationnelle dans les solides cristallins infinis, en plus, on définit quelques méthodes appropriées pour l'étude des systèmes désordonnés, et en fin une présentation détaillée du formalisme de la technique de raccordement sur laquelle s'appuie notre travail.

I. 2. 1. Dynamique vibrationnelle des systèmes ordonnés

La théorie de base de la dynamique des cristaux, dans l'approximation harmonique, est bien établie, et un grand nombre de revues existent sur ce sujet, est possible de distinguer parmi les traitements cités deux types d'approche dans l'établissement des équations du mouvement. La première consiste à utiliser comme coordonnées de base les déplacements cartésiens de tous les atomes. Aucune relation, imposée par la symétrie du cristal, n'est supposée parmi les déplacements cartésiens. Cette dernière convient, particulièrement, bien au traitement des vibrations cristallines de cristaux ioniques, c'est à dire de cristaux dans lesquels les déplacements des atomes sont éventuellement dus à des forces qui agissent de manière isolée. La seconde approche constitue l'approximation du corps rigide et permet de décrire les vibrations de réseau de cristaux moléculaires sans que l'on puisse traiter les vibrations internes des molécules. Il convient donc de combiner ces deux idées pour rendre compte des déformations moléculaires et ainsi de traiter les vibrations internes et les vibrations de réseau simultanément. Dans les problèmes dynamiques, il convient de choisir judicieusement les coordonnées dynamiques de façon à simplifier les équations du mouvement. Dans un cristal, les déplacements des atomes d'une molécule effectuant un mouvement de vibration sont, de façon générale, exprimés comme des combinaisons linéaires de déplacements indépendants. Si la molécule contient n atomes, le nombre de ces coordonnées de déplacements indépendants sera $3n$ [23].

Un solide cristallin est constitué par une répétition périodique, dans les trois dimensions de l'espace, d'un motif atomique ou moléculaire, appelé maille. Cet arrangement régulier est appelé réseau cristallin, et les points qui le constituent sont appelés nœuds du réseau. La périodicité d'un cristal est décrite par des vecteurs positions qui localisent chaque maille élémentaire du cristal dans l'espace.

Considérons une cellule atomique composée de N sites qu'on peut exciter par un mode vibrationnel de fréquence angulaire ω . Soient \vec{a}_1 , \vec{a}_2 et \vec{a}_3 les trois vecteurs de base définissant la maille élémentaire du système considéré. Dans ces considérations, un atome est localisé par un vecteur position donné par :

$$\vec{r}_0 = m_1 \vec{a}_1 + m_2 \vec{a}_2 + m_3 \vec{a}_3 \quad (1.1)$$

Où m_1 , m_2 et m_3 sont des entiers naturels qui peuvent être positifs, négatifs ou bien nuls.

Sous l'action des fluctuations thermiques, l'atome ne reste pas sur une position fixe. A l'instant t , la position du $l^{\text{ème}}$ atome sera désignée par le vecteur $\vec{r}(l, t)$:

$$\vec{r}(l, t) = \vec{r}_0(l, t) + \vec{u}(l, t) \quad (1.2)$$

Avec :

$\vec{r}_0(l)$ représente la position de l'atome l dans la configuration correspondant au minimum d'énergie et $\vec{u}(l, t)$ est le déplacement par rapport à cette position d'équilibre.

Pour étudier le mouvement de ces atomes, on applique la deuxième loi de Newton :

$$m(l) \frac{d^2 \vec{r}i}{dt^2} = \sum \vec{F} \quad (1.3)$$

En tenant compte de l'approximation harmonique qui est une description simple du potentiel d'interaction total rendue possible par les très petits déplacements atomiques au voisinage de l'équilibre, associée au modèle des forces centrales, l'équation de mouvement d'un atome occupant le site l s'écrit sous la forme :

$$m(l) \frac{d^2 u_\alpha(l, t)}{dt^2} = \sum_{l' \neq l} \sum_{\beta} \left(\frac{r_\alpha r_\beta}{r^2} \right) k(l, l') [u_\beta(l, t) - u_\beta(l', t)] \quad (1.4)$$

α et β représentent les trois directions cartésiennes x , y , et z , et $m(l)$ est la masse de l'atome situé au site l , $\vec{u}_\alpha(l, t)$ l'amplitude de vibration suivant la direction α , et r_α et r_β sont, respectivement, les composantes cartésiennes selon les directions α et β du vecteur $\vec{r}(l, l')$ joignant les positions d'équilibres des atomes aux sites l et l' , r est le module du vecteur $\vec{r}(l, l')$, $k(l, l')$ la constante de force entre les atomes des sites l et l' .

En utilisant l'équation (1.4), on peut alors réécrire l'équation (1.3) du mouvement vibrationnel de l'atome l comme suit :

$$\omega^2 m(l) u_\alpha(l, \omega) = \sum_{l' \neq l} \sum_{\beta} \left(\frac{r_\alpha r_\beta}{r^2} \right) k(l, l') [u_\beta(l', \omega) - u_\beta(l, \omega)] \quad (1.5)$$

L'équation (1.5) peut être écrite pour les N atomes contenues dans la cellule élémentaire et selon les trois directions cartésiennes. Nous sommes alors en présence d'un système de $(3N)$ équations du mouvement (il y a 3 degrés de liberté par site cristallographique).

Le modèle du cristal illimité qui peut être construit, en répétant périodiquement dans l'espace le bloc des N atomes d'un cristal fini de même structure, présente l'avantage de la symétrie de translation avec les conditions aux limites (condition de Born Von Karman) permettent de réduire le champ des déplacements du système. En effet, grâce à la périodicité spatiale de l'environnement atomique, deux atomes l et l' , occupant deux sites équivalents du réseau, doivent effectuer à une phase près, les mêmes mouvements vibratoires. Ainsi, leurs amplitudes des vibrations vérifient à tout instant t la relation suivante :

$$\vec{u}(l', \omega) = \vec{u}(l, \omega) \exp^{i\vec{q}\vec{r}(l, l')} \quad (1.6)$$

\vec{q} étant un vecteur d'onde du réseau réciproque du cristal ; $\vec{r}(l, l')$ est le vecteur joignant la position d'équilibre de l'atome au site l à celle de l'atome au site l' .

La relation (1.6) permet de transformer le système d'équation (1.5) en un système de $3N$ équations homogènes à $3N$ inconnues, où N désigne le nombre d'atomes dans le réseau.

L'écriture des $3N$ équations du mouvement sur les différents atomes constitutifs de la maille élémentaire du cristal étudié, combinée à la condition de périodicité, permet d'établir la matrice dynamique qui définit l'état vibratoire du système. Elle est mise en équations par le système matriciel homogène suivant :

$$\left[\omega^2 I - D(r, Z, e^{iQ_x}, e^{iQ_z}) \right] u = 0 \quad (1.7)$$

$D(r, Z, e^{iQ_x}, e^{iQ_z})$ étant la matrice dynamique ($3N \times 3N$) dont les éléments dépendent généralement des paramètres structuraux du solide, des constantes de force entre les différents atomes et du vecteur d'onde \vec{q} ; I est une matrice identité d'ordre ($3N \times 3N$), et $|u\rangle$ étant le vecteur propre des déplacements atomiques à $3N$ composantes.

La condition pour que le système homogène (1.7) ait des solutions en ω^2 non triviales est que le déterminant suivant soit nul :

$$\det[\omega^2 I - D(r, Z, e^{iQ_x}, e^{iQ_z})] = 0 \quad (1.8)$$

Ainsi, grâce à la condition de compatibilité du système (1.8) qui fournit une équation algébrique en ω^2 , nous pouvons déterminer les différents modes de vibration du solide en affectant à chaque vecteur d'onde \vec{q} de la première zone de Brillouin, les $3N$ solutions ω_s telle que $\omega_s > 0$. L'indice $s = 1, \dots, 3N$ numérote les différentes branches de dispersion. Par convention, à chaque fois on a à indexer des courbes de dispersion, on les numérote de bas en haut, en se plaçant au centre de la zone de Brillouin ($\vec{q} \rightarrow 0$).

I. 2. 2. Dynamique vibrationnelle des systèmes désordonnés

Les ondes vibrationnelles des systèmes, de basse dimensionnalité, ont un intérêt théorique et expérimental croissant depuis la fin du 19^{ème} siècle. Les premières études remontent à l'année 1887, lorsque Lord Rayleigh discutera de la présence d'ondes localisées pouvant se propager dans des directions parallèles à la surface pour les milieux isotropes et élastiques. Ces excitations ont été identifiées comme des ondes de surface, car elles sont caractérisées par une décroissance exponentielle de leur amplitude depuis la surface vers le volume et par la relation de proportionnalité entre la fréquence et leur vecteur d'onde. Jusqu'au milieu des années soixante, les applications principales de ces ondes de surface étaient orientées vers l'étude des ondes sismiques se propageant dans la croûte terrestre.

La structure détermine directement certaines propriétés physiques du matériau : notamment la stabilité chimique et la résistance mécanique. D'autres caractéristiques physiques, comme les propriétés thermiques, optiques, magnétiques, et électroniques, dépendent du spectre de vibration du matériau. Par exemple, le transport de la chaleur dans un matériau isolant est régi par les vibrations acoustiques des atomes. L'absence de périodicité selon une direction ne permet pas de calculer un spectre de phonons, comme on le fait dans le cristal parfait.

Cependant, le formalisme précédent, basé sur les conditions aux limites de Born et Von Karman, ne s'applique pas, car l'absence de la symétrie de translation, dans l'une des directions, ne permet pas l'application du théorème de Bloch. Autrement dit, la brisure de symétrie suivant une direction rend difficile la résolution des systèmes d'équations des mouvements vibratoires d'un solide semi-infini. D'où la nécessité d'une méthode adaptée qui permet de résoudre le problème, en passant d'une matrice de défaut rectangulaire dont on ne peut pas déterminer les valeurs et les vecteurs propres à une matrice carrée pour laquelle, on peut les calculer [24].

Quelles sont les méthodes employées pour décrire et expliquer ces propriétés dans les matériaux désordonnés de basse dimension? Parmi ces dernières, on cite la méthode de diagonalisation directe, appelée aussi méthode de Slab, la méthode des fonctions de Green et la méthode de raccordement. C'est sur cette dernière que s'appuie notre modélisation pour l'étude d'une interface dans une structure cubique à faces centrées, suivant les directions [100], [110] et [111].

I. 3. Méthodes théoriques utilisées pour l'étude de la dynamique vibrationnelle des systèmes désordonnés

Le formalisme indiqué dans la section précédente, basé sur les conditions aux limites périodiques de Born et Von Karman, s'applique seulement aux systèmes périodiques. Or, en ce qui concerne l'étude des modes vibrationnels des systèmes perturbés de basse dimensionnalité, la brisure de la symétrie de translation du cristal massif que constitue une surface ou interface ainsi que sa dimensionnalité réduite sont à l'origine d'une grande variété de phénomènes. Elle entraîne des modifications de l'ordonnement des atomes, de la structure électronique et de la dynamique du réseau. Ces modifications sont liées entre autre à la réduction du nombre de coordination des atomes de la dernière couche. On peut citer également l'apparition de phonons propres à la surface ou à l'interface [25], pour cela il est nécessaire d'utiliser de nouvelles méthodes de calcul afin de réaliser un couplage des équations du mouvement d'une couche atomique à l'autre du système semi-infini. Ces méthodes permettent, soit de résoudre des systèmes infinis d'équations, soit de limiter dans une approximation valable le nombre d'équations au niveau du défaut [26-27].

I. 3. 1. La méthode de diagonalisation directe

Cette méthode a été introduite dans sa formulation générale par Clark en 1965. Elle a été appliquée initialement sur un système physique par Allen et *al.* [28-29]. Ils se sont intéressés particulièrement aux modes de surface d'un réseau cubique à faces centrées et aux effets induits par une couche absorbée [30].

Durant les vingt dernières années, cette méthode est apparue comme pratique et puissante pour étudier la dynamique vibrationnelle et magnétique aussi bien pour des surfaces planes que pour des surfaces vicinales [31-36].

Le principe de la méthode consiste à limiter les systèmes étudiés à un nombre fini de plans atomiques dans une direction, (z par exemple), avec une extension infinie dans les deux autres directions cartésiennes x et y . En outre, le nombre de plans utilisés pour la modélisation, doit être suffisamment grand afin de garantir l'existence d'une région dite de volume. Il reste alors à écrire les équations du mouvement des atomes appartenant à la cellule unitaire pour déduire la matrice dynamique. Sa résolution numérique détermine ses vecteurs et ses valeurs propres. Cela permet ensuite de remonter aux propriétés des surfaces en donnant accès aux courbes de dispersion, aux densités spectrales et aux densités d'état, aux vecteurs déplacements et autres grandeurs physiques. Néanmoins, cette méthode présente le désavantage d'utiliser des matrices de tailles importantes, ce qui augmente le temps de calcul lors des simulations numériques [37].

I. 3. 2. La méthode des fonctions de Green

On appelle fonction de Green en physique, la solution élémentaire d'une équation aux dérivées partielles linéaires. Elle a été introduite par Georges Green en 1850 [38], en employant un outil mathématique puissant. Cette méthode a permis à la physique de faire un grand pas dans l'étude de la dynamique des systèmes perturbés. Elle a été appliquée en physique du solide par Slater [39]. Ces dernières années, cette méthode a été la plus utilisée pour l'étude de la dynamique des systèmes réels, avec quelques variantes dans le formalisme mathématique [40-52].

Le principe de la méthode consiste 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 du plan bissecteur de deux plans atomiques consécutifs. L'effet de cette modification sur la dynamique vibrationnelle des atomes constituant le système peut être interprété comme une perturbation qui transforme la matrice dynamique D du système atomique illimité en une matrice D_p ayant la forme suivante :

$$D_p = D + P \quad (1.9)$$

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

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

$$G(\omega^2) = [\omega^2 I - D]^{-1} \quad (1.10)$$

Son équivalent pour le système perturbé peut s'écrire :

$$G_p(\omega^2) = [\omega^2 I - D_p]^{-1}$$

$$G_p(\omega^2) = [\omega^2 I - (D + P)]^{-1}$$

$$\Rightarrow G_p(\omega^2) = [(\omega^2 I - D) \left(I - \frac{P}{(\omega^2 I - D)} \right)]^{-1}$$

$$\Rightarrow G_p(\omega^2) = [(\omega^2 I - D) \{ I - G(\omega^2) P \}]^{-1}$$

D'où la relation matricielle :

$$G_p(\omega^2) = [I - G(\omega^2) P]^{-1} G(\omega^2) \quad (1.11)$$

L'ensemble des états vibrationnels du système perturbé sont alors donnés par les pôles de la fonction $G_p(\omega^2)$ [53-55]. Ils permettent, en général, d'interpréter les changements causés par le défaut sur les spectres de vibration pour les phonons. Pour le calcul détaillé de la matrice, consulter la référence [56].

I. 3. 3. La méthode de raccordement

Cette méthode a été introduite, en 1967, par Feuchtwang lors d'une étude de l'équilibre de la structure statique d'un réseau cristallin semi-infini à 3D [57]. Elle a été reprise en 1987 par Khater et *al.* dans deux articles. Le premier est le développement du formalisme mathématique utilisé, et le second est une application aux surfaces Ni(100) et Ni(100) + c(2x2) [58,59]. Depuis, la méthode de raccordement a été appliquée à l'étude de la dynamique vibrationnelle et du magnétisme de plusieurs systèmes physiques par plusieurs auteurs [60-71].

a) Principe de la méthode

La méthode de raccordement est une approche analytique qui permet de déterminer les grandeurs physiques caractérisant les systèmes désordonnés. L'application de cette méthode à l'étude des ondes élastiques du système consiste à décrire le mouvement de vibration des atomes par un nombre fini d'équations [69]. Son application exige que l'espace du solide (système) soit divisé en trois régions (voir Fig. 1.1) :

➤ *Cas d'une interface*

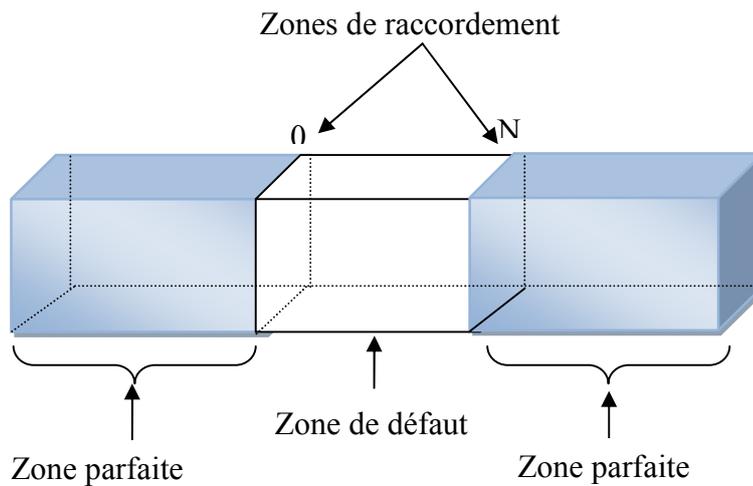


Figure. I.1 Représentation schématique d'une interface métallique semi-infinie selon le concept introduit par la méthode raccordement.

➤ *Cas d'une surface*

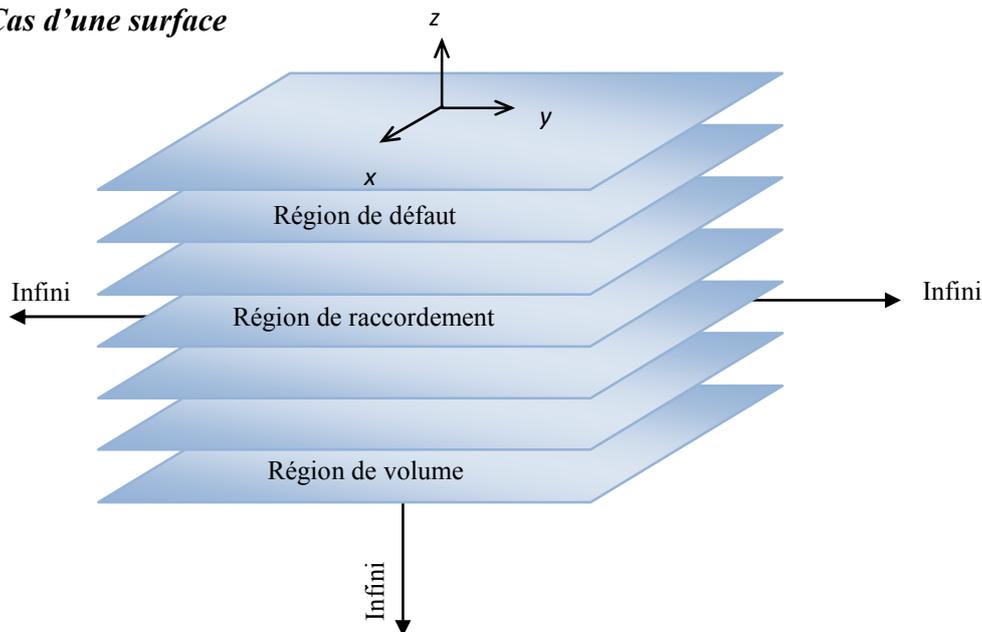


Figure. I. 2 Représentation schématique d'une surface métallique semi-infinie selon le concept introduit par la méthode raccordement.

- **Zone parfaite** : c'est la région où on retrouve le volume; les atomes ne sont pas influencés par la présence du défaut, elle est caractérisée par une périodicité tridimensionnelle, et c'est elle qui permet de tracer les courbes de dispersion en volume.
- **Zone de défaut (ou la zone perturbée)** : c'est la région qui renferme toutes sortes de nanostructures et de défauts, elle est, en général, affectée par la relaxation et la

reconstruction des plans atomiques, la périodicité est perturbée dans cette zone, ce qui conduit à des propriétés différentes de celles du volume.

- **Zone de raccordement** : c'est la limite entre les régions parfaites et les atomes de la zone de défaut. Elle permet de raccorder analytiquement les modes induits par le défaut avec les états de vibrations évanescents de la zone parfaite.

Compte tenu de la brisure de symétrie dans la direction perpendiculaire au défaut (Fig1.1), la relation pour les déplacements dans la direction cartésienne α , entre d'une part un atome l appartenant à un plan p et d'autre part un atome l' appartenant à un plan p' tous deux parallèles au plan du défaut mais se trouvant dans la région du volume, vérifiant la relation suivante :

$$u_{\alpha}(l', p', \omega) = u_{\alpha}(l, p, \omega) \cdot Z^{(p'-p)} \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}(l, l')) \quad (1.12)$$

Où Z est un facteur de phase inconnu, évalué dans la direction normale à l'interface/surface métallique, tel que $|Z| \leq 1$, \vec{q} étant un vecteur d'onde dans la première zone de Brillouin, et α caractérise l'une des trois directions cartésiennes x , y et z .

En insérant (1.12) dans les équations du mouvement (1.5), on obtient un système d'équations pour les déplacements $|u\rangle = |u_{\alpha}(l, \omega)\rangle$ des sites atomiques d'une maille élémentaire dans le volume, qui peut s'écrire analytiquement comme suit :

$$\omega^2 M_l u_{\alpha}(l, \omega) + \sum_{\ell \neq l'} \sum_{\beta} \left(\frac{r_{\alpha} \cdot r_{\beta}}{r^2} \right) k(l, l') u_{\beta}(l, \omega) [Z^{(p'-p)} \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}(l, l')) - 1] \quad (1.13)$$

Ou sous la forme matricielle suivante :

$$\left[\omega^2 I - D(r, Z, e^{iQ_x}, e^{iQ_z}) \right] |u\rangle = 0 \quad (1.14)$$

La condition de compatibilité de ce système matricielle donne accès pour chaque couple (\vec{q}, ω) à une équation polynôme en Z dont les solutions physiques caractérisent les différents modes vibrationnels en volume suivant la direction normale au plan du défaut. Les solutions pour lesquelles $|Z| = 1$, sont des modes itinérants, tandis que celles qui vérifient la condition $|Z| < 1$, correspondent à des modes qui s'atténuent dans le système modèle et qui ne peuvent pas le traverser : ce sont des modes évanescents.

La détermination des états de phonons localisés au voisinage d'un défaut, d'un solide semi infini, commence dans un premier temps par le calcul de ces modes évanescents dans tout le domaine (\vec{q}, ω) . Puis, nous déterminons les équations du mouvement vibrationnel (1.15) pour des atomes appartenant aux sites représentatifs du défaut. Ceci conduit naturellement à un système matriciel rectangulaire D ayant le nombre d'équations plus petit que le nombre de déplacements atomiques inconnus, pour laquelle on ne peut pas déterminer de valeurs et vecteurs propres.

La résolution, d'un tel système d'équations, nécessite une méthode adaptée pour arriver à un système homogène d'équations solubles. Pour ce faire, on décrit pour chaque donnée (\vec{q}, ω) les déplacements atomiques, par des ondes évanescents exprimées comme une combinaison linéaire sur les n modes vibrationnels, issus de l'étude en volume suivant la direction normale au défaut. Ces n modes correspondent aux n racines Z satisfaisant la condition $|Z| < 1$. L'état d'un tel raccordement pourra ce faire à l'aide de la relation suivante :

$$u_\alpha(l, \omega) = \sum_{\nu=1}^n u(\alpha, \nu) Z_\nu^{q_l - q} R_\nu \quad (1.15)$$

Avec :

- q est la troisième coordonnée de l'atome l considéré.
- α parcourt les trois directions cartésiennes x, y et z .
- n est le nombre de modes propageants et évanescents, déterminés par la résolution de la relation explicitant la matrice dynamique (1.14).
- R_ν est un vecteur unitaire qui caractérise le mode évanescent ν dans la base $\{R\}$.
- Z_ν est le facteur de phase correspondant au mode évanescent ν de la matrice dynamique dans le volume.
- $u(\alpha, \nu)$ représente les déplacements atomiques des sites appartenant aux deux demi-espaces parfaits, associés à la contribution du $\nu^{\text{ème}}$ mode évanescent suivant la direction cartésienne α .

La détermination simultanée des facteurs de phases Z_ν caractérisant les modes évanescents et les modes propageants, ainsi que des vecteurs propres correspondants, tous deux issus de l'étude dynamique en volume, loin du défaut, nous permet alors de définir la matrice de raccordement qu'on notera par D_r à l'aide des développements (1.13). Le produit des deux matrices D et D_r ainsi définies, conduit à une matrice carrée D_s caractérisant un système d'équations homogènes qui admet des solutions non triviales, données par :

$$\det [\omega^2 I - D(r, Z, e^{iQ_x}, e^{iQ_z})] = 0 \quad (1.16)$$

Et donc aboutir à la détermination des modes vibrationnels localisés au voisinage du défaut considéré. Ainsi, il est alors possible de déterminer les états localisés de phonons, les densités spectrales et les densités d'états associées aux différents modes localisés au voisinage de ce défaut.

I. 4. Calcul des densités d'états vibrationnelles

Plusieurs propriétés physiques intéressantes induites par les excitations élastiques ou magnétiques, sont obtenues par un calcul de densité d'état $N(\Omega)$ [72], définie d'une manière générale de sorte que la quantité $N(\Omega) d\Omega$ soit le nombre d'états d'énergies compris entre Ω et $(\Omega + d\Omega)$. Dans la limite thermodynamique, $N(\Omega)$ est considérée comme étant une fonction continue qui permet de calculer toutes les quantités thermodynamiques à partir de la fonction de partition dans l'approximation harmonique de la dynamique du réseau. La quantité principale d'intérêt à cet égard est la contribution vibrationnelle à l'énergie libre de Helmholtz, donnée par la définition standard $F = U - TS$, où U est l'énergie interne du système considéré, S son entropie, et T étant sa température absolue [73].

Nous pouvons faire un calcul des densités d'états vibrationnelles au voisinage d'une surface métallique donnée en utilisant un formalisme basé essentiellement sur les fonctions de Green et la méthode de raccordement [74, 75]. Pour cela il faut tout d'abord calculer la densité spectrale. La méthode la plus simple pour avoir cette dernière est d'introduire l'opérateur de Green, qui peut être exprimé d'une manière très compacte en utilisant la méthode de raccordement [75], sous la forme suivante :

$$G(\Omega^2 + i\varepsilon, \varphi_x, \varphi_y, Z, r) = [(\Omega^2 + i\varepsilon)I - D_S(\varphi_x, \varphi_y, Z, r)]^{-1} \quad (1.17)$$

La matrice des densités spectrales, pour un vecteur d'onde parallèle à la direction de l'interface atomique est alors donnée par la relation suivante :

$$\rho_{(\alpha,\beta)}^{(p,p')}(\Omega, \varphi_x, \varphi_y) = 2\Omega \sum_m L_{\alpha m}^p \cdot L_{\beta m}^{p'} \cdot \delta(\Omega^2 - \Omega_m^2) \quad (1.18)$$

Où p et p' représentent deux atomes différents, α et β deux différentes directions cartésiennes, et $L_{\alpha m}^p$ la composante α du vecteur amplitude de vibration du vecteur de site p , pour la branche d'énergie Ω_m .

La densité d'états qui correspond à la somme sur φ_x , et φ_y de la trace des matrices de densités spectrales peut alors s'écrire ainsi :

$$\begin{aligned}
 N(\Omega) &= \sum_{\varphi_x, \varphi_y} \sum_{p\alpha} \rho_{(\alpha, \beta)}^{(p, p')}(\Omega, \varphi_x, \varphi_y) \\
 &= -\frac{2\Omega}{\pi} \sum_{\varphi_x, \varphi_y} \sum_{p\alpha} \lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} [Im G_{\alpha\alpha}^{pp}(\varphi_x, \varphi_y, \Omega^2 + i\varepsilon)]
 \end{aligned} \tag{1.19}$$

Conclusion

Nous avons introduit un outil mathématique qui joue un rôle très important dans la compréhension des différents phénomènes au voisinage d'une variété de défauts. La méthode théorique que nous allons appliquer dans les chapitres qui suivent est une suite aux différents travaux sur la méthode de raccordement initié par Feuchtwang, puis elle a été reprise par Jacob Szeftel et Anoine Khater et ses collaborateurs (Tigrine Rachid, Boualem Bourahla et Rabah Chadli, ...).

Références du chapitre I

- [1] P. Plumelle, M. Vandevyver, *Condens. Matter Phys., Superconductivity and Superfluidity* 8, 29 (1976).
- [2] Y. Nassour, Thèse de Doctorat, Université Paul Verlaine-Metz, France (2008).
- [3] W. Cochran, *Critical Reviews in Solid State and Material Sciences* 2, 1-44 (1971).
- [4] A. Einstein, *Annalen der Physik* 22, 180 (1907).
- [5] P. Debye, *The Collected Papers of Peter, J.W. Debye*, 650 (1912).
- [6] R. Peierls, *Annalen der Physik* 3, 1055 (1929).
- [7] R. Peierls, *Ann. Phys., Lpz* 4, 121 (1930).
- [8] M. Blackman, *Proceedings of the Royal Society of London, Series A-Mathematical and Physical Sciences* 148, 365-383 (1935).
- [9] M. Blackman, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* 148, 384-406 (1935).
- [10] M. Blackman, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* 159, 416-431 (1937).
- [11] M. Blackman, *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*, (Cambridge, Press.), Vol. 33, 94 (1937).
- [12] E. W. Kellermann, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* 238, 513 (1940).
- [13] E. Kellermann, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* 178, 17-24 (1941).
- [14] B. Brockhouse and D. Hurst, *Phys. Rev.* 88, 542 (1952).
- [15] B. Brockhouse and A. Stewart, *Phys. Rev.* 100, 756 (1955).
- [16] B. Brockhouse, *Phys. Rev. Lett.* 2, 256 (1959).
- [17] A. A. Maradudin, E. W. Montroll and G. H. Weiss, *Theory of lattice dynamics in the harmonic approximation*. (Academic press New York and London, 1963).
- [18] C. Kittel, *Introduction à la physique de l'état condensé*, 6^{ème} Edition- Dunod (1995).
- [19] M. Born and T. Von Karman, *Z. Phys.* 13, 297 (1912).
- [20] Liebfried, *Handbuck der Physik*, edited by S. Flugge, Vol VII, Part I, p.104. (Springer-Verlag, Berlin, 1995),
- [21] M. Born and K. Huang, *Dynamical Theory of Crystal Lattice*, (Oxford University Press, New York, 1954).
- [22] A. A Maradudin, E.W. Montrol, G. H.Weiss and I. P. Ipatova, *Theory of lattice Dynamics the Harmonic Approximation*, Solid State Physics, Suppl.3 (Academic Press, New York, 1971).
- [23] G. Vergoten, *Mouvement de vibration intra- et intermoléculaire de molécules chaines*, Université des sciences et Technique de Lille 1, (1977).
- [24] G. I. Stegemann and F. Nizolli, *Surface Excitation*, ed. By V. M. Agronovich and R. London, (Amsterdam: North Holland, 1984).
- [25] V. E. Marsico, Thèse de Doctorat, Ecole Polytechnique de Lausanne, Suisse (1995).
- [26] G. Belkacemi, Thèse de Doctorat, Université M. Mammeri de Tizi-Ouzou (2015).
- [27] M. Boucherrab, Thèse de Doctorat, Université M. Mammeri de Tizi-Ouzou (2015).
- [28] R. E. Allen, G. P. Alidrege, et FW DE Wette, *Phys. Rev* 4, 1648 (1971).

- [29] R. A. Allen, Surf. Sci. 76, 91 (1978).
- [30] R. E. Allen, G. P. Alldredge and F. W. De Wette, Phys. Rev. 4, 1648 (1971).
- [31] J. E. Black and P. Bopp, Surf. Sci. 140, 275 (1984).
- [32] A. Lock, J. P. Toennies, G. Witte, J. Elec. Spec. & Related Phenomena, 54/55, 309 (1990)
- [33] P. Knipp, Phys. Rev. B 43, 6908 (1991).
- [34] B. Bourahla, Mémoire de Magister, Université M. Mammeri de Tizi Ouzou (2001).
- [35] R. Chadli, Thèse de Doctorat, Université M. Mammeri de Tizi Ouzou (2012).
- [36] M. Belhadi, R. Chadli, A. Khater and M. Abou Ghantous, Eur. Phys. J. Phys 37, 25 (2007)
- [37] B. Bourahla, Thèse de doctorat, Université M. Mammeri de Tizi ouzou (2007).
- [38] G. Green, J. für die reine und angewandte Mathematik 39, 73 (1850).
- [39] J. C. Slater: *Quantum Theory of Molecules and Solids*, (M. C. Graw-Hill, New York, London, 1965).
- [40] L. Dobrzynski, Surf. Sci. Reports 6, 119 (1986).
- [41] L. Dobrzynski and D. L. Mills, J. Phys. Chem. Solids 30, 1043 (1969).
- [42] P. Masri, G. Allan, L. Dobrzynski, J. de Phys. 33, 85 (1972).
- [43] G. Armand, Phys. Rev. B 14, 2218 (1976).
- [44] G. Armand, J. de Phys. 38, 989 (1977).
- [45] G. Armand and P. Masri, Surf. Sci. 130, 89 (1983).
- [46] F. Garcia-Moliner, Annl. Phys. (Paris) 2, 179 (1977).
- [47] R. A. Allen, Surf. Sci. 76, 91 (1978).
- [48] G. Treglia and M. C. Desjonqueres, J. de Phys. 46, 987 (1985).
- [49] P. Knippet B. M. Hall, Surf. Sci. 224, 983 (1989).
- [50] A. Kara, C. S. Jayanthi, S. Y. Wu et F. Ercolessi, Phys. Rev. Lett. 72, 2223 (1994).
- [51] E. J. Mele and M. V. Pykhtin, Phys. Rev. Lett. 75, 3878 (1995).
- [52] A. Kara, S. Durukanoglu and T. Rahim, Phys. Rev. B 53, 15489 (1995).
- [53] H. Grimech and A. Khater, Surf. Sci. 323 (1995).
- [54] H. Grimech and A. Khater, Surf. Sci. 341 (1995).
- [55] A. Virlovet, H. Grimech, A. Khater, Y. Pennec and K. Maschke, J. Phys. Condens, Matter, 8, 7589 (1996).
- [56] R. Tigrine, Thèse de doctorat d'état, Université M. Mammeri de Tizi-Ouzou (2004).
- [57] T. E. Feuchtwang, Phys. Rev. 155, 731 (1967).
- [58] J. Szeftel and A. Khater, Phys. Rev. C: Solid State Phys. 20, 4725 (1987).
- [59] J. Szeftel, A. Khater, F. Mila, S. D'Addatoet N. Auby, J. Phys. C: Solid State Phys. 21, 2113 (1988).
- [60] A. Khater and W. Czaja, Physica B167, 33 (1990).
- [61] M. Belhadi, A. Khater, O. Rafil, J. Hardy, R.Tigrine, Phys. Stat. Sol. (b) 228, 685 (2001).
- [62] A. Khater, N. Auby, D. Kechrakos, J. Phys.: Condensed Matter 4, 3743 (1992).
- [63] A. Felly, F. Gagel, K. Maschke, A. Virlovet, and A. Khater, Phys. Rev. B 55, 1707 (1997).
- [64] M. Bouatelli, Mémoire de Magister, Université USTHB de Bab-Ezzouar (2007).
- [65] M. Rabia, Thèse de Doctorat, Université M. Mammeri de Tizi-Ouzou (2008).
- [66] B. Bourahla, A. Khater. R. Tigrine. O. Rafil. M. Abou Ghantous, J. Phys. Condens.

- Matter. 19. 266208 (2007).
- [67] M. Belhadi and R.Chadli, Surf. Rev. Lett. 11, 321 (2004).
- [68] G. Le Gal, A. Khater, T. Kaneoshi, Physica A 209, 129 (1994).
- [69] B. Bourahla, A. Khater. O. Rafil, R. Tigrine. J. Phys. Condens. Matter.18, 8683 (2006).
- [70] R. Tigrine, A. Khater, M. Belhadi. O. Rafil, Surf. Sci. 580, 1 (2005).
- [71] M. Belhadi, O. Rafil, R. Tigrine, A. Khater, J. Hardy, A. Virilouvet and K. Maschke, Eur. Phys J. B 15, 435 (2000).
- [72] E. J. Garboczi and M. F. Thorpe, Phy. Rev. B. 32, 7 (1985).
- [73] H. Yildirim, A. Kara, S. Durukanoglu and T. S. Rahman, Surf. Sci. 600, 484 (2006).
- [74] N. N. Chen and M. G. Cottam, Phy. Rev. B. 44, 14 (1991).
- [75] A. Virilouvet, H. Grimech, A. Khater, Y. Pennec, and K. Maschke, J. Phys.: Condens. Mat. 8, 7589 (1996).

Chapitre II

Propriétés vibrationnelles d'une interface métallique ordonnée de type A/B dans une structure cfc suivant [100]

Objectif du chapitre

Après avoir expliqué la méthode de raccordement dans le chapitre précédant, nous présentons le système modèle qui est une interface de type A/B dans une structure cfc [100], puis, nous appliquons notre méthode pour cette interface, et ce dans le but de calculer des grandeurs dynamiques. L'objectif principal est de bien comprendre l'influence de cette interface sur le transport phononique, en variant la constante élastique qui relie l'atome A à l'atome B . En d'autres termes, comprendre le rôle et l'impact de cette interface sur les propriétés vibrationnelles.

Introduction

Aujourd'hui, la technologie moderne permet la fabrication de plusieurs dispositifs physiques à basses dimensions. On parle de films minces, nano objets, et aussi de fils quantiques. Souvent ces derniers ont des structures inhomogènes par l'existence des perturbations qui modifient considérablement les phénomènes physiques, comme le transport électronique, magnétique et thermique et d'autres. Ces inhomogénéités donnent naissance à de nouveaux états localisés à leurs voisinages. En vue de leur intérêt dans différents domaines d'application, plusieurs travaux théoriques et expérimentaux ont été réalisés par A. Fellay (1997) sur le transport des ondes vibrationnelles dans des systèmes de basse dimensionnalité. L'étude des phonons au voisinage d'un défaut est complexe et différente de celle d'un

matériau à l'état massif. L'objectif de ce travail est de bien comprendre certain effet dû à la présence d'un défaut nano-structurel sur les propriétés physiques d'un composé de faibles dimensions. Pour cela, nous proposons une étude théorique de la dynamique vibrationnelle qui localise les ondes élastiques au voisinage d'un défaut cristallin. Dans ce chapitre, nous abordons le problème des phonons localisés au niveau d'une interface métallique suivant la direction [100], reliant deux systèmes différents semi-infinis de structure cubique à faces centrées, cette interface est du type A/B. Les études sont menées en utilisant le formalisme de transport proposé par Landauer et Buttiker [1- 4], dans le cadre de l'approximation harmonique des forces centrales [5], qui décrivent les interactions entre premiers et seconds proches voisins. La méthode utilisée pour cette étude est la méthode de raccordement [6 -13] que nous avons déjà expliqué dans le premier chapitre.

A partir d'un système modèle, notre travail porte sur l'application et le développement des méthodes analytiques et des simulations numériques pour étudier la localisation des ondes vibrationnelles en fonction de la fréquence d'onde excitée, ainsi que certains paramètres physiques qui caractérisent notre système.

II. 1. Calcul des limites de la zone de Brillouin d'une structure cfc suivant la direction [100]

Considérons un atome i dans un réseau semi- infini à trois dimensions, ses coordonnées sont :

$$\vec{R} = x_i\vec{i} + y_i\vec{j} + z_i\vec{k} \text{ dans la base du réseau direct } (\vec{i}, \vec{j}, \vec{k}).$$

Soit une maille élémentaire du réseau direct définie par les vecteurs \vec{a} , \vec{b} , \vec{c} , avec :

$$\vec{a} = a_x\vec{i} + a_y\vec{j} + a_z\vec{k},$$

$$\vec{b} = b_x\vec{i} + b_y\vec{j} + b_z\vec{k},$$

$$\vec{c} = c_x\vec{i} + c_y\vec{j} + c_z\vec{k}.$$

Le volume de cette maille est donné par le produit mixte : $V = \vec{a} \cdot (\vec{b} \wedge \vec{c})$.

La maille du réseau réciproque est définie par les vecteurs \vec{A} , \vec{B} , \vec{C} avec :

$$\vec{A} = 2\pi \frac{(\vec{b} \wedge \vec{c})}{V}, \vec{B} = 2\pi \frac{(\vec{c} \wedge \vec{a})}{V}, \vec{C} = 2\pi \frac{(\vec{a} \wedge \vec{b})}{V}.$$

II. 2. 1^{ère} zone de Brillouin et direction de symétrie dans la direction [100]

- **Réseau direct**

La structure du réseau direct dans la direction [100] est un carré. Ce dernier est formé par les deux vecteurs de base suivants :

$$\vec{a} \begin{pmatrix} a/2 \\ a/2 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \vec{b} \begin{pmatrix} -a/2 \\ a/2 \end{pmatrix}$$

La première zone de Brillouin du réseau carré de la direction (100) est définie dans le réseau réciproque. Elle est représentée sur la figure II. 1 (b). Sur la fig. II. 2 (c), nous avons représenté la première zone de Brillouin réduite, les points remarquables de cette zone sont les points de haute symétrie Γ , X et M

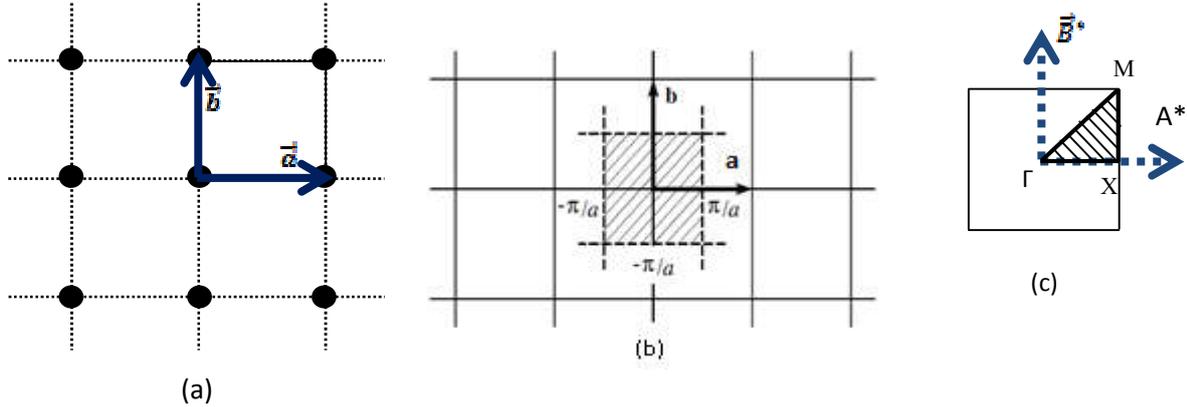


Figure. II. 1. Représentation des réseaux direct et réciproque ainsi que la première zone de Brillouin réduite dans la direction [100] en (a), (b) et (c), respectivement.

- **Réseau réciproque**

Le réseau réciproque du réseau direct de la direction [100] est obtenu à l'aide des deux vecteurs de base \vec{A}^* et \vec{B}^* définis par les relations :

$$\vec{A}^* \cdot \vec{a} = 2\pi$$

$$\vec{B}^* \cdot \vec{b} = 2\pi$$

$$\vec{a} \cdot \vec{B}^* = 0$$

$$\vec{b} \cdot \vec{A}^* = 0$$

Un simple calcul nous permettra d'avoir les résultats suivants :

$$\vec{A}^* \begin{pmatrix} 2\pi/a \\ 2\pi/a \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \vec{B}^* \begin{pmatrix} -2\pi/a \\ 2\pi/a \end{pmatrix} \quad \text{avec} \quad \|\vec{A}^*\| = 2\sqrt{2}\pi/a \quad \text{et} \quad \|\vec{B}^*\| = 2\sqrt{2}\pi/a.$$

II. 3. Dynamique vibrationnelle en volume

Notre système modèle se cristallise dans une structure cubique à face centrée (cfc), avec un paramètre de réseau a dans son état parfait cfc. Chaque atome est entouré de 12 atomes premiers proches voisins, de distance $a/\sqrt{2}$ et 6 atomes seconds proches voisins à une distance a .

Sur la fig. II. 2 ci-dessous, nous représentons un environnement atomique pour un atome « A » dans une structure cubique à faces centrées dans la direction [100]. Les atomes numérotés de 1 à 12 sont les premiers proches voisins, et ceux numérotés de 13 à 18 sont les seconds voisins.

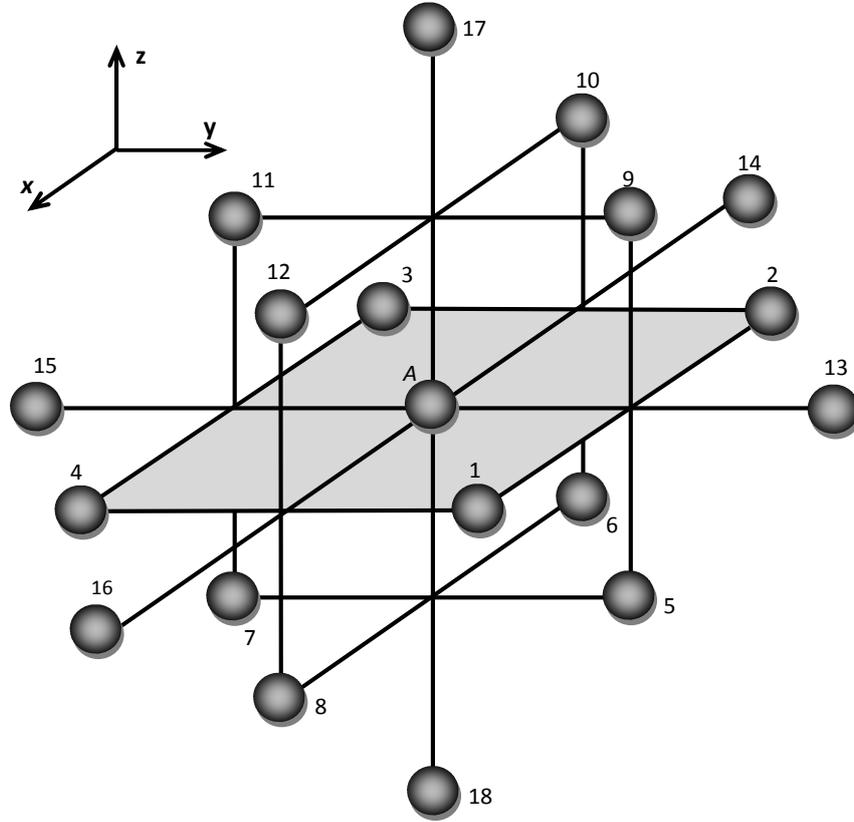


Figure. II. 2. Environnement atomique d'un atome en volume jusqu'au deuxième proches voisins. Les atomes de 1 à 12 se trouvent à une distance $a/\sqrt{2}$, tandis que les atomes de 13 à 18 sont à une distance a .

L'application de la relation (1.4) à un atome en volume, suivant les trois directions cartésiennes (x , y et z), donne un système d'équations du mouvement suivant :

$$[\Omega^2 + \cos\varphi_x(2\cos\varphi_z + Z + Z^{-1}) + 2r(\cos 2\varphi_x - 1) - 4]u_x(A) + [-2\sin\varphi_x\sin\varphi_z]u_y(A) + [i(Z - Z^{-1})\sin\varphi_x]u_z(A) = 0$$

$$[-2\sin\varphi_x\sin\varphi_z]u_x(A) + [\Omega^2 + \cos\varphi_z(2\cos\varphi_x + Z + Z^{-1}) + 2r(\cos 2\varphi_z - 1) - 4]u_y(A) + [i(Z - Z^{-1})\sin\varphi_z]u_z(A) = 0$$

$$[i(Z - Z^{-1})\sin\varphi_x]u_x(A) + [i(Z - Z^{-1})\sin\varphi_z]u_y(A) + [\Omega^2 + (Z + Z^{-1})(\cos\varphi_x + \cos\varphi_z) + r(Z^2 + Z^{-2} - 2) - 4]u_z(A) = 0 \quad (2.1)$$

Dans lequel, $\Omega^2 = \frac{m}{k_1}\omega^2$ est la fréquence normalisée, et $r = \frac{k_2}{k_1}$ est le rapport des constantes de force premiers et seconds voisins k_1, k_2 , respectivement, et Z est le facteur de phase satisfaisant la condition d'évanescence suivant la direction cartésien y . Les facteurs de phases suivant les directions x et z sont définis par $\varphi_x = (\frac{a}{2})q_x$ et $\varphi_z = (\frac{a}{2})q_z$, q_x et q_z étant les composantes suivant x et z du vecteur d'onde du réseau réciproque.

Ce système d'équations peut se mettre sous la forme matricielle suivante :

$$[\Omega^2 I - D(Z, \varphi_x, \varphi_z, r)]|u_\alpha(A)\rangle = 0 \quad (2.2)$$

Où α désigne les trois directions cartésiennes x, y , et z et D étant la matrice dynamique du système en volume.

La résolution du problème aux valeurs propres de la matrice dynamique de volume D permet d'avoir les modes propres Ω_v , ainsi que leurs vecteurs propres correspondants, ce qui permet de tracer les courbes de dispersion en volume.

Pour la matrice dynamique D de l'équation (2.2), des solutions non triviales de ce système nous conduisent à :

$$\det[\Omega^2 I - D(Z, \varphi_x, \varphi_z, r)] = 0 \quad (2.3)$$

Pour décrire le phénomène des phonons localisés dans des systèmes qui englobent des interfaces, nous devons calculer les modes évanescent du système ($Z < 1$) en plus des modes propageant définis dans le guide d'ondes parfait, car la présence des défauts dans un système, couple les différents modes à fréquence Ω constante ; il est donc indispensable de prendre celle-ci comme variable indépendante. On doit considérer pour chaque fréquence Ω donnée, toutes les solutions $Z \leq 1$. Pour cela la méthode de calcul qu'on peut utiliser pour obtenir les solutions est la méthode du déterminant.

La méthode consiste à déterminer les racines caractéristiques du système d'équations linéaires (2.4), pour lequel une solution non triviale requiert que son déterminant soit nul. Il peut alors s'exprimer par le polynôme caractéristique de degré 8 en Z suivant :

$$A_0 + A_1Z + A_2Z^2 + A_3Z^3 + A_4Z^4 + A_5Z^5 + A_6Z^6 + A_7Z^7 + A_8Z^8 = 0 \quad (2.4)$$

Où les coefficients A_n sont des fonctions de Ω , φ_x , φ_z et r . En outre, la symétrie de notre modèle en volume permet de constater que si Z est solution de l'équation (2.4), le facteur de phase Z^{-1} l'est aussi.

Afin de satisfaire la condition d'évanescence qui est $Z < 1$, on ne doit prendre que les 4 valeurs physiquement acceptable pour Z parmi les racines de l'équation. Le champ d'évanescence est alors rigoureusement déterminé en volume pour le système considéré, puisque ces solutions constituent dans l'espace $\{\Omega, \varphi_x, \varphi_z\}$ la base des modes évanescents.

II. 3. 1. Relations de dispersion

Nous avons tracer la courbe de dispersion d'une structure cfc suivant les points de haute symétrie Γ , X, W, K et L que nous avons motionné sur la fig. II. 3.

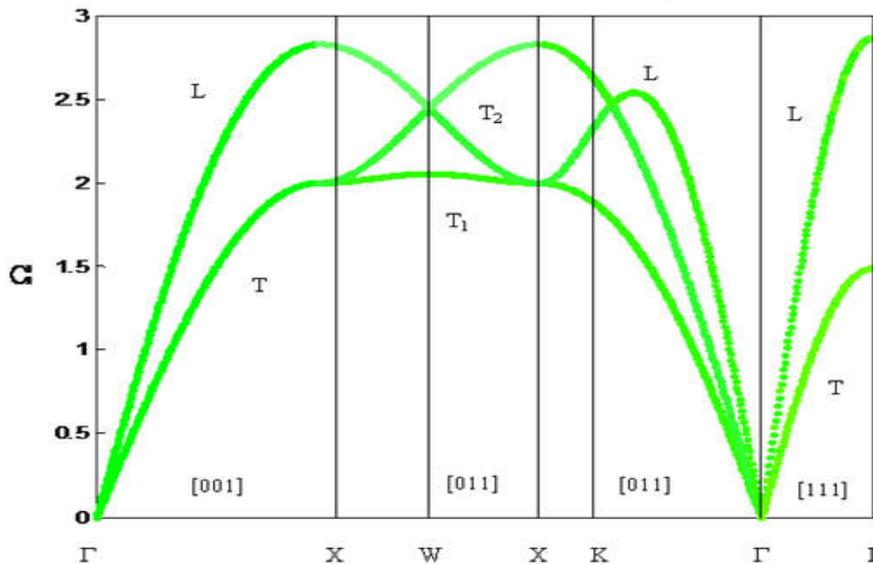


Figure. II. 3. Courbe de dispersion des phonons en volume d'un cristal cubique à faces centrées suivant les directions de haute symétries.

II. 3. 2. Interprétation des résultats

Sur la fig II. 3, nous avons représenté la dispersion au niveau d'un guide d'onde parfait dans une structure cubique à faces centrées, nous remarquons que la loi de dispersion comporte deux branches de Γ vers X : une branche transversale qu'on a noté T pour laquelle la vibration se propage perpendiculairement au mouvement des atomes et une branche longitudinale qu'on a noté L pour laquelle la direction de propagation de la vibration et le déplacement des atomes sont colinéaires. Le même comportement est observé le long de la direction Γ vers L. Au

point X, on remarque que le mode acoustique transversal se dégénère pour donner lieu à deux nouveaux modes transversales qu'on note T_1 et T_2 . Suivant la direction X vers W, on note la présence de trois branches dont deux sont transversales et une autre longitudinale, et c'est le même comportement suivant les deux directions W vers X, et de X vers K. Cependant trois branches acoustiques sont présentes dans l'intervalle $[K\Gamma]$, une longitudinale qu'on note L et deux autres transversales qui sont T_1 et T_2 . L'ensemble des vibrations est décrit pour des vecteurs d'ondes de la première zone de Brillouin, il y a donc N modes propres par branche, où N est le nombre d'atomes formant la cellule unitaire du cristal cfc.

Nos calculs numériques donnés ici pour les courbes de dispersion des phonons en volume du cristal cubique à faces centrées sont comparables aux résultats théoriques donnés par R. Chadli [14] et expérimentaux donnés par d'autres auteurs tels que S. Hong et al. [15].

II. 4. Dynamique vibrationnelle de l'interface

L'existence d'une interface dans un solide brise la symétrie de translation de ce dernier, et conduit à des modes de vibrations supplémentaires apparaissant au niveau de l'interface et inexistant en volume. Ces modes sont caractérisés par de très larges déplacements atomiques près de l'interface et peuvent être distingués en deux classes. La première correspond aux modes localisés en interface dont les fréquences sont en dehors du spectre du volume, ils sont bien localisés près de l'interface, et leur amplitude décroît rapidement depuis l'interface vers le volume. Quand à la deuxième classe, elle correspond aux modes de résonances, dont les fréquences se situent dans le spectre du volume et interagissent ainsi avec les modes du volume, et peuvent pénétrer profondément dans ce dernier.

Le système modèle que nous avons choisi est obtenu par la juxtaposition de deux systèmes semi-infinis A et B à structure cubique à faces centrées. Ce système peut être divisé en trois régions :

- Région (A): représente la région parfaite, de paramètre de maille a , d'atomes de masse m_a et de constantes de force k_a entre premiers proches voisins, et k'_a entre seconds proches voisins.
- Région (B) : représente la région parfaite, de paramètre de maille a , d'atomes de masse m_b et de constantes de force k_b entre premiers proches voisins, et k'_b entre second proches voisins.

- Région couplant (A) et (B) : qui est la zone perturbée, formant le joint atomique entre les deux régions semi-infinies, avec k_{ab} (constantes de force entre premiers proches voisins) et k'_{ab} (constantes de force entre seconds proches voisins) entre l'atome m_a et m_b .

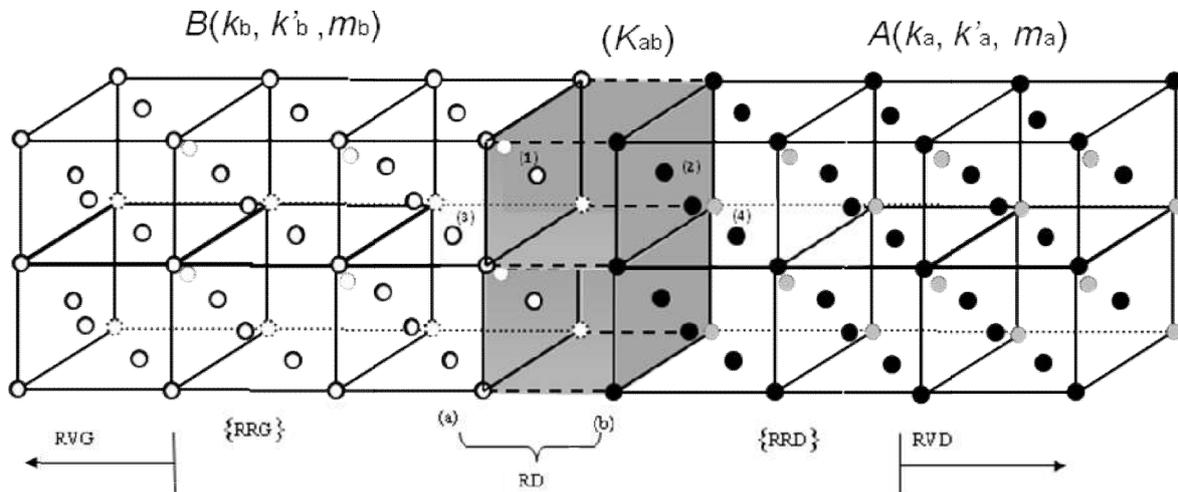


Figure. II. 4. Représentation schématique d'une interface entre deux structures cfc, suivant la direction [100].

II. 4. 1. Matrice dynamique du système perturbé

La matrice dynamique D du système trouve son origine dans l'écriture des équations du mouvement des atomes que nous avons numéroté de 1 à 4. Ces atomes sont choisis de sorte que la région qui les contient, comprend aussi bien des atomes appartenant à la région du défaut (l'interface), ainsi que ceux qui appartient à la région de raccordement présentant un environnement de la région du volume.

L'ensemble de ces équations du mouvement constituent un système linéaire homogène qu'on peut mettre sous forme d'une matrice rectangulaire D . La taille de cette matrice dépend du nombre d'atomes de la zone perturbée, sachant bien qu'il y a trois degrés de liberté par site. Alors il y a plus d'inconnues que d'équations (12 équations et 24 inconnues).

$$\text{Avec } \dim(D) = (m \otimes n) \quad (2.5)$$

m = le nombre d'atomes dans la zone du défaut (interface) plus ceux de raccordement multipliés par trois degré de liberté $((2 + 2) \times 3 = 12)$.

n = m + le nombre d'atomes qui sont reliés directement aux atomes de raccordement multipliés par trois degrés de liberté $(12 + (4 \times 3) = 24)$. Le produit \otimes est le produit tensoriel.

$$[D]. |u\rangle = |0\rangle.$$

$$\begin{aligned} \text{Avec :} \quad & \dim[D] = 12 \times 24, \\ & \dim|u\rangle = 24 \times 1, \\ & \dim|0\rangle = 12 \times 1. \end{aligned}$$

Le $|u\rangle$ constitue un vecteur colonne décrivant les déplacements vibrationnels de tous les atomes d'une maille élémentaire de la zone considérée.

Alors on trouve la matrice (2.6) suivante :

$$D \quad (24 \times 12) \quad (2.6)$$

II. 4. 2. Matrice de raccordement

Le but de cette matrice est d'établir les relations qui permettent de raccorder les déplacements atomiques des sites, qui appartiennent à la zone de raccordement, aux champs vibrationnels des modes évanescents des deux guides d'ondes parfaits. Nous allons représenter les déplacements atomiques des sites appartenant à la région de raccordement par une combinaison linéaire des vecteur $\{R_1, R_2\}$ définissant un espace fini dans l'espace des phases. La connaissance des facteurs de phase $[Z, 1/Z]$, caractérisant les modes évanescents dûs à la présence de l'interface, et déterminés à partir de l'étude précédente en volume, nous permet de faire cet état de raccordement.

Dans ce travail, il y a deux régions de raccordement, une région située à droite et une autre à gauche, nous devons pour cela définir deux base distinctes $\{R_1\}$ et $\{R_2\}$, la première est utilisée pour l'étude du mouvement des atomes qui se trouvent à gauche de l'interface et la deuxième est utilisée pour l'étude du mouvement des atomes se trouvant à droite de l'interface. La dimension des vecteurs $\{R_1\}$ et $\{R_2\}$ est de trois.

Pour un atome appartenant à la région de raccordement à droite, on peut décrire ses déplacements vibrationnels à l'aide de la relation suivante :

$$u'_\alpha(n_x, n_y, n_z) = \sum_j^{i=3} Z_j^{-n_z} A'(\alpha, j) R_{1j} \quad (2.7)$$

Pour un atome appartenant à la région de raccordement à gauche, ses déplacements vibrationnels sont caractérisés à l'aide de la relation suivante :

$$u_\alpha(n_x, n_y, n_z) = \sum_i^{i=3} Z_i^{-n_z} A(\alpha, i) R_{2i} \quad (2.8)$$

α représente les trois directions cartésiennes (ox), (oy) et (oz). A et A' sont les poids pondérés associés aux différents modes évanescents déterminés à l'aide des cofacteurs de la matrice dynamique en volume D définie auparavant. R_{1j} est le vecteur unitaire qui caractérise le mode évanescents j dans la base $\{R_1\}$ de l'espace des phases. R_{2i} est le vecteur unitaire qui caractérise le mode évanescents i dans la base $\{R_2\}$ de l'espace des phases.

Le vecteur $|u\rangle$ décrit les déplacements vibrationnels de tous les atomes d'une maille élémentaire de la zone considérée. Il peut se décomposer en deux parties : la première est notée par $|irr\rangle$, elle est constituée par les déplacements atomiques des deux sites irréductibles formant la région de l'interface ; se sont les atomes (1) et (2) représentés sur la fig. II. 4. Quand à la seconde, notée par $|rac\rangle$, est composée des déplacements des deux zones de raccordement (gauche et droite).

On peut alors écrire :

$$|u\rangle = \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |rac\rangle \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

- $\text{Dim } |irr\rangle =$ nombre d'atome de l'interface fois trois degrés de liberté par chaque atome.
- $\text{Dim } |rac\rangle =$ nombre d'atome de raccordement fois trois degrés de liberté par chaque atome.

On peut écrire la matrice de raccordement des atomes à l'aide de l'expression suivante :

$$|u\rangle = \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |rac\rangle \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} I_d & 0 & 0 \\ 0 & R_1 & 0 \\ 0 & 0 & R_2 \\ 0 & R_3 & 0 \\ 0 & 0 & R_4 \end{bmatrix} \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R_1\rangle \\ |R_2\rangle \end{pmatrix} = D_r \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R_1\rangle \\ |R_2\rangle \end{pmatrix} \quad (2.10)$$

où I_d est une matrice identité, sa taille dépend du nombre d'atomes des sites irréductibles multipliés par trois degrés de liberté par site (6x6).

R_1, R_2, R_3 et R_4 sont des sous matrices, elles dépendent du nombre de modes propageants du système parfait, leurs dimensions est (3x3).

La matrice R_c de dimension (18 x12) est appelée matrice de raccordement.

Le produit de la matrice D obtenue en (2.6) par la matrice D_r donne lieu à une matrice carrée $D_s(12 \times 12)$.

$$[D(12 \times 18)] \cdot [D_r(18 \times 12)] \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R_1\rangle \\ |R_2\rangle \end{pmatrix} = |0\rangle \quad (2.11)$$

Et encore

$$[D_s(12 \times 12)] \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R_1\rangle \\ |R_2\rangle \end{pmatrix} = |0\rangle \quad (2.12)$$

Les états vibrationnels induits par l'existence de l'interface sont déterminés à l'aide de la relation de compatibilité suivante :

$$Det[D_s(12 \times 12)] = 0 \quad (2.13)$$

II. 5. Résultats de calculs et discussion

La présence d'un défaut ou d'une nanostructure implantée dans une structure régulière d'atomes, brise la symétrie de translation dans la direction normale au plan contenant le défaut. La résolution d'un tel phénomène de dynamique du réseau nécessite l'emploi de la méthode de raccordement afin d'aboutir à la connaissance des états vibrationnels localisés. La détermination de ces états au voisinage d'un défaut consiste à mettre en évidence, dans le domaine (Ω, q) de la région de volume, les modes vibrationnels évanescents, générant des déplacements atomiques non nuls.

Les courbes des états énergétiques de phonons d'interface calculées, suivant les directions de hautes symétries des sites irréductibles dans la première zone de Brillouin sont représentées sur les figs. (II .5), (II. 6), et (II. 7), respectivement. Il découle de ces figures que plusieurs modes de vibration localisés apparaissent le long des trois directions de hautes symétrie $\overline{\Gamma X}$, \overline{XM} et $\overline{M\Gamma}$.

a) Cas de durcissement $r = 1.5$

Sur la fig. II.5, nous présentons les états localisés au niveau d'une interface cfc [100], du type A/B dans le cas de durcissement.

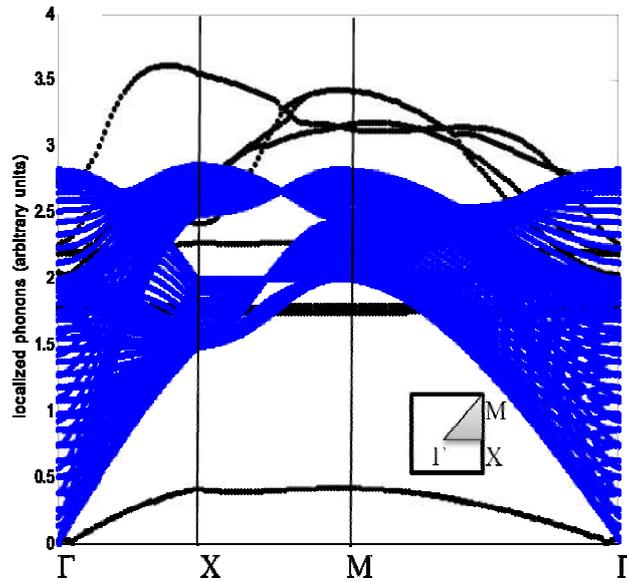


Figure. II. 5. Courbes de dispersion des phonons localisés au niveau d'une interface du type A/B dans une structure cfc suivant [100] avec la bande de phonons en volume dans le cas de durcissement des contraintes au niveau de la zone interface.

b) Cas d'homogénéité $r = 1$

La fig. II.6, présente l'évolution des relations de dispersions des phonons localisés au niveau de l'interface A/B dans la structure cfc. Ce calcul est effectué dans le cas homogène.

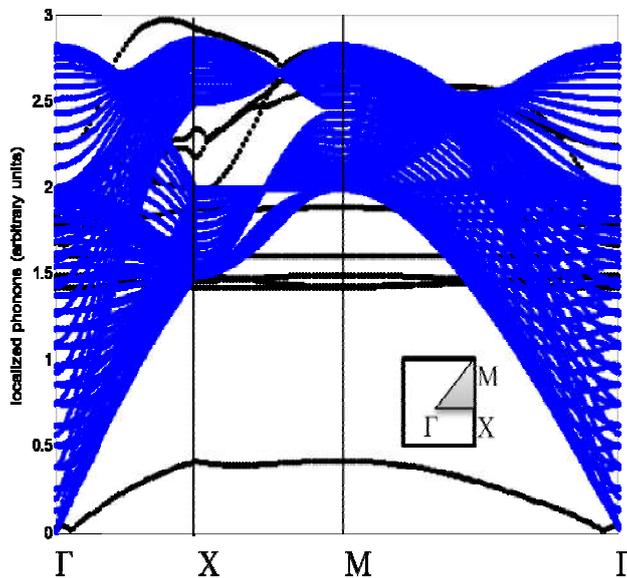


Figure. II. 6. Courbes de dispersion des phonons localisés au niveau d'une interface du type A/B dans une structure cfc suivant [100] avec la bande de phonons en volume dans les cas homogène des contraintes au niveau de la zone interface.

c) Cas d'adoucissement $r = 0.5$

Sur la fig. II. 7, nous présentons les états localisés au niveau d'une interface dans le cas d'adoucissement.

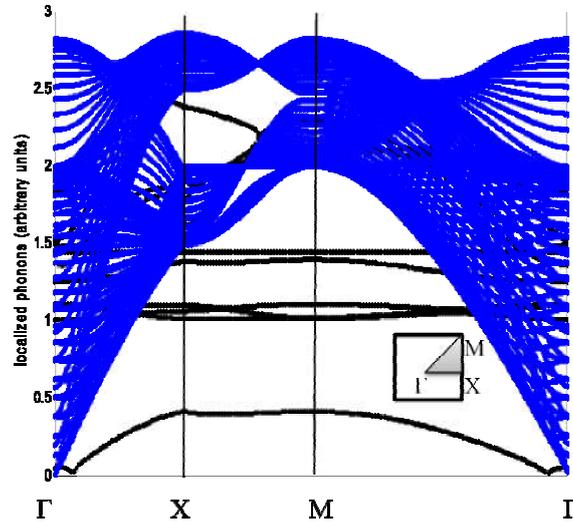


Figure. II. 7. Courbes de dispersion des phonons localisés au niveau d'une interface du type A/B dans une structure cfc suivant [100] avec la bande de phonons en volume dans les cas d'adoucissement des contraintes au niveau de la zone interface.

II. 6. Interprétation des résultats

a) Cas $r = 1.5$

Les résultats sont donnés sur la fig. II. 5; les courbes présentent quatre branches de phonons localisés au-dessus de la bande de phonons du volume. Nous constatons que les branches sont optiques et plus énergétiques que les phonons du volume, de plus le long des trois directions de hautes symétries, nous observons trois branches de phonons localisés au-dessous de la bande passante dont l'énergie est inférieure à celle des phonons du volume et une branche plus énergétique dans le gap de la bande passante.

b) Cas $r = 1$

La fig. II. 6 montre la présence d'une branche optique de phonons localisés plus énergétique juste au-dessus de la bande du volume, cependant nous observons, trois branches de phonons localisés à des énergies plus élevées dans la région du gap, nous observons cinq autres

branches de phonons localisés suivant les directions de symétries $\overline{\Gamma X}$, \overline{XM} , $\overline{M\Gamma}$ à faibles énergies au-dessous de la bande des phonons du volume.

c) Cas $r = 0.5$

Nous remarquons, sur la fig. II. 7, la disparition totale de la branche de phonons localisés au-dessus de la bande passante existant déjà dans le cas $r = 1$; qui se localise à l'intérieur du gap de volume, par ailleurs nous observons le long des trois chemins l'existence de six branches de phonons localisés avec des énergies plus faibles au-dessous de la bande passante dans le cas d'adoucissement. Nous remarquons que les branches, existant déjà au-dessous de la bande de volume dans le cas $r = 1$, descendent pour atteindre les faibles énergies et dans le cas d'adoucissement.

II. 6. 1. Cas d'une interface métallique ordonnée Cu/Pd

Pour faire une application numérique pour un cas réel comme le système Cu/Pd, il faut d'abord calculer les constantes de forces élastiques, et cela bien sur, en utilisant les résultats numériques donnés par les calculs de Wu et al [16], où ils ont calculé les constantes de forces pour certains alliages avec de liaisons métal-métal dans des structures cubiques à faces centrées, et on trouve parmi ces alliages du Cu-Cu et Cu-Pd. Les résultats sont donnés dans le tableau ci-dessous.

Type de paire	Longueur de liaison (\AA)	Constantes de force ($J.m^{-2}$)
$(Cu-Cu)^1$	2.566	27.5
$(Cu-Cu)^2$	3.615	01.4
$(Pd-Pd)^1$	2.750	44.4
$(Pd-Pd)^2$	3.890	03.6
$(Cu-Pd)^1$	2.653	32.8
$(Cu-Pd)^2$	3.752	01.3

Tableau. II. 1. Les constantes de forces premiers et seconds voisins calculées à partir de la référence [16], en fonction des longueurs de liaisons atomiques.

Résultat

Les propriétés dynamiques du système de l'interface métallique Cu/Pd sont présentées dans cette partie. En particulier, nous avons calculé les phonons d'interface. Ces derniers sont indiqués en lignes noires continues. Elles sont donnés suivant les directions de haute symétrie $\overline{\Gamma M}$, \overline{MK} , et $\overline{K\Gamma}$ comme montré sur la fig. II. 8.

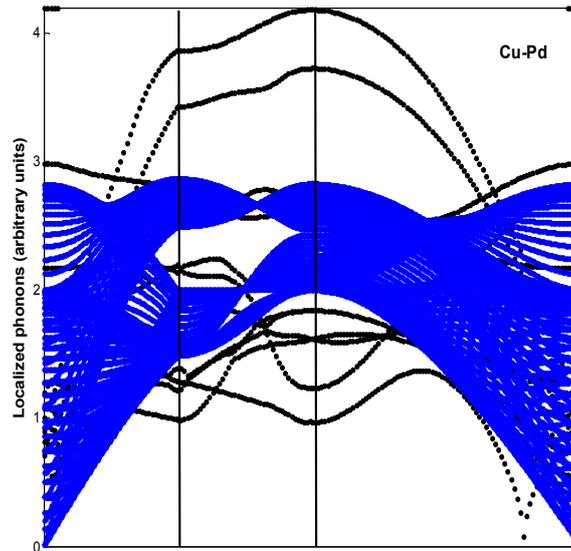


Figure. II. 8. Courbes de dispersion des phonons d'interface calculées pour l'interface métallique ordonnée Cu/Pd avec les bandes de phonons en volume.

Les modes de phonons d'interface correspondant à l'interface ordonnée Cu/Pd sont donnés sur la fig. II. 8 ci-dessus. Ils constituent d'une manière générale, une configuration plus importante de phonons d'interface et de résonances le long des trois directions de haute symétries $\overline{\Gamma X}$, \overline{XM} , et $\overline{M\Gamma}$. En outre, nos résultats montrent cinq branches de phonons localisés au niveau de l'interface de faibles énergies au-dessous de la bande de volume, qui deviennent des résonances d'interface pour des petits vecteurs d'onde $q = (q_x, q_z)$. Nos résultats détaillent aussi trois autres branches de phonons d'interface à des énergies plus élevées dans les deux régions de gap en volume. A présent, nous remarquons l'apparition de deux branches de phonons localisées qui se situent au-dessus de la bande de volume le long des trois chemins de haute symétries ayant des énergies plus élevées, ainsi une autre branche juste à la limite supérieure de la bande de volume.

II. 6. 2. Cas d'une interface métallique ordonnée Cu/Pt

Type de paire	Longueur de liaison (\AA)	Constantes de force ($J.m^{-2}$)
$(Cu-Cu)^1$	2.566	27.5
$(Cu-Cu)^2$	3.615	01.4
$(Pt-Pt)^1$	3.28	35.24
$(Pt-Pt)^2$	3.77	1.203
$(Cu-Pt)^1$	2.67	28.64
$(Cu-Pt)^2$	3.77	1.02

Tableau. II. 2. Les constantes de forces premiers et seconds voisins calculées en fonction des longueurs de liaisons atomiques.

La dynamique vibrationnelle de l'interface métallique Cu/Pt est présentée. Les phonons d'interface calculés (lignes noires continues) sont donnés suivant les directions de haute symétrie $\overline{\Gamma M}$, \overline{MK} , et $\overline{K\Gamma}$ comme montré sur la fig. II. 9.

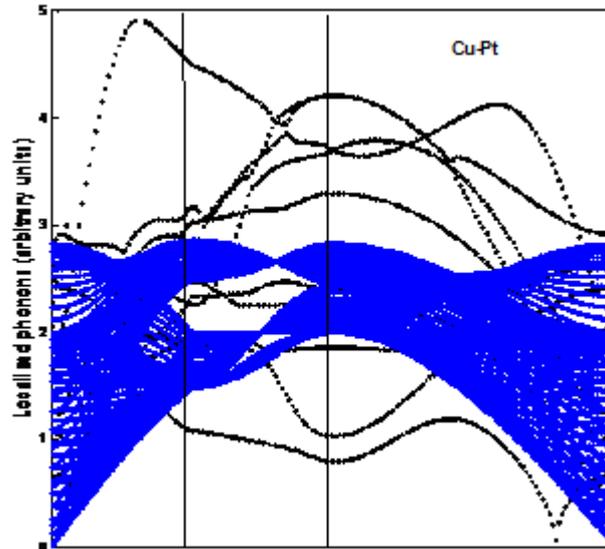


Figure. II. 9. Courbes de dispersion des phonons d'interface calculées pour l'interface ordonnée Cu/Pt avec les bandes de phonons en volume.

Contrairement au système d'interface Cu/Pd présenté au-dessus, les modes de l'interface pour l'interface Cu/Pt sont calculés ici et représentés sur la fig. II. 9 ci-dessus. Les résultats de nos calculs pour des phonons d'interface montrent des résonances pour ce système. Les états de phonons d'interface sont dénotés par des lignes noires continues. Comme on peut le constater, ces modes constituent une configuration très importante qui s'étale à travers la bande de volume. On peut observer au-dessous de la bande des phonons en volume, trois branches de phonons localisés à faibles énergies, cependant, nos résultats détaillent uniquement deux branches de phonons localisées à des énergies plus élevées dans la région de gap du volume, Par ailleurs, nos résultats dénotent cinq branches de phonons localisés aux énergies plus élevées au-dessus de la bande passante.

II. 7. Spectres des densités d'états vibrationnelles

Les densités d'états vibrationnelles locales (LDOS) sont, particulièrement, importantes et utiles, du fait qu'elles sont une signature caractéristique locale pour les interfaces considérées dans ce travail. En effet, elles permettent le calcul de toutes les quantités thermodynamiques pour ces systèmes d'intérêt à partir de la fonction de partition, dans l'approximation

harmonique, de la dynamique du réseau. La quantité principale d'intérêt à cet égard est la contribution vibrationnelle à l'énergie libre, ce qui est donné par la définition standard $F = U - TS$, où U est l'énergie interne, S l'entropie du système, et T la température absolue.

Les densités d'états vibrationnelles locales (LDOS) sont calculées numériquement par site atomique, en utilisant le formalisme des fonctions de Green, dans l'espace réel basé sur l'équation (1.19), que nous avons déjà présenté précédemment dans le chapitre I. Les LDOS sont normalisées et données en fonction de la fréquence normalisée Ω dans la première zone de Brillouin.

II .7 .1 Densités d'états

Sur les figs. II. 10, II.11, II.12, et II.13 ci-dessous, nous avons représenté les densités d'états des sites 1, 2, 3 et 4, respectivement. Nos résultats sont obtenus pour différentes valeurs de r , à savoir le durcissement, l'homogénéité et l'adoucissement des contraintes.

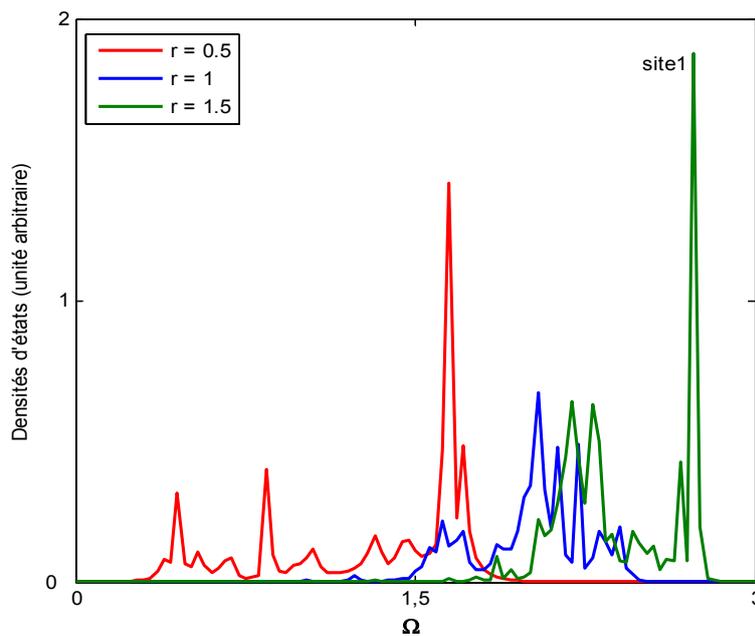


Figure. II. 10. Densités d'états du site (1) de la zone défaut du système A/B.

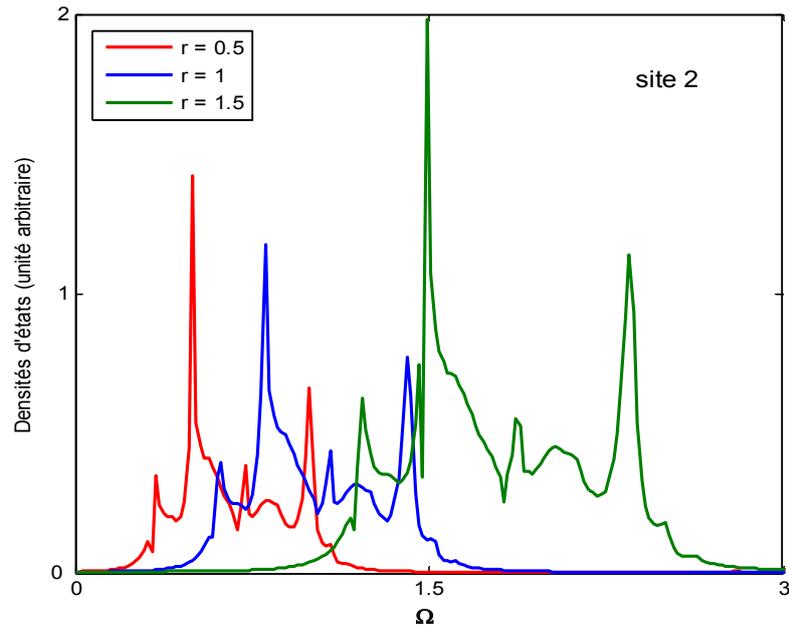


Figure. II. 11. Densités d'états du site (2) de la zone défaut du système A/B.

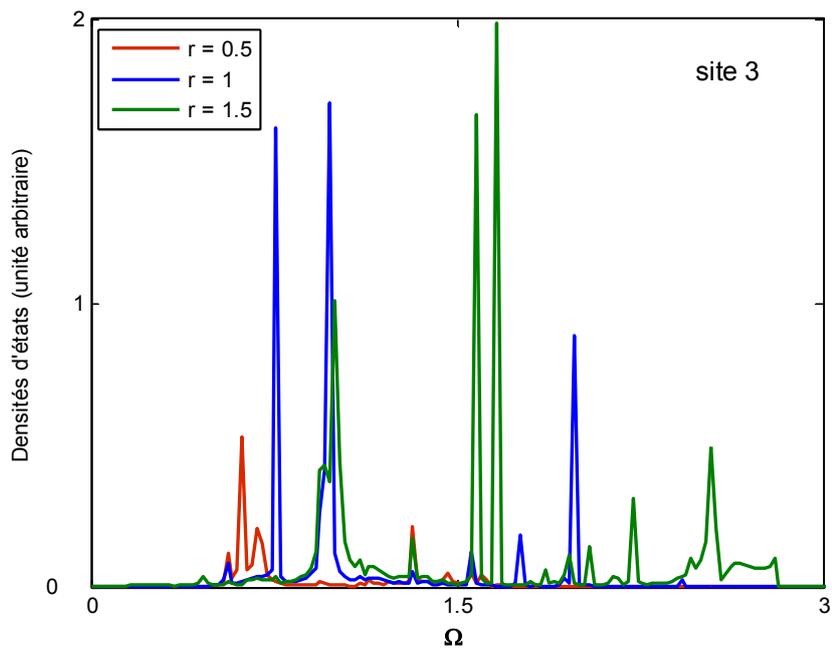


Figure. II. 12. Densités d'états du site (3) de la zone défaut du système A/B.

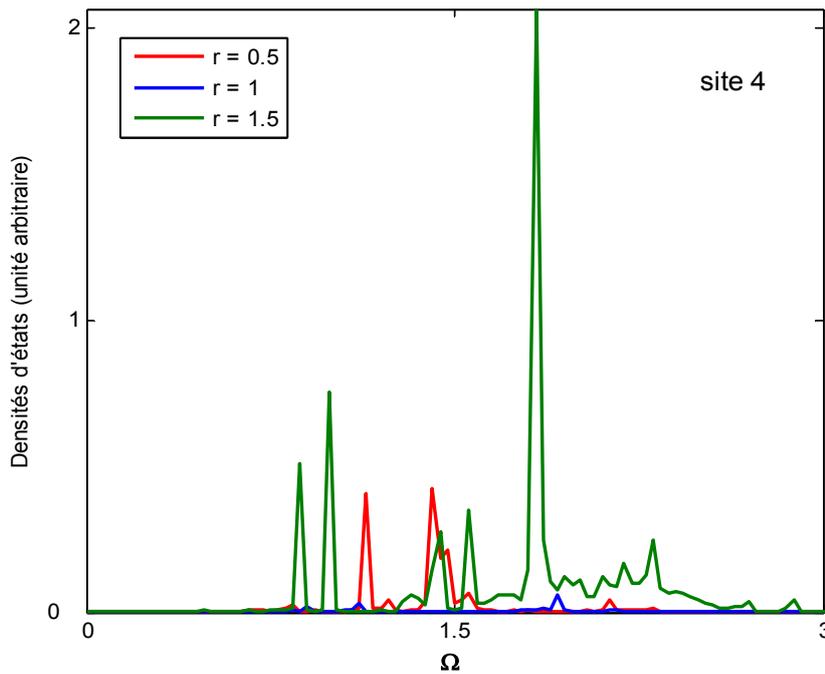


Figure. II. 13. Densités d'états du site (4) de la zone défaut du système A/B.

II. 7. 2. Interprétation des résultats

L'évolution des densités d'états du site (1) sont représentées sur la Fig. II.10. Nous constatons que, pour chaque spectre, il y a une variété de pics, ayant des amplitudes, des largeurs dépendantes des paramètres du système Ω , r et de la position des atomes par rapport à la zone interface. Pour certains pics, l'amplitude des résonances augmente, et pour d'autres, il y a une diminution. Notons aussi que pour le cas $r = 0.5$, les densités d'états s'étalent sur un intervalle de fréquence $[0.74, 1.68]$, et dans le cas où $r = 1.0$, les densités spectrales se décalent légèrement vers les hautes fréquences pour se situer dans l'intervalle $[1.52, 2.12]$, puis, elles seront dans l'intervalle $[1.74, 2.36]$, pour le cas $r = 1.5$.

Le comportement des densités d'états du site (2) est représenté sur la Fig. II. 11. Nous constatons que les intervalles de fréquences dépendent du rapport des constantes élastiques $r = k_{ab}/k_a$. Par exemple, dans le cas où $r = 0.5$, les densités d'états s'étalent sur un intervalle de fréquence $[0.85, 1.75]$, et sur un intervalle $[1.05, 1.93]$ dans le cas où $r = 1$, et quand $r = 1.5$ ces densités se déplacent vers les hautes fréquences pour se situer dans l'intervalle $[1.40, 2.74]$.

Les densités d'états du site (3) sont représentées sur la fig. II. 12. Nous constatons que ces densités d'états s'étalent sur un intervalle de fréquences [0.70, 1.60] dans le cas d'adoucissement, et l'intervalle [0.72, 2.00] dans le cas d'homogénéité s'élargit, ces densités se déplacent et deviennent plus large en décalant vers les hautes fréquences pour se situer dans l'intervalle [0.68, 2.94] dans le cas de durcissement.

La figure II.13, représente l'évolution des densités d'états du site (4), elle montre que ces densités ont une plage de fréquences de [0.74, 2.08] dans le cas où $r = 0.5$; et quand $r = 1$, cet intervalle change pour avoir une gamme de fréquences [0.76, 2.08], alors que dans le cas où $r = 1.5$, les densités d'états se déplacent vers les hautes fréquences [0.80, 2.92].

Conclusion

Ce travail reporte une investigation des propriétés vibrationnelles de la structure de l'interface ordonnée. Nous avons présenté un système modèle qui est une interface entre deux structures semi-infinies différentes du type cubique à faces centrées suivant la direction [100]. Nous avons calculé la matrice dynamique du système perturbé, et aussi tracé les états localisés au niveau de l'interface pour trois cas différents, nous avons considéré l'adoucissement, l'homogénéité et le durcissement des constantes élastiques au niveau de l'interface.

Nous avons relevé que le rapport des constantes de forces influe fortement sur les courbes des phonons localisées. A chaque fois que le rapport des constantes de forces est grand, les énergies des branches de phonons localisés sont grandes et ces branches se situent au-dessus de la bande des phonons du volume ; et diminue au fur et à mesure que le rapport r diminue jusqu'à disparaître dans la bande du volume. Nous remarquons aussi que le nombre des branches augmentent au-dessous de la bande des phonons du volume à chaque fois que r diminue (proportionnalité).

Nous avons montré la présence de trois types de modes localisés, le premier est un mode de Rayleigh, il se propage suivant la direction de haute symétrie, le second type est à l'intérieur de la bande de volume, le troisième est attribué à des modes propres localisés d'Einstein à des hautes fréquences.

Quant aux résultats des densités d'états vibrationnelles locales, elles montrent une dépendance en paramètre du rapport des constantes des forces r . A chaque fois que ce dernier est grand, nous remarquons que les plages des fréquences d'excitation des sites atomiques se décalent vers les hautes fréquences d'après leurs densités vibrationnelles.

Références du chapitre II

- [1] R. Landauer, *Phylos.* 21, 863 (1970).
- [2] R. Landauer, *Z. Phys. B* 68, 217 (1987).
- [3] R. Landauer, *J. Phys.: Condensed Matter* 1, 8099 (1989).
- [4] C. Berthod, F. Gagel and K. Maschke, *Phys.Rev.B* 50, 18299 (1994).
- [5] T. E. Feuchtwang, *Phys. Rev.* 155, 731 (1967).
- [6] M. Belhadi, R. Tigrine, A. Khater and J. Hardy, *Phys. Chem. News* 15, 16(2004).
- [7] A. Khater, B. Bourahla and R. Tigrine, *J. Phys. Conference series* 92, 012032 (2007).
- [8] A. Fellay, F. Gagel, K. Maschke, A. Virlovvet and A. Khater, *Phys. Rev. B* 55, 11717 (1997).
- [9] R. Tigrine, A. Khater, M. Belhadi and O. Rafil, *Surf. Sci.* 580, 10, (2005).
- [10] M. S. Rabia, H. Aouchiche, and O. Lamrous, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* 23, 95 (2003).
- [11] B. Bourahla, A. Khater, R. Tigrine, O. Rafil and M. A. Ghantous, *J. Phys. Condens. Matter.*19, 266208 (2007).
- [12] B. Bourahla, A. Khater, O. Rafil and R. Tigrine, *J. Phys. Condens. Matter.* 18, 8683 (2006).
- [13] A. Khater, R. Tigrine, and B. Bourahla, *Physica Status Solidi B* 246, 1614 (2009).
- [14] R. Chadli, *Thèse de Doctorat, Université M. Mammeri de Tizi-Ouzou* (2012).
- [15] S. Hongand and T. S. Rahman, *Phys. Rev. B* 72, 205424 (2005).
- [16] E. J. Wu, G. Ceder and A. Van de Walle, *Phys. Rev. B* 67, 134103 (2003).

Chapitre III

Propriétés dynamiques d'interfaces métalliques dans des structures cfc, suivant [110]

Objectif du chapitre

Précédemment, nous avons appliqué la méthode de raccordement à l'étude de la dynamique d'une interface cfc de type A/B, suivant la direction [100]. Dans ce chapitre, nous allons appliquer la même méthode pour deux autres interfaces de types A/B et A/B/A, suivant une direction [110]. Le but est de comprendre le comportement des phonons dans les structures à interfaces multiples et examiner l'effet de du sens de l'excitation et de propagation des ondes élastiques.

Pour chaque système, nous calculons les états localisés et les densités d'états des différents sites atomiques. A la fin, nous avons appliqué la méthode théorique pour plusieurs systèmes métalliques Cu/Pt, Au/Pd et Cu/Pd, qui présentent un grand intérêt dans plusieurs domaines.

Introduction

Les matériaux métalliques qui cristallisent dans une structure cfc font l'objet d'une recherche très intense [1-6]. Cela est dû à leurs grandes gammes d'utilisation. En effet, ces matériaux sont à la base de la fabrication de plusieurs composants industriels qui sont utilisés dans différents domaines, citons leur forte conductivité électrique et thermique, et leur réflectivité, ainsi que d'autres caractéristiques comme la ductilité et la malléabilité qui les rendent faciles et utiles à manipuler pour les adapter aux différents besoins en mécanique et en électronique. L'étude des propriétés d'interfaces est un domaine de recherche en plein développement [7-12], on parle des hétérojonctions puis l'interface métal/semi-conducteur. Dans ce travail, nous présentons une étude théorique, basée sur la dynamique de Newton, dans l'approximation harmonique. Le but est de comprendre le comportement des phonons dans une structure cfc, le long de la direction de haute symétrie [110] en présence d'une interface métallique. Ce

chapitre est divisé en deux parties : la première est l'étude d'une interface métallique de type A/B, où nous avons calculé et représenté les états localisés et les densités d'états vibrationnelles locales (LDOS) de la zone perturbée. La deuxième partie est réservée à la dynamique des structures de type A/B/A, qui est une lame insérée en sandwich. Nous notons que le couplage cohérent entre les phonons localisés et les modes propageant du guide d'ondes parfait conduit à plusieurs oscillations, certaines d'entre elles sont de types Fano et Fabry-Pérot.

Nous présentons le système modèle dans une première phase, puis nous déterminons sa matrice dynamique en volume. Cette matrice donne accès aux courbes de dispersion.

III. 1. Dynamique du guide d'onde cfc parfait

Sur la figure III.1, nous avons représenté la maille unitaire correspondant à la structure cfc suivant la direction [110]. Cette structure est représentée par deux vecteurs orthogonaux de longueurs $a/\sqrt{2}$ suivant la direction $[1\bar{1}0]$ et a suivant la direction $[001]$.

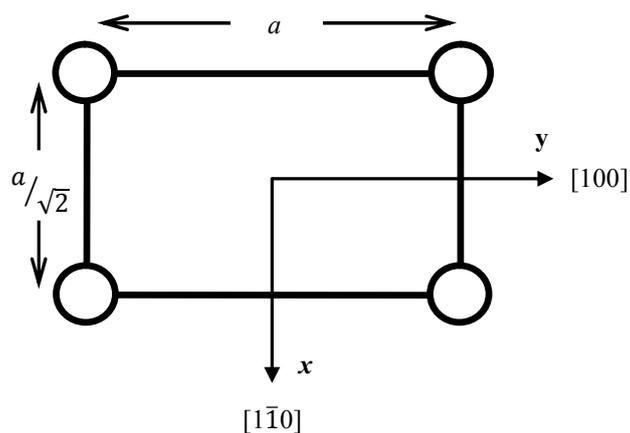


Figure III. 1. Cellule élémentaire d'un cfc suivant [110].

III. 2. Calcul des limites de la zone de Brillouin de la structure cfc suivant [110]

Considérons un atome i dans un réseau à 3D semi-infini, ses coordonnées sont :

$$\vec{R} = x_i \vec{i} + y_i \vec{j} + z_i \vec{k} \text{ dans la base du réseau direct } (\vec{i}, \vec{j}, \vec{k}).$$

Soit une maille élémentaire, du réseau direct, définie par les vecteurs \vec{a} , \vec{b} , \vec{c} , avec :

$$\vec{a} = a_x \vec{i} + a_y \vec{j} + a_z \vec{k},$$

$$\vec{b} = b_x \vec{i} + b_y \vec{j} + b_z \vec{k},$$

$$\vec{c} = c_x \vec{i} + c_y \vec{j} + c_z \vec{k}.$$

Le volume de cette maille est donné par : $V = \vec{a} \cdot (\vec{b} \wedge \vec{c})$.

La maille du réseau réciproque est définie par les vecteurs $\vec{A}, \vec{B}, \vec{C}$ avec :

$$\vec{A} = 2\pi \frac{(\vec{b} \wedge \vec{c})}{V}, \vec{B} = 2\pi \frac{(\vec{c} \wedge \vec{a})}{V} \text{ et } \vec{C} = 2\pi \frac{(\vec{a} \wedge \vec{b})}{V}.$$

➤ Réseau direct

La structure du réseau direct du cristal cfc, suivant la direction [110], est un rectangle illustré sur la figure III.2a, il est représenté par deux vecteurs de base \vec{a}_1 et \vec{a}_2 :

$$\text{avec : } \vec{a}_1 \begin{pmatrix} a \\ \sqrt{2} \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \vec{a}_2 \begin{pmatrix} 0 \\ a \end{pmatrix}.$$

➤ Réseau réciproque

Le réseau réciproque du réseau direct d'un cfc suivant [110], est représenté sur a figure III.2b, il est formé par deux vecteurs de base \vec{b}_1 et \vec{b}_2 .

$$\text{Avec : } \vec{b}_1 \cdot \vec{a}_1 = 2\pi$$

$$\vec{a}_1 \cdot \vec{b}_2 = 0,$$

$$\vec{b}_2 \cdot \vec{a}_1 = 0,$$

$$\vec{b}_2 \cdot \vec{a}_2 = 2\pi.$$

$$\text{Après calcul on aura : } \vec{b}_1 \begin{pmatrix} 2\pi\sqrt{2} \\ a \\ 0 \end{pmatrix} \text{ et } \vec{b}_2 \begin{pmatrix} 0 \\ 2\pi \\ a \end{pmatrix}.$$

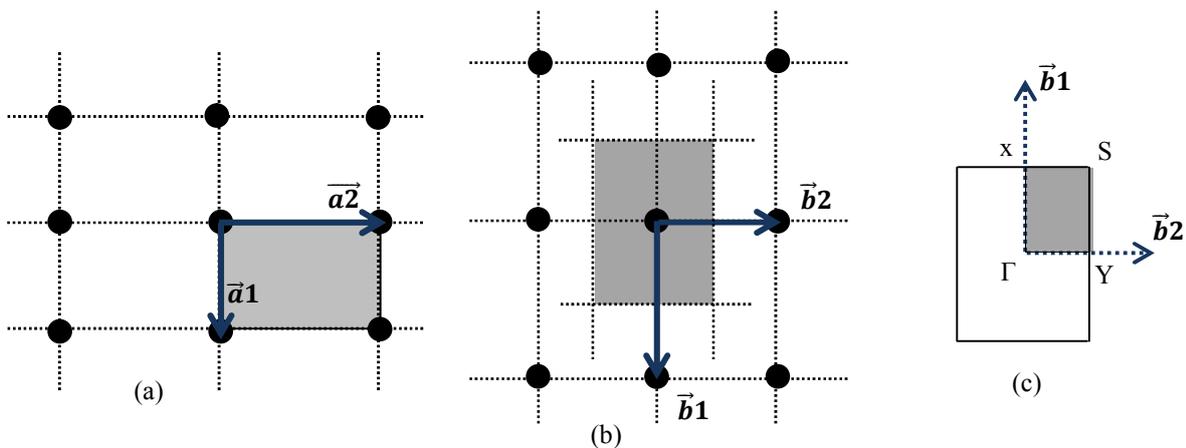


Figure III. 2. Représentation des réseaux direct, réciproque et la première zone de Brillouin réduite de la structure cfc [110] en (a) (b) et (c), respectivement.

III. 3. Dynamique vibrationnelle en volume

Le système modèle est un cristal monoatomique infini de structure cubique à faces centrées suivant la direction [110]. La maille élémentaire de cette dernière est un réseau de paramètre $a/\sqrt{2}$ suivant les deux directions (ox) et (oz) et de paramètre a suivant la direction (oy). Nous considérons les atomes comme un assemblage de masses ponctuelles m , reliés par des ressorts harmoniques, pour cela, on se place dans une région choisie suffisamment éloignée du défaut pour que les atomes constituant ce domaine aient un environnement du volume, à savoir 12 atomes premiers proches voisins situés à une distance $a/\sqrt{2}$ (a étant la distance interatomique), et 6 seconds proches voisins à une distance a , comme le montre la figure III.3 ci-dessous :

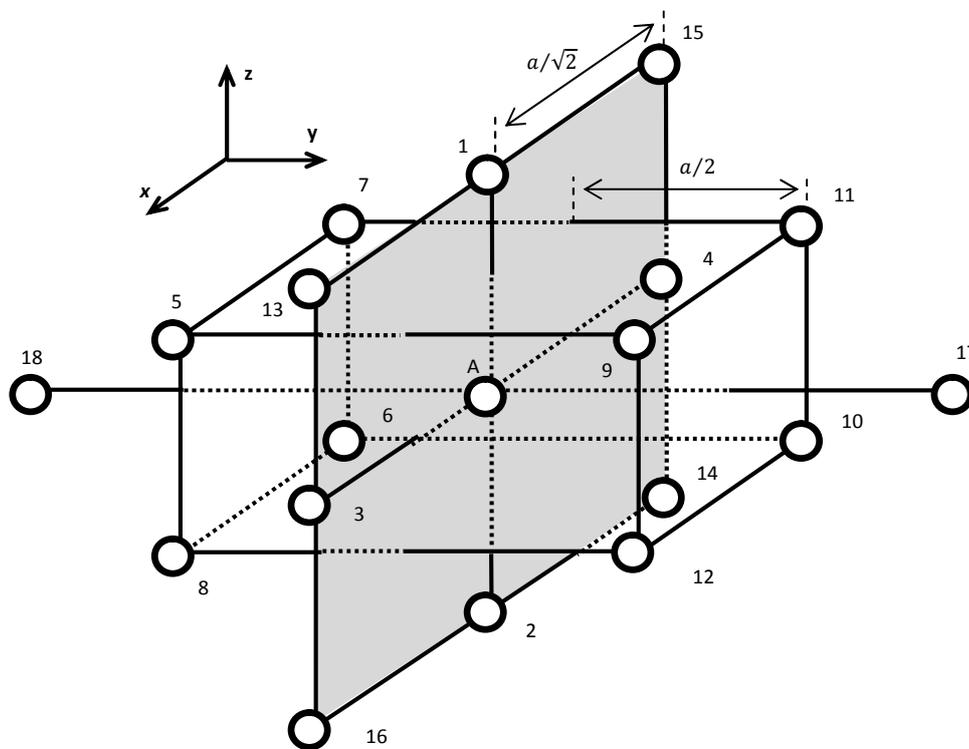


Figure. III. 3. Représentation schématique d'une structure cristalline d'un réseau cfc suivant la direction [110].

a) Les équations du mouvement

Notre but est de décrire le comportement du réseau hors d'équilibre. Pour cela, si on désigne par \vec{R}_i , la position d'équilibre de l'atome i , et on fait subir à ces atomes un petit déplacement, alors la nouvelle position de l'atome i est la suivante :

$$\vec{R}'_i = \vec{R}_i + \vec{u}_i \quad (3.1)$$

\vec{u}_i est le vecteur déplacement.

Pour étudier le mouvement de ces atomes, on applique la deuxième loi de Newton :

$$m \frac{d^2 \vec{u}}{dt^2} = \sum \vec{F} \quad (3.2)$$

Les formes explicites de l'accélération et de la force sont comme suit :

$$\begin{cases} \vec{F} = -k\vec{x} \\ \vec{\gamma} = -\omega^2\vec{x} \end{cases} \quad (3.3)$$

Avec : ω est la fréquence propre d'oscillation, k est la constante de force.

Dans le cadre de l'approximation harmonique associée au modèle des forces centrales, l'équation du mouvement d'un atome occupant le site i prendra la forme :

$$m_i \omega^2 u_\alpha(i) = \sum_{i \neq i'} \sum_\beta \left(\frac{r_\alpha r_\beta}{r^2} \right) k(i, i') [u_\beta(i) - u_\alpha(i')] \quad (3.4)$$

α et β représentent les différentes directions de l'espace x, y et z .

m_i est la masse de l'atome i .

$u_\alpha(i)$ est le déplacement de l'atome i suivant la direction α .

r_α est la composante du vecteur position relative entre l'atome i et l'atome i' .

r est la distance entre l'atome i et i' .

$k(i, i')$ est la constante de force entre l'atome i et i' .

Si on considère l'atome A, représenté sur la figure III.3, de coordonnées (p, q, s) , la projection de l'équation (3.4) sur les trois axes, donne :

Sur l'axe (ox)

$$\begin{aligned} & (m\omega^2 - 4k_1 - 2k_2)u_x(p, q, s) + k_1[u_x(p+2, q, s) + u_x(p-2, q, s)] + k_1/4[u_x(p+1, q+1, s+1) + u_x(p-1, q+1, s+1) + \\ & u_x(p+1, q-1, s+1) + u_x(p+1, q+1, s-1) + u_x(p-1, q-1, s+1) + u_x(p-1, q+1, s-1) + u_x(p+1, q-1, s-1) + u_x(p- \\ & 1, q-1, s-1)] + k_2/2[u_x(p+2, q, s+2) + u_x(p-2, q, s+2) + u_x(p+2, q, s-2) + u_x(p-2, q, s-2) \\ &] + \frac{\sqrt{2}}{4}k_1[(u_y(p+1, q+1, s+1) - u_y(p-1, q+1, s+1) - u_y(p+1, q-1, s+1) + u_y(p+1, q+1, s-1) + u_y(p-1, q- \\ & 1, s+1) - u_y(p-1, q+1, s-1) - u_y(p+1, q-1, s-1) + u_y(p-1, q-1, s-1)] + k_1/4[u_z(p+1, q+1, s+1) - u_z(p- \\ & 1, q+1, s+1) + u_z(p+1, q-1, s+1) - u_z(p+1, q+1, s-1) - u_z(p-1, q-1, s+1) + u_z(p-1, q+1, s-1) - u_z \\ & (p+1, q-1, s-1) + u_z(p-1, q-1, s-1)] + k_2/2[u_z(p+2, q, s+2) - u_z(p-2, q, s+2) - u_z(p+2, q, s-2) + u_z(p- \\ & 2, q, s-2)] = 0 \end{aligned}$$

Sur l'axe (oy)

$$\begin{aligned}
& (m\omega^2 - 4k_1 - 2k_2) u_y(p, q, s) + k_1/2 [u_y(p+1, q+1, s+1) + u_y(p-1, q+1, s+1) + u_y(p+1, q-1, s+1) + \\
& u_y(p+1, q+1, s-1) + u_y(p-1, q-1, s+1) + u_y(p-1, q+1, s-1) + u_y(p+1, q-1, s-1) + u_y(p-1, q-1, s-1)] + k_2 \\
& [u_x(p, q+2, s) + u_x(p, q-2, s)] + \frac{\sqrt{2}}{4} k_1 [(u_x(p+1, q+1, s+1) - u_x(p-1, q+1, s+1) - u_x(p+1, q- \\
& 1, s+1) - u_x(p-1, q-1, s+1) - u_x(p+1, q-1, s-1) - u_x(p-1, q-1, s-1) + u_x(p-1, q- \\
& 1, s-1)] + \frac{\sqrt{2}}{4} k_1 [(u_z(p+1, q+1, s+1) + u_z(p-1, q+1, s+1) - u_z(p+1, q-1, s+1) - u_z(p-1, q- \\
& 1, s-1) - u_z(p-1, q-1, s+1) - u_z(p-1, q+1, s-1) + u_z(p+1, q-1, s-1) + u_z(p-1, q-1, s-1)] = 0
\end{aligned}$$

Sur l'axe (oz)

$$\begin{aligned}
& (m\omega^2 - 4k_1 - 2k_2) u_z(p, q, s) + k_1 [u_z(p, q, s+2) + u_z(p, q, s-2)] + k_1/4 [u_z(p+1, q+1, s+1) + \\
& u_z(p-1, q+1, s+1) + u_z(p+1, q-1, s+1) + u_z(p+1, q+1, s-1) + u_z(p-1, q-1, s+1) + u_z(p-1, q+1, s-1) + \\
& u_z(p+1, q-1, s-1) + u_z(p-1, q-1, s-1)] + k_2/2 [u_z(p+2, q, s+2) + u_z(p-2, q, s+2) + u_z(p+2, q, s-2) + \\
& u_z(p-2, q, s-2)] + k_1/4 [u_x(p+1, q+1, s+1) - u_x(p-1, q+1, s+1) + u_x(p+1, q-1, s+1) - u_x(p- \\
& 1, q+1, s-1) - u_x(p-1, q-1, s+1) + u_x(p-1, q+1, s-1) - u_x(p+1, q-1, s-1) + u_x(p-1, q-1, s-1)] \\
& + k_2/2 [u_x(p+2, q, s+2) - u_x(p-2, q, s+2) - u_x(p+2, q, s-2) + u_x(p-2, q, s-2)] + \frac{\sqrt{2}}{4} k_1 [(u_y(p+1, q+1, \\
& s+1) + u_y(p-1, q+1, s+1) - u_y(p+1, q-1, s+1) - u_y(p-1, q-1, s+1) - u_y(p+1, q+1, s-1) - u_y(p-1, q-1, s+1) - \\
& u_y(p-1, q+1, s-1) + u_y(p+1, q-1, s-1) + u_y(p-1, q-1, s-1)] = 0
\end{aligned}$$

La relation de Bloch permet d'écrire :

$$u_\alpha(p \pm 1, q, s) = e^{\pm q_x a} u_\alpha(p, q, s);$$

$$u_\alpha(p, q \pm 1, s) = e^{\pm q_y a} u_\alpha(p, q, s);$$

$$u_\alpha(p, q, s \pm 1) = e^{\pm q_z a} u_\alpha(p, q, s);$$

$$u_\alpha(p \pm 2, q, s) = e^{\pm 2q_x a} u_\alpha(p, q, s);$$

$$u_\alpha(p, q \pm 2, s) = e^{\pm 2q_y a} u_\alpha(p, q, s);$$

$$u_\alpha(p, q, s \pm 2) = e^{\pm 2q_z a} u_\alpha(p, q, s).$$

Avec \vec{q} (q_x, q_y, q_z) est le vecteur d'onde du réseau réciproque.

On pose :

$$e^{\pm q_x a} = e^{\pm \phi_x} = Z_1^{\pm 1};$$

$$e^{\pm q_y a} = e^{\pm \varphi_y} = Z^{\pm 1} ;$$

$$e^{\pm q_z a} = e^{\pm \varphi_z} = Z_2^{\pm 1} ;$$

$$e^{\pm 2q_x a} = e^{\pm 2\varphi_x} = Z_1^{\pm 2} ;$$

$$e^{\pm 2q_y a} = e^{\pm 2\varphi_y} = Z^{\pm 2} ;$$

$$e^{\pm 2q_z a} = e^{\pm 2\varphi_z} = Z_2^{\pm 2} ;$$

$$\text{et } \Omega^2 = \frac{m\omega^2}{k_1} = \frac{\omega^2}{\omega_0^2}.$$

Avec $\omega_0 = \sqrt{\frac{k_1}{m}}$ est la fréquence propre de vibration.

φ_α est le facteur de phase suivant la direction α .

Ω est la fréquence normalisée (réduite), elle est sans dimension.

En remplaçant dans les équations précédentes, on obtient :

$$\begin{aligned} & [\Omega^2 - 4 - 2r + (Z_1^2 + Z_1^{-2}) + \frac{1}{4}(Z_1 + Z_1^{-1})(Z_2 + Z_2^{-1})(Z + Z^{-1}) \\ & + \frac{1}{2}\lambda(Z_1^2 + Z_1^{-2})(Z_2^2 + Z_2^{-2})]u_x(p,q,s) + \\ & \frac{\sqrt{2}}{4}(Z_1 - Z_1^{-1})(Z_2 + Z_2^{-1})(Z - Z^{-1})u_y(p,q,s) + \end{aligned} \quad (3.5)$$

$$\frac{1}{4}(Z_1 - Z_1^{-1})(Z_2 - Z_2^{-1})(Z + Z^{-1}) + \frac{1}{2}r(Z_1^2 - Z_1^{-2})(Z_2^2 - Z_2^{-2})]u_z(p,q,s) = 0$$

$$\begin{aligned} & [\Omega^2 - 4 - 2r + r(Z^2 + Z^{-2}) + \frac{1}{4}(Z_1 + Z_1^{-1})(Z_2 + Z_2^{-1})(Z + Z^{-1})]u_y(p,q,s) + \\ & \frac{\sqrt{2}}{4}(Z_1 - Z_1^{-1})(Z_2 + Z_2^{-1})(Z - Z^{-1})u_x(p,q,s) + \end{aligned} \quad (3.6)$$

$$\frac{\sqrt{2}}{4}(Z_1 + Z_1^{-1})(Z_2 - Z_2^{-1})(Z - Z^{-1})u_z(p,q,s) = 0$$

$$\begin{aligned} & [\Omega^2 - 4 - 2r + (Z_2^2 + Z_2^{-2}) + \frac{1}{4}(Z_1 + Z_1^{-1})(Z_2 + Z_2^{-1})(Z + Z^{-1}) \\ & + \frac{1}{2}\lambda(Z_1^2 + Z_1^{-2})(Z_2^2 + Z_2^{-2})]u_z(p,q,s) + \\ & \frac{1}{4}(Z_1 - Z_1^{-1})(Z_2 - Z_2^{-1})(Z + Z^{-1}) + \frac{1}{2}r(Z_1^2 - Z_1^{-2})(Z_2^2 - Z_2^{-2})]u_x(p,q,s) \\ & \frac{\sqrt{2}}{4}(Z_1 + Z_1^{-1})(Z_2 - Z_2^{-1})(Z - Z^{-1})u_y(p,q,s) = 0 \end{aligned} \quad (3.7)$$

$$\text{Avec } r = \frac{k_2}{k_1}.$$

On peut écrire les équations (3.5), (3.6) et (3.7) sous la forme matricielle suivante :

$$[\Omega^2 I - D(Z, e^{i\varphi_x}, e^{i\varphi_z}, r)]|u\rangle = 0 \quad (3.8)$$

D représente la matrice dynamique en volume de taille (3×3) , et I est une matrice identité de même rang que la matrice D .

$$\text{Avec } |u\rangle = \begin{pmatrix} u_x(p, q, s) \\ u_y(p, q, s) \\ u_z(p, q, s) \end{pmatrix}$$

$$\text{Et } D(Z_l, Z, Z_2, r) = \begin{bmatrix} D_{11} & D_{12} & D_{13} \\ D_{21} & D_{22} & D_{23} \\ D_{31} & D_{32} & D_{33} \end{bmatrix}$$

$D(Z_l, Z, Z_2, r)$ est appelée matrice dynamique du système cfc.

Avec

$$D_{11} = [\Omega^2 - 4 - 2r + \cos(\varphi_x)\cos(\varphi_z)(Z + Z^{-1}) + 2\cos(2\varphi_x)(r\cos(2\varphi_z) + 1)] ;$$

$$D_{22} = [\Omega^2 - 4 - 2r + 2\cos(\varphi_x)\cos(\varphi_z)(Z + Z^{-1}) + r(Z^2 + Z^{-2})] ;$$

$$D_{33} = [\Omega^2 - 4 - 2r + \cos(\varphi_x)\cos(\varphi_z)(Z + Z^{-1}) + 2\cos(2\varphi_z)(\lambda\cos(2\varphi_x) + 1)] ;$$

$$D_{12} = D_{21} = [\sqrt{2}i(Z - Z^{-1})\sin(\varphi_x)\cos(\varphi_z)] ;$$

$$D_{13} = D_{31} = [-(Z + Z^{-1})\sin(\varphi_x)\sin(\varphi_z) + 2\lambda\sin(2\varphi_z)\sin(2\varphi_x)] ;$$

$$D_{32} = D_{23} = [\sqrt{2}i(Z - Z^{-1})\sin(\varphi_z)\cos(\varphi_x)].$$

Z est le facteur de phase générique pour l'interface, satisfaisant la condition d'évanescence suivant la direction cartésienne y . Les facteurs de phases suivant les directions x et z sont définis par $\varphi_x = \left(\frac{a}{\sqrt{2}}\right)q_x$ et $\varphi_z = \left(\frac{a}{\sqrt{2}}\right)q_z$, q_x et q_z étant les composantes suivant x et z du vecteur d'onde du réseau réciproque.

Le système des trois équations précédent n'admet de solution que si le déterminant :

$$\det [\Omega^2 I - D(e^{i\varphi_x}, Z, e^{i\varphi_z}, r)] = 0 \quad (3.9)$$

Partie I

III. 4. Dynamique vibrationnelle de l'interface

III. 4.1 Description du modèle perturbé

Le système modèle que nous avons choisi est représenté sur la figure III. 4, ce cristal est obtenu par la juxtaposition de deux systèmes semi-infinis A et B à structure cubique à faces centrées suivant la direction [110]. Ce système peut être divisé en trois régions :

Région A : représente la région parfaite, de paramètre de maille $a/\sqrt{2}$ suivant l'axe (ox) et (oz) et de paramètre a suivant l'axe (oy), d'atomes de masse m_1 et de constantes de force k_1 entre premiers proches voisins, et k'_1 entre seconds proches voisins.

Région B : représente la région parfaite, de paramètre de maille $a/\sqrt{2}$ suivant l'axe (ox) et (oz) et de paramètre a suivant l'axe (oy), d'atomes de masse m_2 et de constantes de force k_2 entre premiers proches voisins, et k'_2 entre second proches voisins.

Région couplant A et B : qui est la zone perturbée, et le joint atomique entre les deux régions semi-infinis, avec k_{12} et k_{12} comme constante de force entre l'atome m_1 et m_2 , premiers et seconds voisins.

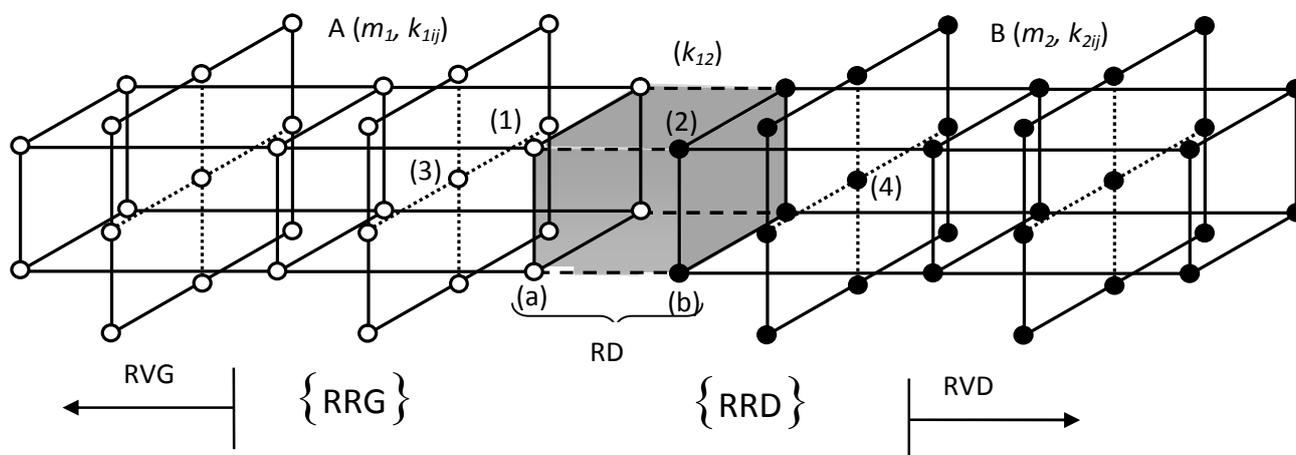


Figure. III. 4. Représentation schématique d'une interface séparant deux systèmes de type cfc suivant la direction [110], de type A/B.

III. 4.2. Matrice dynamique du système perturbé

La matrice dynamique D du système trouve son origine dans l'écriture des équations du mouvement des atomes que nous avons numéroté de 1 à 4. Ces atomes sont choisis de sorte que la région qui les contient, comprenne aussi bien des atomes appartenant à la région du défaut (l'interface), ainsi que ceux qui appartiennent à la région de raccordement présentant un environnement de la région du volume.

L'ensemble de ces équations du mouvement constituent un système linéaire homogène qu'on peut mettre sous forme d'une matrice rectangulaire D . La taille de cette matrice dépend du nombre d'atomes de la zone perturbée, sachant bien qu'il y a trois degrés de liberté par site. Alors il y a plus d'inconnues que d'équations (12 équations et 18 inconnues).

$$\text{Avec } \dim(D) = (m \times n) \quad (3.10)$$

m = le nombre d'atomes dans la zone du défaut (interface) plus ceux de raccordement multipliés par trois degrés de liberté $((2+2) \times 3 = 12)$.

n = m + le nombre d'atomes qui sont reliés directement aux atomes de raccordement multipliés par trois degrés de liberté $(12+4 \times 3 = 24)$. \times est le produit matriciel.

$$[D] \cdot |u\rangle = |0\rangle$$

Avec :

$$\dim[D] = 12 \times 24,$$

$$\dim|u\rangle = 24 \times 1,$$

$$\dim|0\rangle = 12 \times 1.$$

Le $|u\rangle$ constitue un vecteur colonne décrivant les déplacements vibrationnels de tous les atomes d'une maille élémentaire de la zone considérée.

III. 4. 3. Matrice de raccordement

Le but de cette matrice est d'établir les relations qui permettent de raccorder les déplacements atomiques des sites qui appartiennent à la zone de raccordement aux champs vibrationnels des modes évanescents des deux guides d'ondes parfaits ; nous allons représenter les déplacements atomiques des sites appartenant à la région de raccordement par une combinaison linéaire des vecteur $\{R_1, R_2\}$ définissant un espace fini dans l'espace des phases. La connaissance des facteurs de phase $[Z, 1/Z]$, caractérisant les modes évanescents dus à la présence de l'interface, et déterminés à partir de l'étude précédente en volume, nous permet de faire cet état de raccordement.

Dans ce travail, il y a deux régions de raccordement, une région située à droite et une autre à gauche, nous devons pour cela définir deux bases distinctes $\{R_1\}$ et $\{R_2\}$, la première est utilisée pour l'étude du mouvement des atomes qui se trouvent à gauche de l'interface, et la deuxième est utilisée pour l'étude du mouvement des atomes se trouvant à droite du défaut. La dimension des vecteurs $\{R_1\}$ et $\{R_2\}$ est de trois.

Pour un atome appartenant à la région de raccordement à droite, on peut décrire ses déplacements vibrationnels à l'aide de la relation suivante :

$$u'_\alpha(n_x, n_y, n_z) = \sum_j^{i=3} Z_j^{-n_z} A'(\alpha, j) R_{1j} \quad (3.11)$$

Pour un atome appartenant à la région de raccordement à gauche, ses déplacements vibrationnels sont caractérisés à l'aide de la relation suivante :

$$(n_x, n_y, n_z) = \sum_i^{i=3} Z_i^{-n_z} A(\alpha, i) R_{2i} \quad (3.12)$$

α représente les trois directions cartésiennes (ox), (oy) et (oz). A et A' sont les poids pondérés associés aux différents modes évanescents déterminés à l'aide des cofacteurs de la matrice dynamique en volume D définie auparavant.

R_{1j} est le vecteur unitaire qui caractérise le mode évanescent j dans la base $\{R_1\}$ de l'espace des phases. R_{2i} est le vecteur unitaire qui caractérise le mode évanescent i dans la base $\{R_2\}$ de l'espace des phases.

Le vecteur $|u\rangle$, décrivant les déplacements vibrationnels de tous les atomes d'une maille élémentaire de la zone considérée, peut se décomposer en deux parties : la première est notée par $|irr\rangle$, elle est constituée par les déplacements atomiques des deux sites irréductibles formant la région de l'interface; se sont les atomes (1) et (2) représentés sur la figure III. 4. Quand à la seconde notée par $|rac\rangle$, elle est composée des déplacements des deux zones de raccordement (gauche et droite).

On peut alors écrire :

$$|u\rangle = \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |rac\rangle \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

- Dim $|irr\rangle$ = nombre d'atomes de l'interface fois trois degrés de liberté par chaque atome.
- Dim $|rac\rangle$ = nombre d'atomes de raccordement fois trois degrés de liberté par chaque atome.

On peut écrire la matrice de raccordement des atomes à l'aide de l'expression suivante :

$$|u\rangle = \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |rac\rangle \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} I_d & 0 & 0 \\ 0 & R_1 & 0 \\ 0 & 0 & R_2 \\ 0 & R_3 & 0 \\ 0 & 0 & R_4 \end{bmatrix} \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R_1\rangle \\ |R_2\rangle \end{pmatrix} = R_c \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R_1\rangle \\ |R_2\rangle \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

Où I_d est une matrice identité, sa taille dépend du nombre d'atomes des sites irréductibles multipliés par trois degrés de liberté par site (6×6).

R_1, R_2, R_3 et R_4 sont des sous matrices, elles dépendent du nombre de modes propageants du système parfait, leurs dimensions est (3×3).

La matrice D_r de dimension (24×12) est appelée matrice de raccordement.

Le produit de la matrice D par la matrice D_r donne lieu à une matrice carrée D_s (12 × 12).

$$[D(12 \times 24)] \cdot [D_r(24 \times 12)] \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R_1\rangle \\ |R_2\rangle \end{pmatrix} = |0\rangle \quad (3.15)$$

Et encore ;

$$[D_s(12 \times 12)] \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R_1\rangle \\ |R_2\rangle \end{pmatrix} = |0\rangle \quad (3.16)$$

Les états vibrationnels induits par l'existence de l'interface sont déterminés à l'aide de la relation de compatibilité suivante :

$$\det[D_s(12 \times 12)] = 0 \quad (3.17)$$

III. 5. Résultats et discussions

III. 5. 1. Les états localisés

- *Cas de durcissement*

Sur les figure ci-dessous, nous avons représenté les états localisés au niveau d'une interface séparant deux systèmes semi-infinis à structures cubique à faces centrées, suivant la direction [110], les résultats sont effectués dans le cas de durcissement des contraintes élastiques, en variant le rapport des mass $e = m_1/m_2$

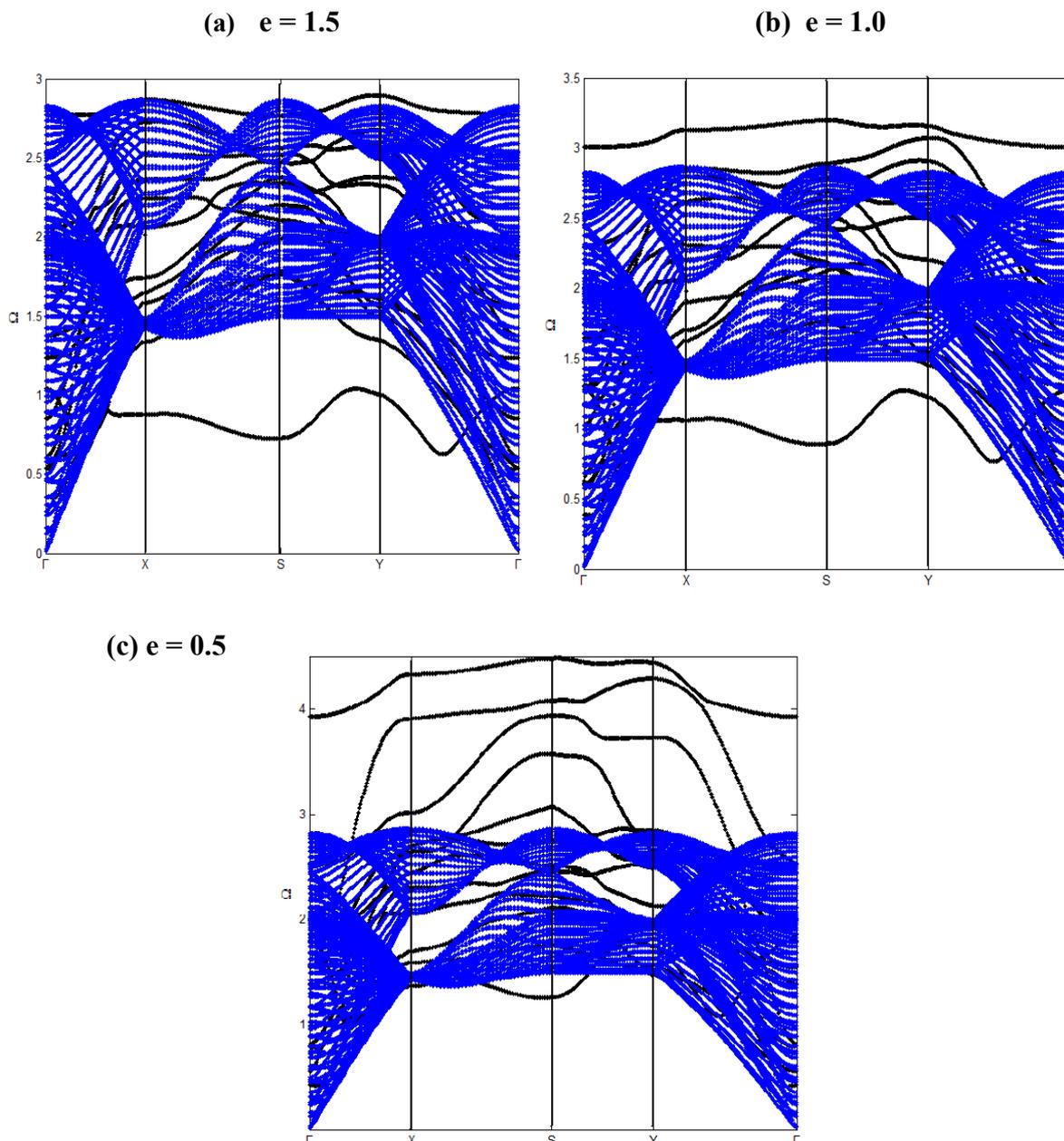


Figure III. 5. Les états localisés au niveau d'une interface du type A/B dans une structure cfc suivant [110] dans le cas de durcissement. (a) le cas d'une masse lourde, (b) une masse homogène et (c) le cas d'une masse légère.

- *Cas d'homogénéité*

Nous avons représenté sur les figure ci-dessous, les états localisés au niveau d'une interface séparant deux systèmes semi-infinis à structures cubique à faces centrées, suivant la direction [110], les résultats sont effectués dans le cas d'homogénéité $r = 1$, en faisant varier le rapport des masses $e = m_1/m_2$

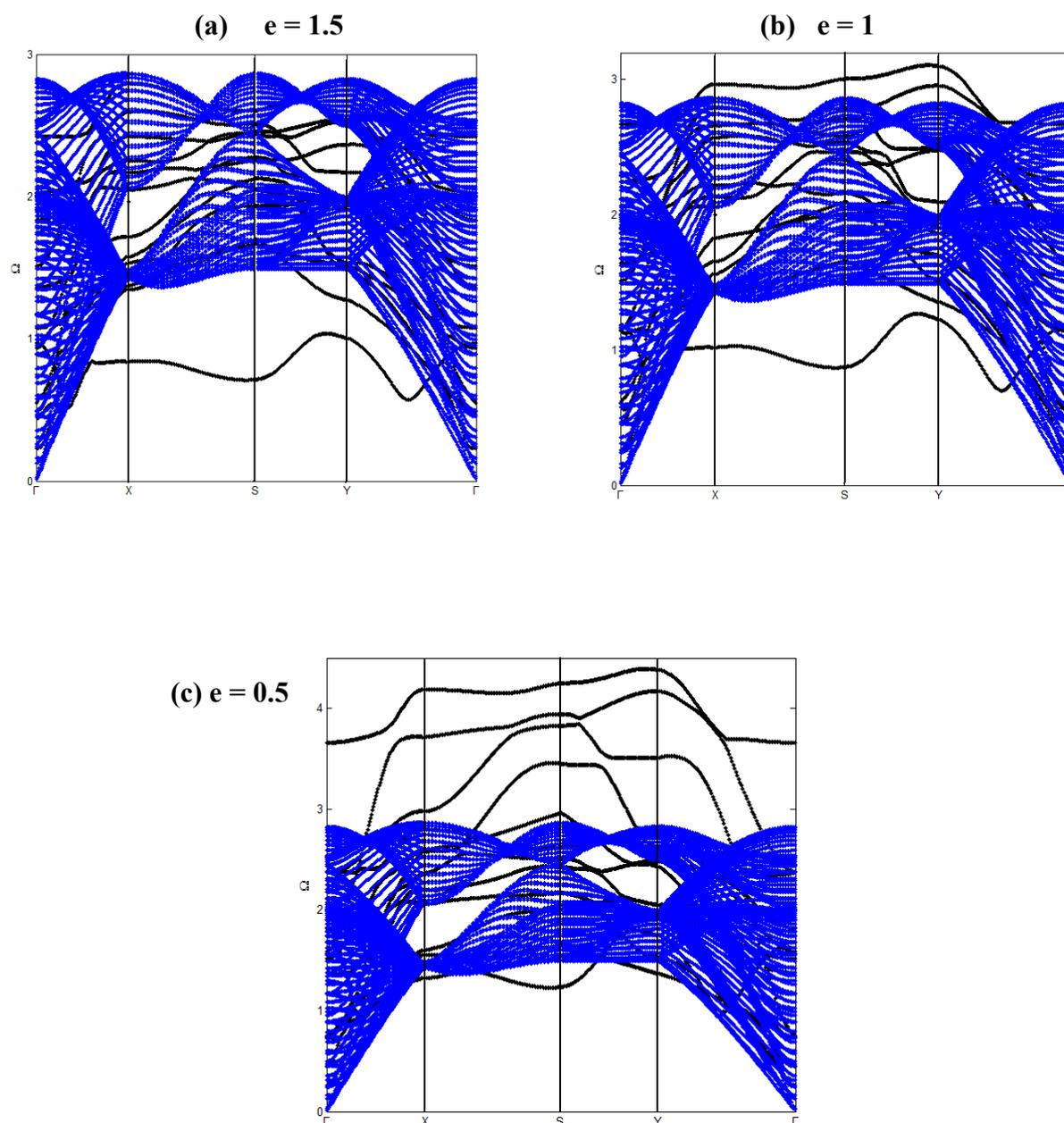


Figure III. 6. Les états localisés au niveau d'une interface du type A/B dans une structure cfc [110] dans le cas d'homogénéité. (a) le cas d'une masse lourde, (b) une masse homogène et (c) le cas d'une masse légère.

- *Cas d'adoucissement*

Sur les figure ci-dessous, nous représentons les états localisés au niveau d'une interface séparant du type A/B dans une structure cfc suivant [110], les résultats obtenus sont donnés dans le cas d'adoucissement, avec la variation du rapport des mass $e = m_1/m_2$

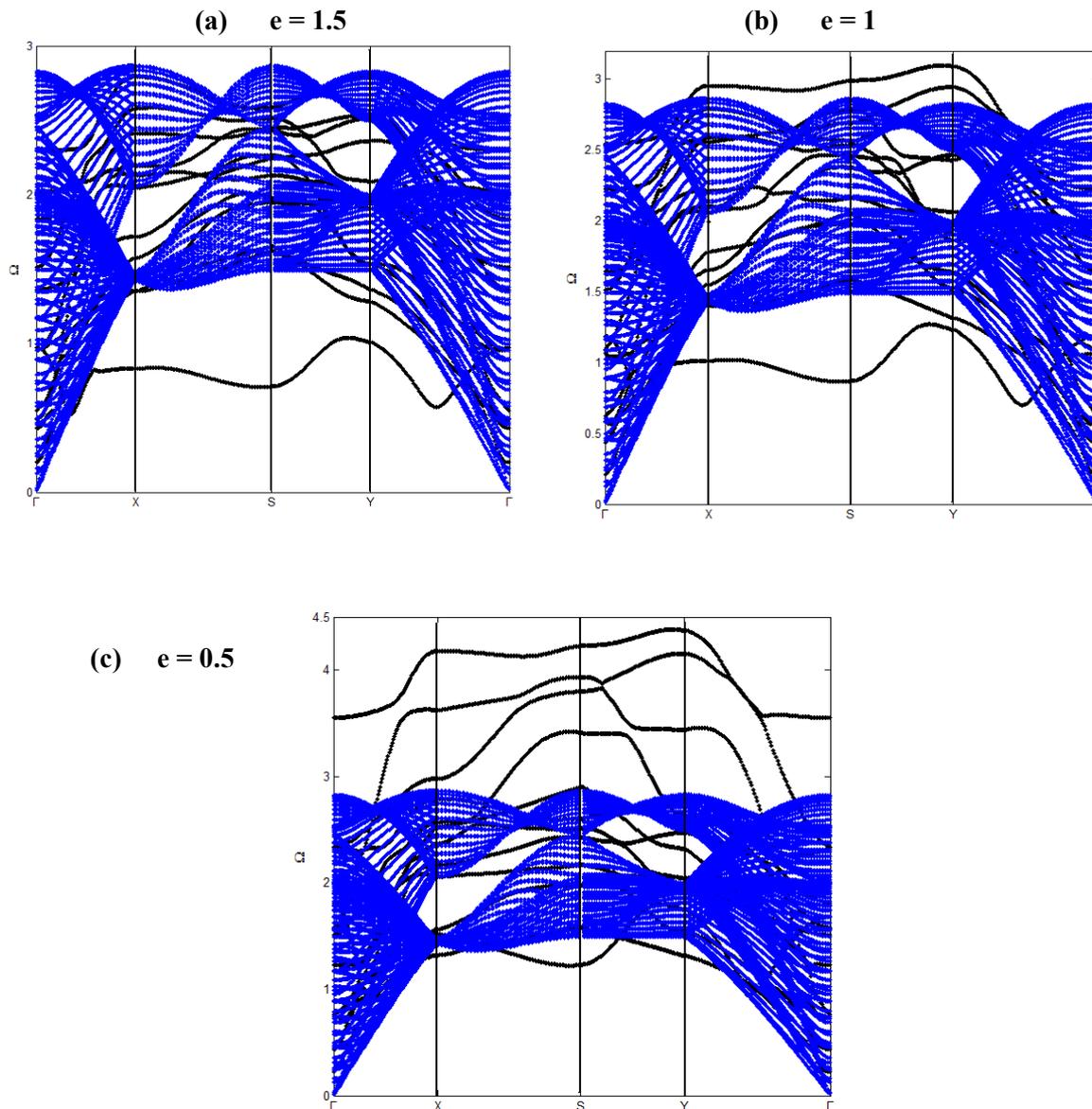


Figure III. 7. Les états localisés au niveau d'une interface du type A/B dans une structure cfc [110] dans le cas d'adoucissement. (a) le cas d'une masse lourde, (b) une masse homogène et (c) le cas d'une masse légère.

III. 5. 2. Interprétation des résultats

Les résultats sont donnés sur la figure III. 5, (ce qui correspond au cas où $r = 0.5$) ; les courbes présentent une branche de phonons localisés au dessus de la bande de phonons du volume. Nous constatons que la branche optique est plus énergétique que les phonons du volume ; et cinq autres branches plus énergétiques dans la région du gap du volume, et une autre branche à des faibles énergies au dessous de la bande de volume sont observées dans le cas ou $e = 1.5$.

Par contre, dans le cas d'une masse homogène, nous remarquons l'apparition d'une autre branche au dessus de la bande du volume dont l'énergie est supérieure à celle des phonons du volume, et cinq branches plus énergétiques dans le gap, nous notons toujours la présence d'une seule branches de phonons localisés moins énergétiques au niveau de l'interface et au dessous de la bande du volume. Dans le cas d'une masse légère, nous observons l'apparition de cinq branches de phonons localisés au-dessus de la bande de volume qui possèdent des énergies plus élevées, et juste trois branches au niveau du gap, ainsi une seule branche au-dessous de la bande de volume.

La figure III. 6 (cas d'homogénéité), ne montre aucune branche optique de phonons localisés au-dessus de la bande du volume, cependant nous observons, quatre branches de phonons localisés à des énergies plus élevées dans la région du gap du volume dans le cas d'une masse lourde, ainsi deux autres branches au-dessous de la bande passante. Dans le cas d'une masse homogène, nous observons deux branches de phonons localisés à faibles énergies et deux autres à des énergies plus élevées, par contre, nous remarquons l'existence de cinq branches de phonons localisés au niveau de gap l'interface. Dans le cas $e = 0.5$, nous distinguons cinq branches au-dessus de la bande de volume, aussi trois autres branches de phonons localisés à l'intérieur du gap, ainsi une seule branche au-dessous de la bande de volume.

Sur la figure III. 7, nous remarquons la présence de sept branches à l'intérieur du gap à gauche et quatre à l'intérieur du gap de droite, aussi trois branches de phonons localisés à des faibles énergies dans le cas $e = 1.5$. Dans le cas d'une masse légère, nous observons l'existence de deux branches de phonons localisés avec des énergies élevées, et deux autres avec des énergies plus faibles, et dans le gap du volume il y'a l'existence de cinq branches de phonons du volume. Nous remarquons l'apparition de quatre autres branches de phonons au dessus de la bande de volume dans le cas d'une masse légère.

III. 5. 3. Les densités d'états vibrationnelles locales

Pour avoir les courbes des densités d'états des différents sites au voisinage d'une interface, nous avons utilisé la même méthode basée sur les fonctions de Green.

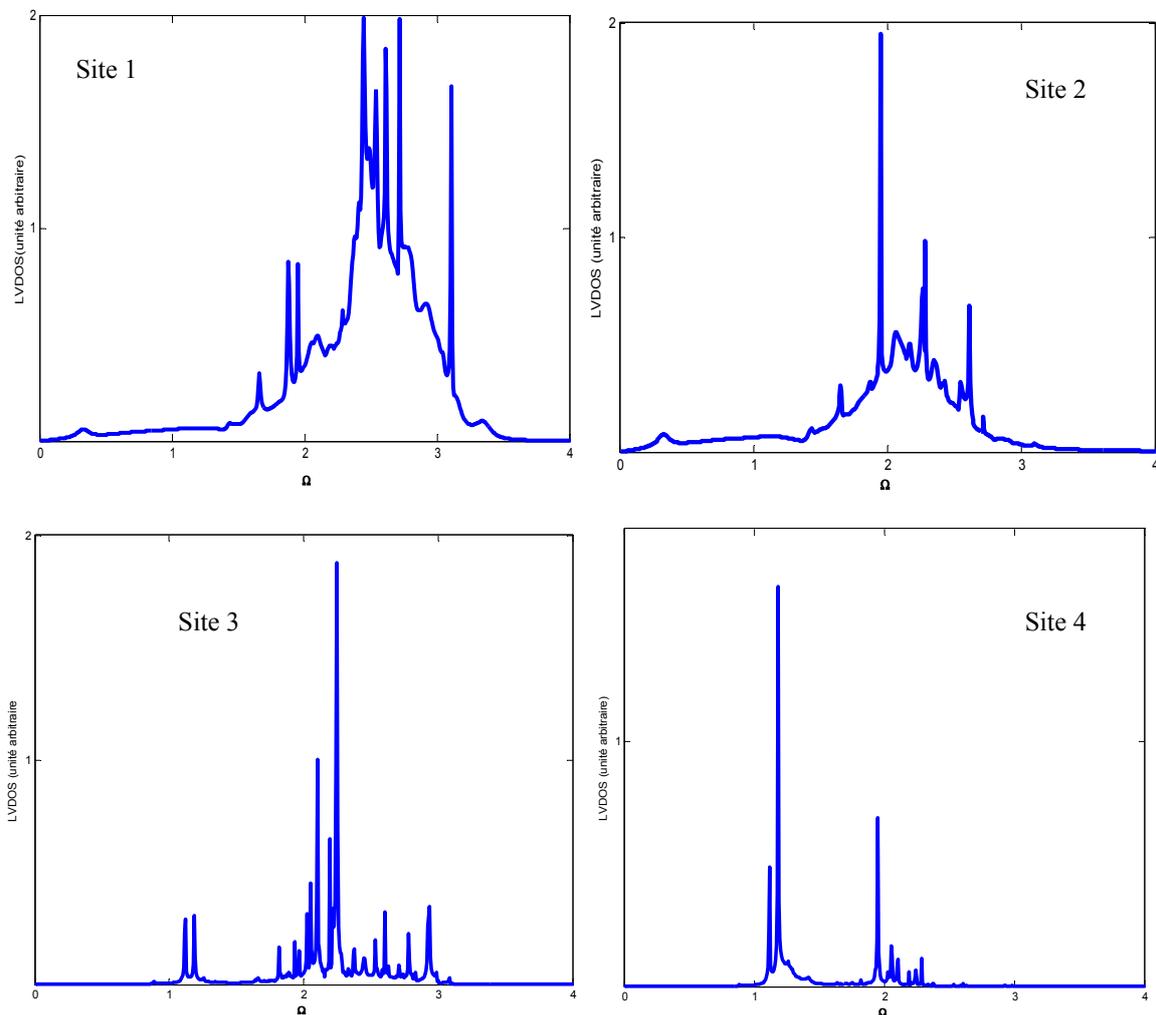


Figure. III. 8. Densités d'états vibrationnelles des sites appartenant à l'interface.

Sur la Fig III.8, nous avons montré, l'évolution des densités d'états des phonons en fonction de la fréquence normalisée dans la première zone de Brillouin, pour l'ensemble des sites irréductibles de la région constituant la zone interfaciale.

Les spectres montrent plusieurs pics d'oscillations qui s'étalent sur une plage de fréquence $[0, 3.5]$, qui sont les limites correspondant au continuum. Nous remarquons que les pics ont des hauteurs et des largeurs dépendent fortement des paramètres du système. D'une manière générale, nous remarquons que les deux atomes (1) et (2) présentent beaucoup plus d'oscillations que les deux autres atomes, et cela est dû à leurs positions qui sont juste aux

limites de l'interface. Par contre les sites (3) et (4) qui se situent juste après le défaut présentent moins de richesse en pics d'oscillations car ils ressentent moins le défaut.

III. 6. Application aux cas réels

III. 6. 1. Etats localisés

III. 6. 1. 1. Cas du système Cu/Pt

Les figure ci-dessous, présentent les états localisés au niveau d'une interface séparant deux systèmes semi-infinis de structures cfc suivant [110], les résultats sont effectués dans le cas d'un système réel Cu/Pt, et son inverse Pt/Cu.

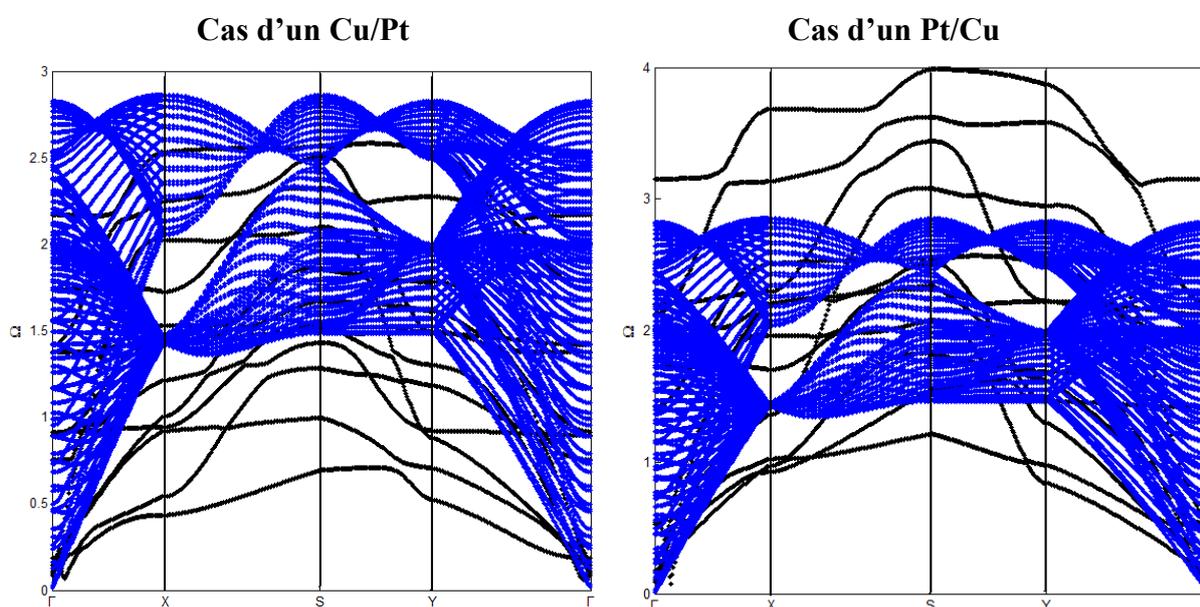


Figure. III. 9. Les états localisés au niveau d'une interface métallique : Cu/Pt et Pt/Cu.

Sur la figure III.9, nous avons représenté les états localisés aux voisinages de deux interfaces métalliques Cu/Pt et Pt/Cu, la bande passante est en bleu, et les traits noirs désignent les branches de phonons localisées aux niveaux des interfaces. Nous remarquons deux types de modes localisés, le premier type se situe au dessus de la bande de volume qui a des énergies plus élevées, le second type se localise au-dessous de la bande passante qui a des énergies plus basses.

Dans le cas d'une interface Cu/Pt, nous distinguons la plupart des branches de phonons localisées (6 branches) se situent au-dessous de la bande de volume, et à l'intérieur du gap énergétique nous remarquons l'apparition de trois autres branches de phonons localisés. Par contre, dans le cas de l'interface Pt/Cu, nous observons quatre branches optiques de phonons

localisés situées au-dessus de la bande passante, nous remarquons aussi quatre autres branches de phonons localisés à l'intérieur du gap, et seulement trois branches de phonons localisés à des basses fréquences situées au-dessous de la bande de volume.

III. 6. 1. 2. Cas du système Au/Pd

Sur la fig. III.10, nous représentons nos calculs pour deux interfaces métalliques Au/Pd et Pd/Au. Ce calcul est obtenu après avoir déterminé les constantes élastiques qui relient les différents atomes (Au, Pd), puis le résultat sera inséré dans nos programmes et nous obtiendrons les états localisés des systèmes métalliques considérés.

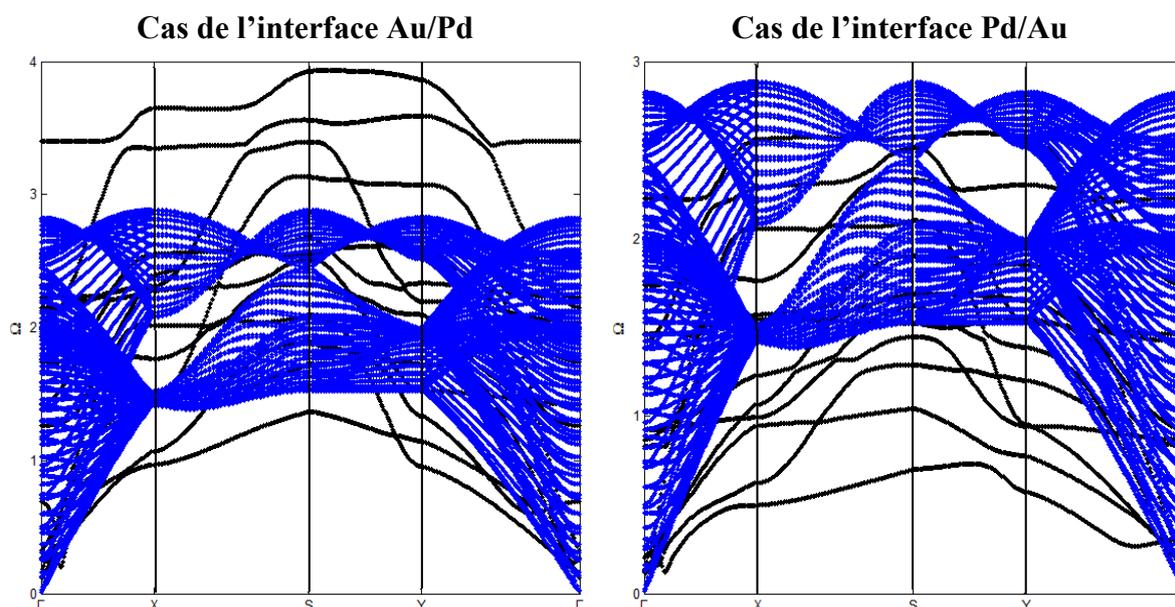


Figure. III. 10. Les états localisés au niveau d'une interface métallique : Au/Pd et Pd/Au.

Sur la figure ci-dessus, nous avons représenté les états localisés au niveau d'une interface métallique Au/Pd à gauche et une interface métallique Pd/Au à droite. D'une manière générale, nous remarquons l'apparition de plusieurs branches de phonons localisés, la majorité de ces branches se situe au-dessus de la bande de phonons (5 branches optiques) à des énergies plus élevées dans le cas d'une interface Au/Pd, aussi, nous remarquons quatre autres branches de phonons à l'intérieur du gap énergétique, et seulement deux branches situées au-dessous de la bande passante. Contrairement au cas d'une interface métallique Pd/Au, nous constatons l'apparition de six branches de phonons localisés au-dessous de la bande de volume à des énergies très faibles, et à l'intérieur du gap, nous observons trois branches de phonons localisés.

III. 6. 1. 3. Cas d'un alliage Cu/Pd

La fig. III.11 représente un calcul similaire pour deux autres interfaces métalliques. La première interface est Pd/Cu sur la partie gauche et l'interface Cu/Pd sur la droite.

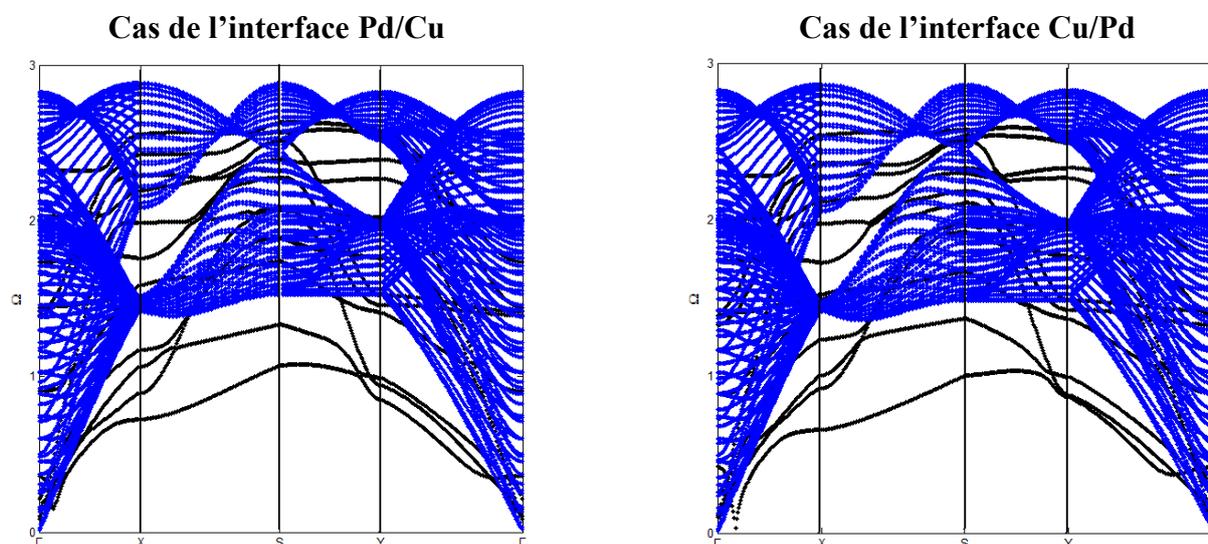


Figure. III. 11 Les états localisés au niveau d'une interface métallique : Pd/Cu et Cu/Pd.

Pour les deux interfaces Pd/Cu et Pd/Cu, nous remarquons l'apparition de cinq branches de phonons localisés à l'intérieur du gap qui ont des énergies plus élevées, et quatre autres branches de phonons à des faibles énergies au-dessous de la bande de volume. Sauf que, nous pouvons remarquer une légère différence sur les valeurs énergétiques des différentes branches de phonons localisés.

III. 6. 2. Densités d'états vibrationnelles

III. 6. 2. 1. Interfaces Cu/Pt et Pt/Cu

Nous avons également calculé les densités d'états pour les différents sites irréductibles des deux interfaces Cu/Pt et Pt/Cu. Les résultats sont représentés sur les figures III.11 et III.12. On note la présence de nombreux pics de résonances et des oscillations qui s'étalent sur une plage de fréquence $[0, 3.50]$. Cet intervalle correspond aux modes propageants. Les densités d'états sont le résultat de la somme des carrés des amplitudes des mouvements atomique des sites irréductibles appartenant à la zone du défaut. On note une multitude de pics de résonance de formes variées pour les différents sites des deux interfaces. Le résultat le plus remarquable c'est la diminution de nombre de pics de résonance pour les sites 3 et 4 (Pt et Cu) dans l'interface Pt/Cu, en comparaison avec ceux de l'interface Cu/Pt.

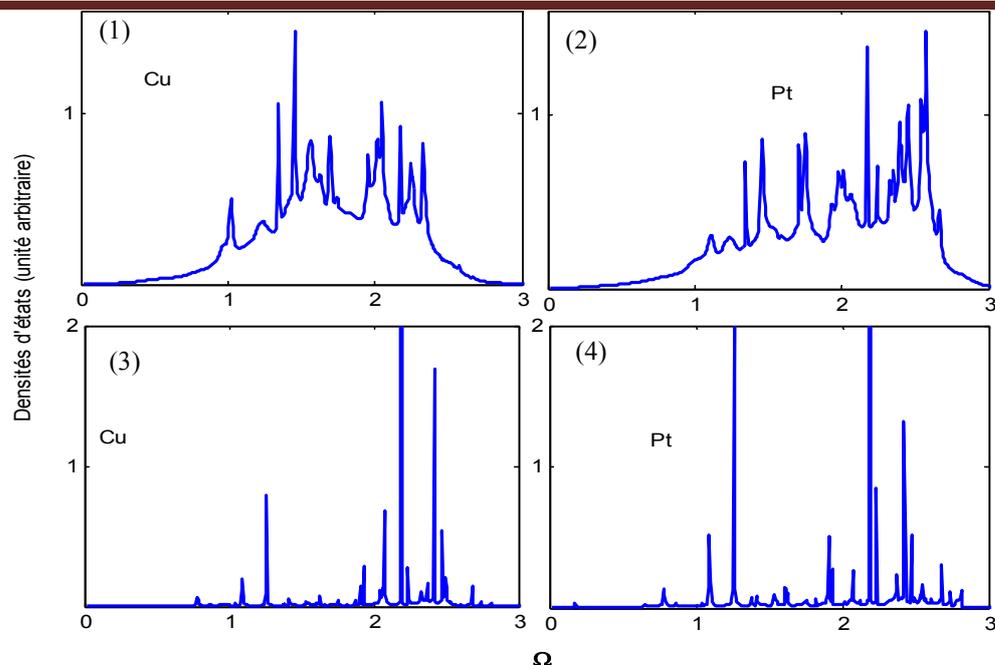


Figure. III. 12. Densité d'états vibrationnelle des sites de l'interface Cu/ Pt.

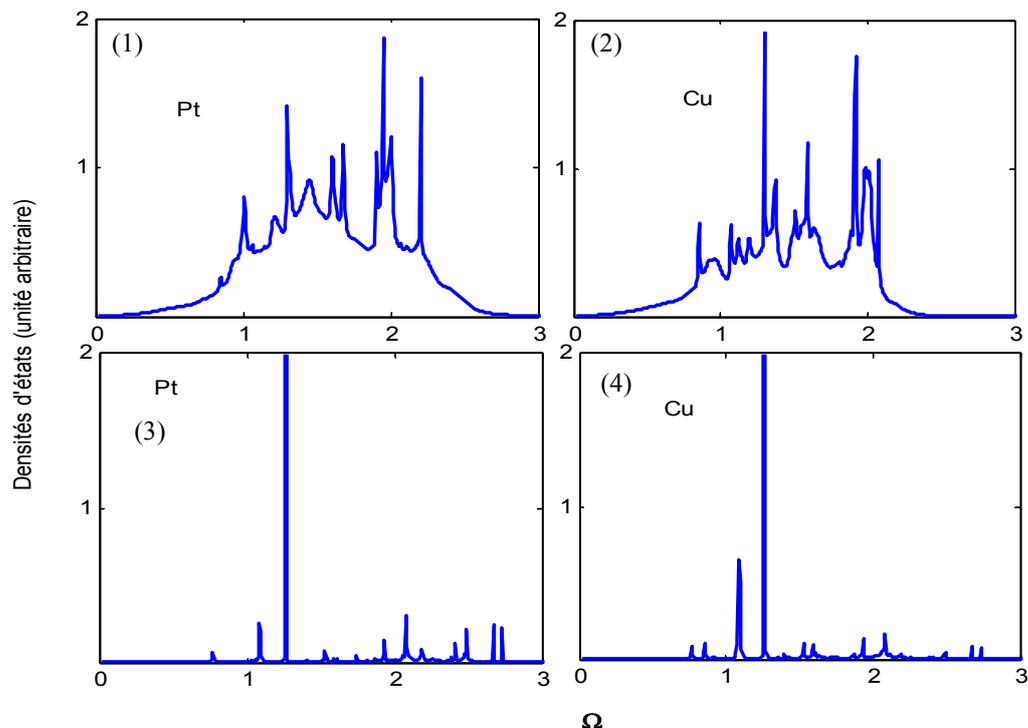


Figure. III. 13. Densité d'états vibrationnelle des sites de l'interface Pt/ Cu.

III. 6. 2. 2. Interfaces Au/Pd et Pd/Au

Les courbes III. 14 et III. 15 donnent les résultats pour les densités d'états vibrationnelles des interfaces Au/Pd et Pd/Au. Les densités d'états sont exprimées en unités arbitraires et sont définies sur l'intervalle de fréquence $[0, 3.50]$ qui correspond à celui de la dispersion de phonons de la structure cfc parfaite à 3D. Nous constatons sur le graphe la présence de plusieurs résonances de nature et de forme différentes à des fréquences variées. Pour les

sites de l'interface métallique Pd/Au, nous distinguons la présence de plusieurs pics de résonances par rapport à ceux de l'interface Au/Pd, et surtout pour le deuxième site. Ce dernier est l'atome de Pd pour l'interface Au/Pd, nous remarquons la présence d'un seul pic plus intense qui se situe à la fréquence $\Omega = 2.41$, par contre, dans la deuxième interface Pd/Au, le site (2) est l'atome d'Au qui présente plusieurs pics de résonances.

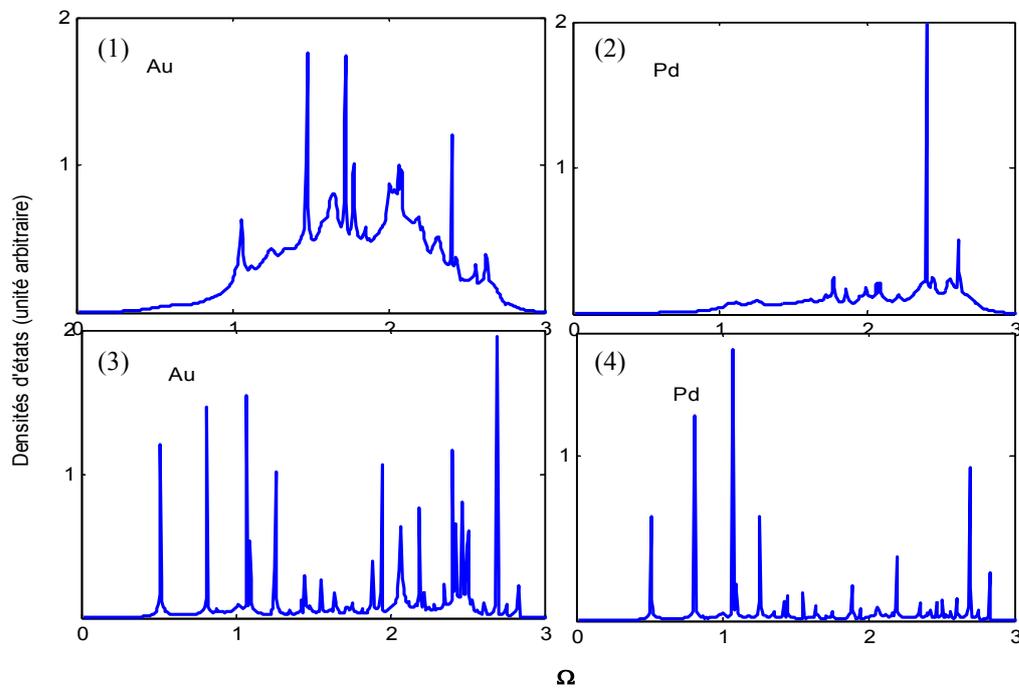


Figure. III. 14. Densité d'états vibrationnelle des sites de l'interface Au/Pd.

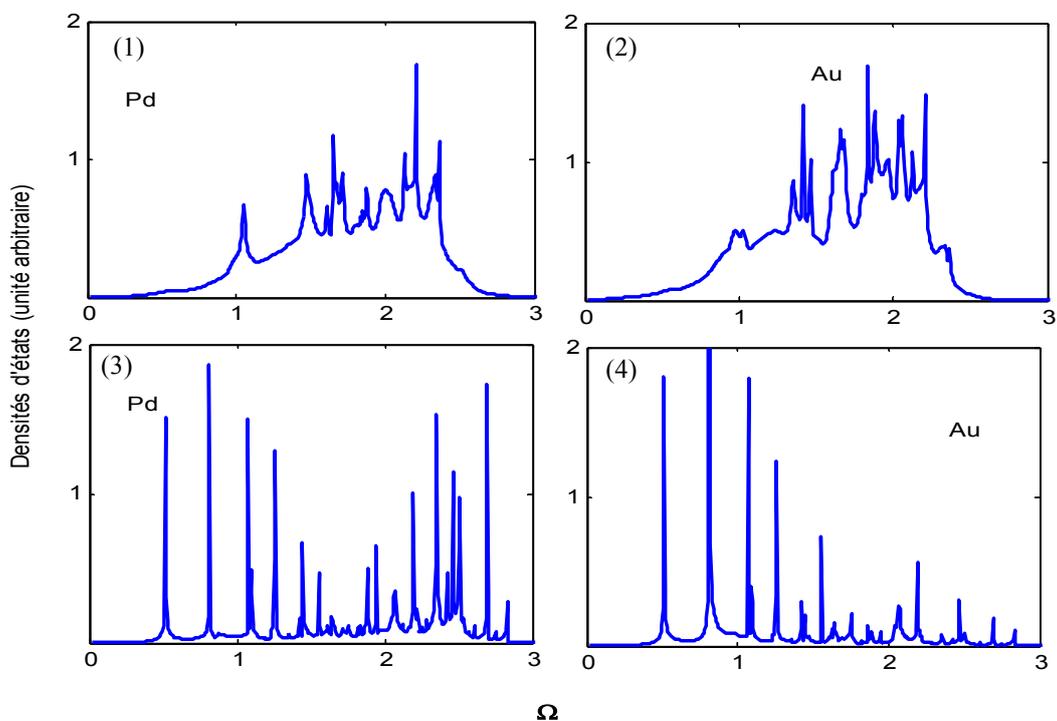


Figure. III. 15. Densité d'états vibrationnelle des sites de l'interface Pd/Au.

III. 6. 2. 3. Interfaces Cu/Pd et Pd/Cu

Sur les figures III.16 et III.17, nous représentons l'évaluation des densités d'états des atomes de Cu et Pd pour les deux interfaces Cu/Pd et Pd/Cu. D'une manière générale, nous remarquons l'apparition d'un ensemble de pics de résonances qui s'étend sur un domaine de fréquence $0 \leq \Omega \leq 3.50$. Dans le cas de l'interface Cu/Pd, on note pour le site 2 (Pd), que les pics de résonances sont concentrés du côté de hautes fréquences, dans le domaine optique. Tandis-que, nous remarquons plusieurs pics de résonances très intenses pour les sites 3 et 4 (Cu, Pd).

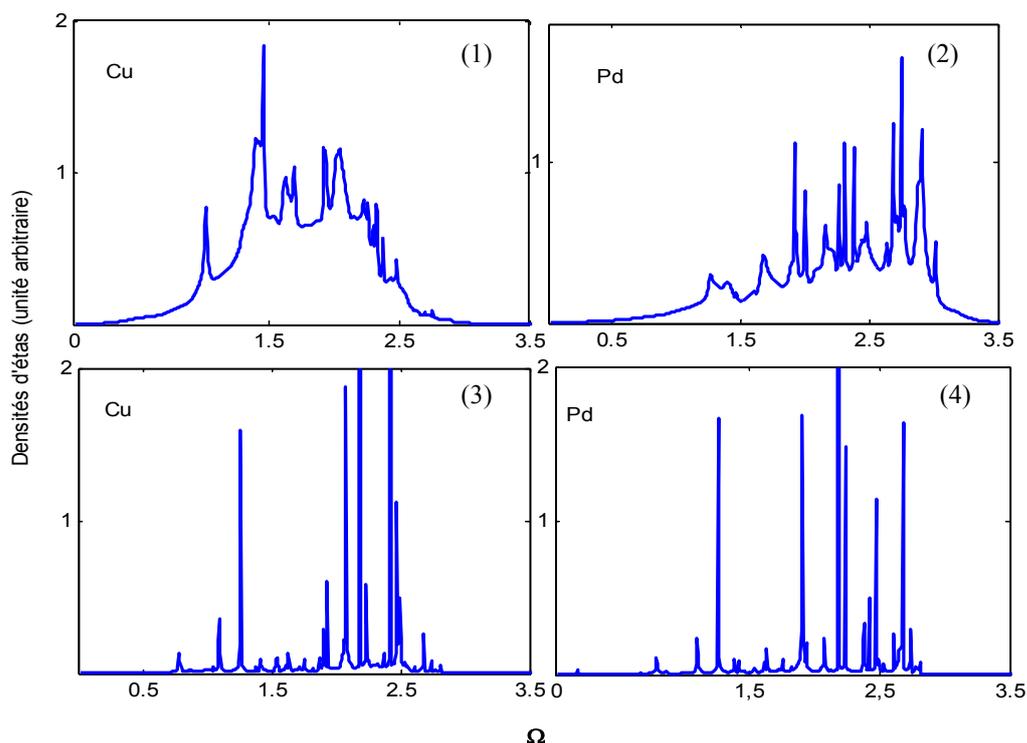


Figure. III. 16. Densité d'états vibrationnelle des sites de l'interface Cu/Pd.

Contrairement au cas de l'interface Pd/Cu, nous remarquons que le site 2 (Cu) présente un seul pic de résonances qui se situe à une faible fréquence $\Omega = 1.24$, aussi que le site 3 (Cu) présente seulement trois pics de résonances situés à des basses fréquences, dans le domaine acoustique.

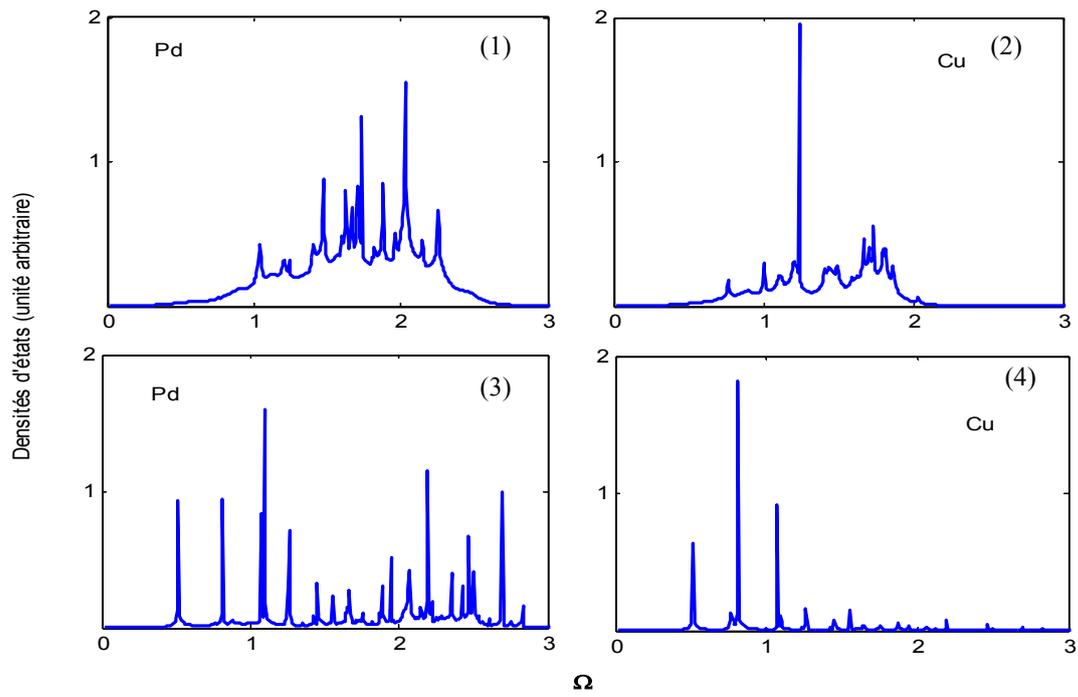


Figure. III. 17. Densité d'états vibrationnelle des sites de l'interface Pd/Cu.

Partie II

III. 7. Structure A/B/A

Dans cette partie, nous étudions les états localisés à travers une autre forme d'interface comme l'indique la figure III.18. Le système modèle est obtenu par implantation d'une lame appartenant à un matériau B (masse m_2) dans un autre matériau A (masse m_1) d'une façon à avoir un système en sandwich entre deux systèmes semi-infinis cfc suivant [110].

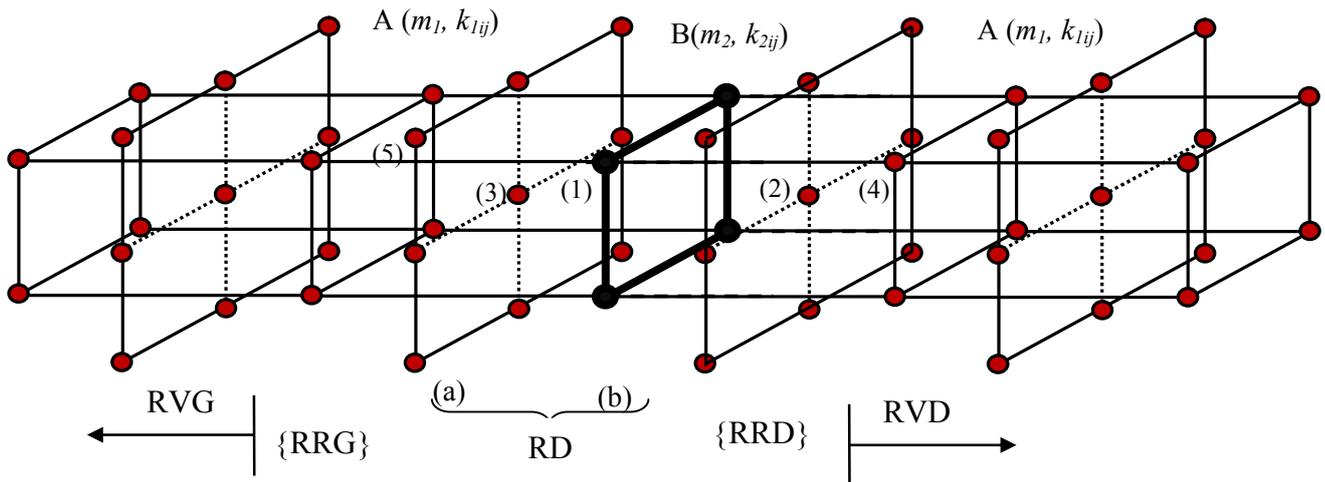


Figure. III. 18. Représentation schématique d'une lame insérée en sandwich entre deux systèmes de type cfc suivant [110].

La matrice dynamique D du système est obtenue en écrivant les équations du mouvement des atomes numérotés de (1) à (3). Nous avons choisi ces atomes de sorte que la région qui les contient, comprenne aussi bien des atomes appartenant à la région du défaut (l'interface), ainsi que ceux qui appartiennent à la région de raccordement présentent un environnement de la région du volume. On obtient une matrice rectangulaire de taille $D(m \times n)$. Alors il y a plus d'inconnues que d'équations (9 équations et 21 inconnues).

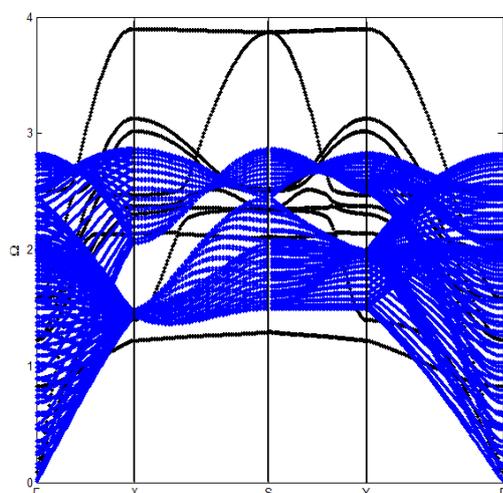
m = le nombre d'atomes dans la zone du défaut (interface) plus ceux de raccordement multipliés par trois degrés de liberté $((1+2) \times 3 = 9)$.

n = m + le nombre d'atomes qui sont reliés directement aux atomes de raccordement multipliés par trois degrés de liberté $(9+4 \times 3 = 21)$.

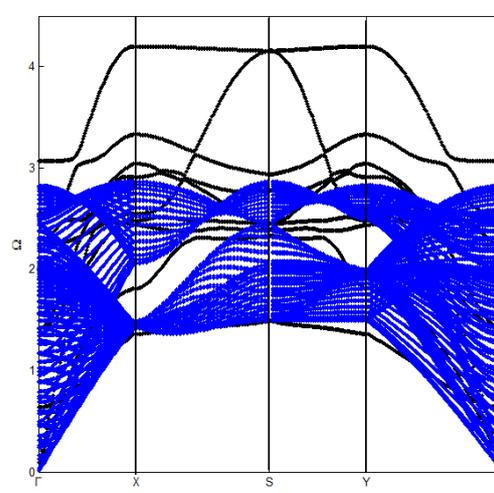
III. 7. 1. Les états localisés au niveau d'une lame insérée

- Cas de masse légère $e = 0.5$

a) cas d'adoucissement



b) cas d'homogénéité



c) cas de durcissement

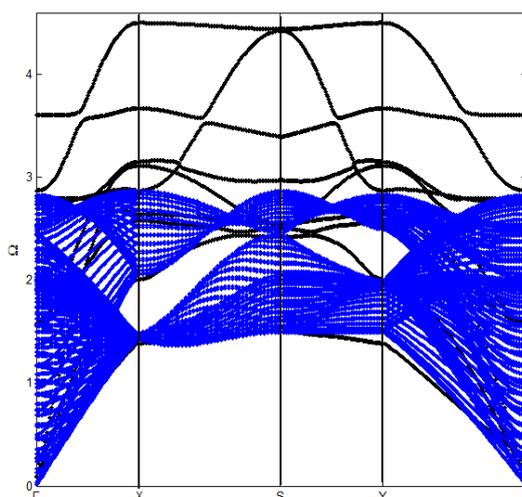


Figure. III. 19. Les états localisés au niveau d'une interface du type A/B/A dans une structure cfc suivant [110] dans le cas d'une masse légère. (a) le cas d'adoucissement, (b) le cas d'homogénéité et (c) le cas de durcissement.

Sur la figure III. 19, nous avons représenté la variation des états localisés au niveau d'une lame insérée en sandwich entre deux structures semi-infinies à cristallisation cfc suivant la direction de haute symétrie. Nous avons effectué nos calculs dans le cas d'une masse légère ($e = m_1/m_2 = 0.5$), en faisant varier les constantes élastiques à savoir le cas d'adoucissement, homogénéité et le cas de durcissement. En général, nous pouvons distinguer l'apparition de plusieurs branches de phonons localisés plus énergétiques, qui se situent à des hautes fréquences au-dessus de la bande passante. Nous remarquons que dans le cas

d'adoucissement, il y'a deux branches optiques de phonons localisés au-dessus de la bande de volume et deux autres branches juste à la limite supérieure de la bande passante à des énergies plus élevées, nous remarquons aussi l'apparition de quatre autres branches de phonons localisés à l'intérieur du gap et une seule branche moins énergétique au-dessous de la bande de volume. Par contre, dans le cas d'homogénéité, nous remarquons trois branches de phonons localisés au-dessus de la bande de volume avec deux autres branches juste à limite supérieure de la bande passante. Aussi, on note la présence de trois autres branches de phonons localisés à l'intérieur du gap, et une seule branche située juste à limite inférieure de la bande de volume. Dans le cas d'adoucissement des constantes élastiques, on observe quatre branches de phonons localisés au-dessus de la bande passante avec une autre branche juste à limite supérieure de la bande, deux autres branches à l'intérieur du gap et une seule branche au-dessous de la bande de volume. D'une manière générale, nous pouvons dire que les branches de phonons localisés au niveau de l'interface se décalent légèrement pour atteindre les hautes fréquences dans le cas de durcissement.

- **Cas d'une masse homogène $e = 1$**

La figure III.20 représente l'évolution des états localisés au niveau de la lame insérée en sandwich. Nous avons fixé le rapport $e = 1$ (cas homogène), et nous avons varié le rapport des constantes élastiques en considérant les trois cas : adoucissement, homogénéité et le durcissement. Nous remarquons l'apparition de plusieurs branches de phonons localisés. Dans le cas d'adoucissement, nous soulignons la présence de deux branches de phonons situées au-dessus de la bande de volume, quatre autres branches de phonons à l'intérieur du gap énergétique, et au-dessous de la bande passante, nous remarquons l'apparition de deux branches de phonons localisés, sauf que l'une des deux (la plus haute) devienne des résonnances dans la direction X-Y. Dans le cas d'homogénéité, nous remarquons la même allure pour les branches de phonons localisés, sauf qu'on dénombre trois branches de phonons localisés au-dessus de la bande de volume, trois branches à l'intérieur du gap et une seule branche moins énergétique située au-dessous de la bande bleue. En plus, dans le cas de durcissement, nous remarquons la présence de trois branches de phonons localisés au-dessus de la bande passante avec une autre branche située exactement à la limite supérieure de la bande, aussi, trois branches dans le gap énergétique et une seule branche au-dessous de la bande passante. Nous pouvons dire que les branches de phonons localisés se déplacent vers les hautes fréquences à chaque fois que le rapport des constantes élastiques augmente.

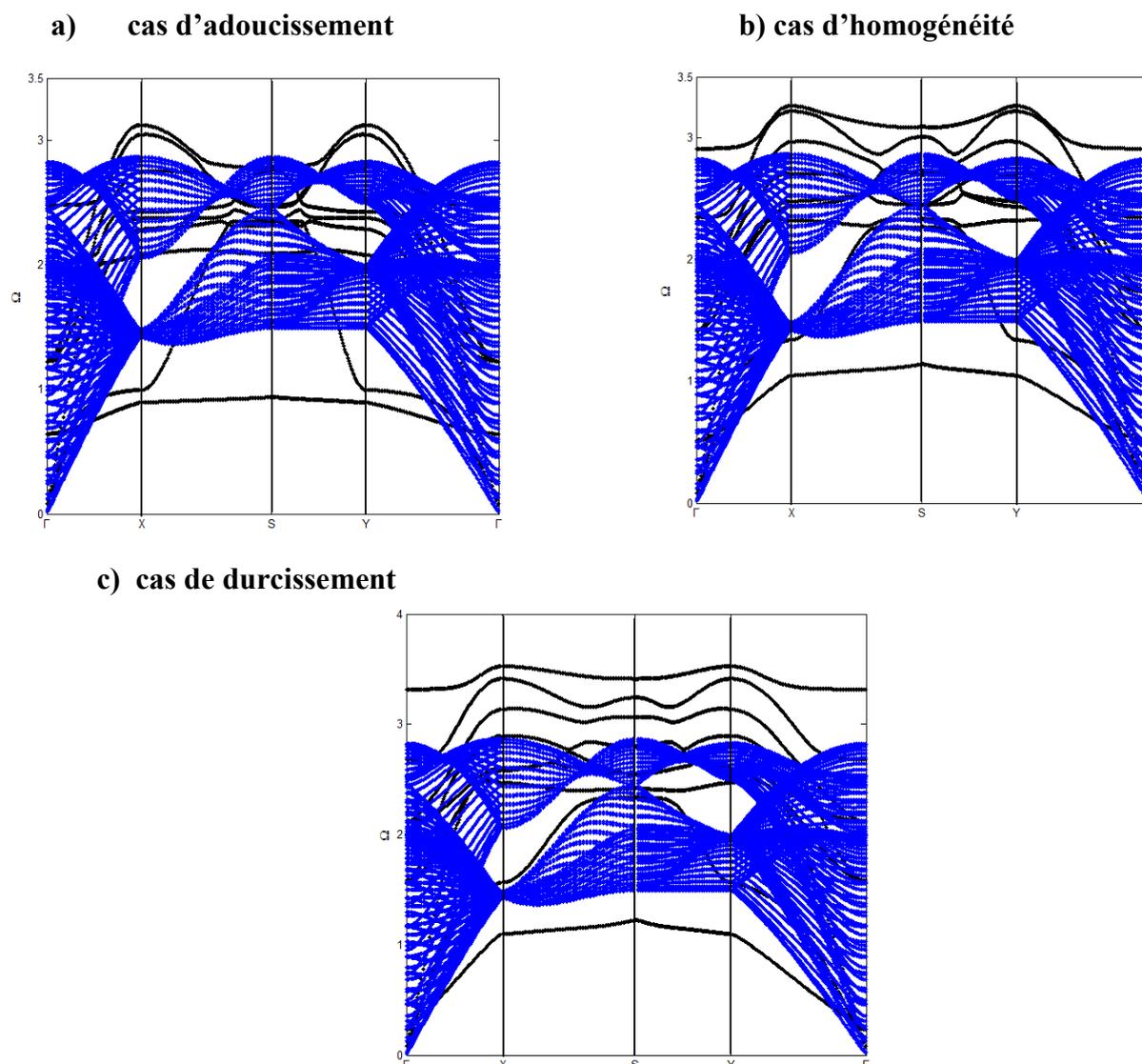


Figure. III. 20. Les états localisés au niveau d'une interface du type A/B/A dans une structure cfc suivant [110] dans le cas d'une masse homogène. (a) le cas d'adoucissement, (b) le cas d'homogénéité et (c) le cas de durcissement.

- **Cas d'une masse lourde $e = 1.5$**

Sur la figure III.21, nous avons représenté les états localisés au niveau d'une lame insérée en sandwich dans deux structures cfc (110]. Le calcul est effectué dans le cas $e = 1.5$, en considérant toujours les trois cas des constantes élastiques. Nous remarquons l'apparition de plusieurs branches de phonons localisés au niveau de la lame considérée. Dans le cas d'adoucissement, nous remarquons la présence de deux branches de phonons localisés au-dessus de la bande de volume, cinq autres branches dans le gap, et aussi deux branches moins énergétique au-dessous de la bande passante et l'une des deux, la plus haute devienne des résonances dans la direction X-Y. Même cas est remarqué dans le cas d'homogénéité, à part qu'il y'a une autre branche qui apparaisse au-dessus de la bande bleue. Cette branche existe à

l'intérieur du gap dans le cas d'adoucissement, et dans ce cas, elle est sortie au-dessus de la bande passante. Par contre, dans le cas de durcissement, nous signalons la présence de trois branches optiques de phonons localisés au-dessus de la bande de volume, deux branches à l'inférieur du gap, et une seule branche au-dessous de la bande passante. Les branches de phonons localisés se déloquent à chaque fois vers les hautes fréquences dans le cas de durcissement.

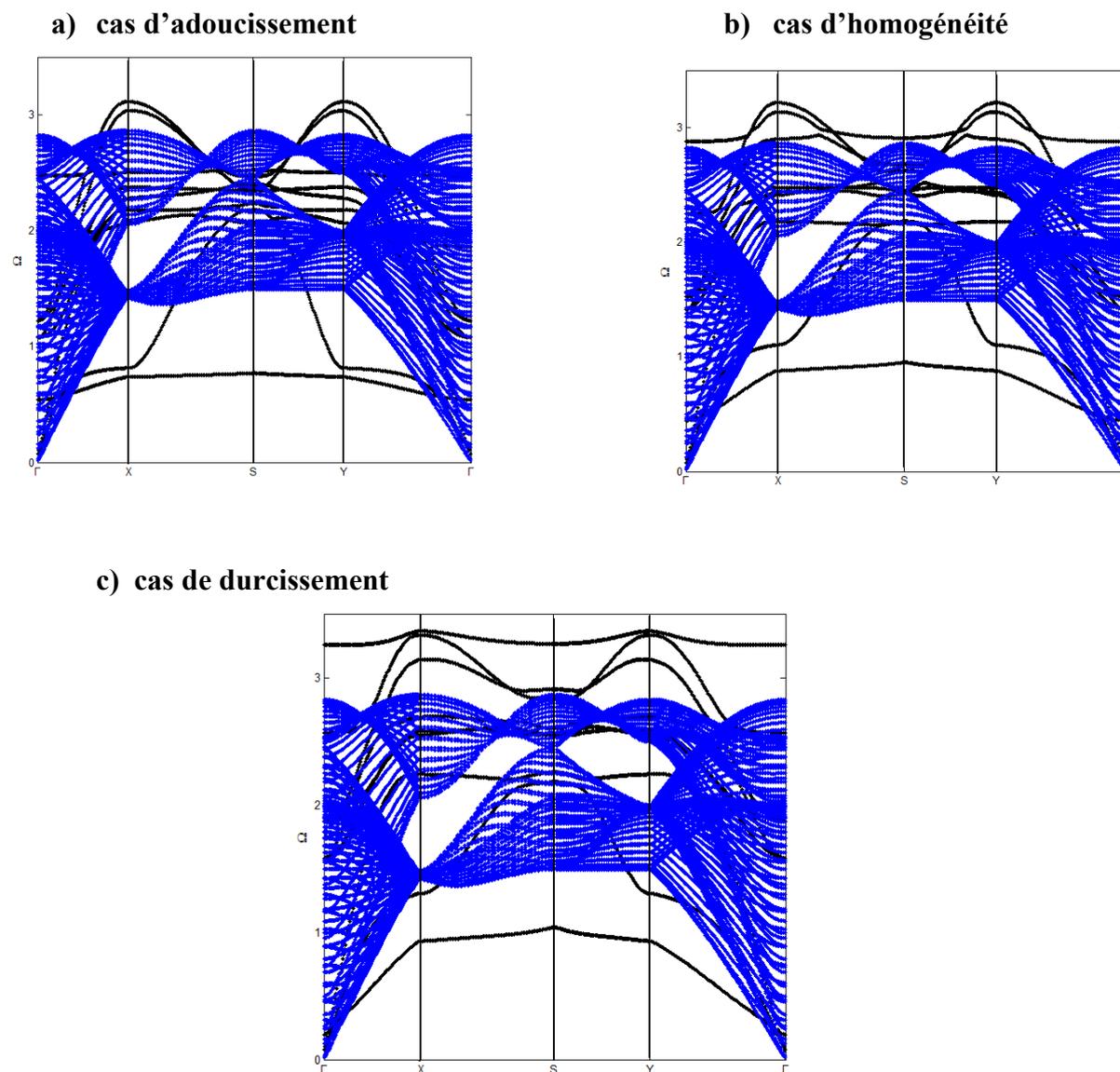


Figure. III. 21. Les états localisés au niveau d'une interface du type A/B/A dans une structure cfc suivant [110] dans le cas d'une masse lourde. (a) le cas d'adoucissement, (b) le cas d'homogénéité et (c) le cas de durcissement.

III. 8. Application aux systèmes sandwich réels

III. 8.1. Cas d'une interface Au/Pd/Au

Nous avons appliqué notre méthode pour une lame de Pd insérée en sandwich entre deux matériaux d'Or, nous avons considéré aussi le cas inverse. Les résultats de nos calculs sont représentés sur la figure III. 22. La figure à gauche est le cas Au/Pd/Au, et celle de droite le cas inverse qui est Pd/Au/Pd.

Nous remarquons que dans le cas Au/Pd/Au, les branches sont plus énergétiques et se situent au-dessus de la bande passante (trois branches), nous notons aussi, la présence de trois autres branches de phonons localisés à l'intérieur du gap, et deux branches au-dessous de la bande de volume. Dans le cas Pd/Au/Pd, nous remarquons les même branches localisés dans le cas précédemment, sauf que dans ce cas on ne note pas les branches optiques très énergétiques.

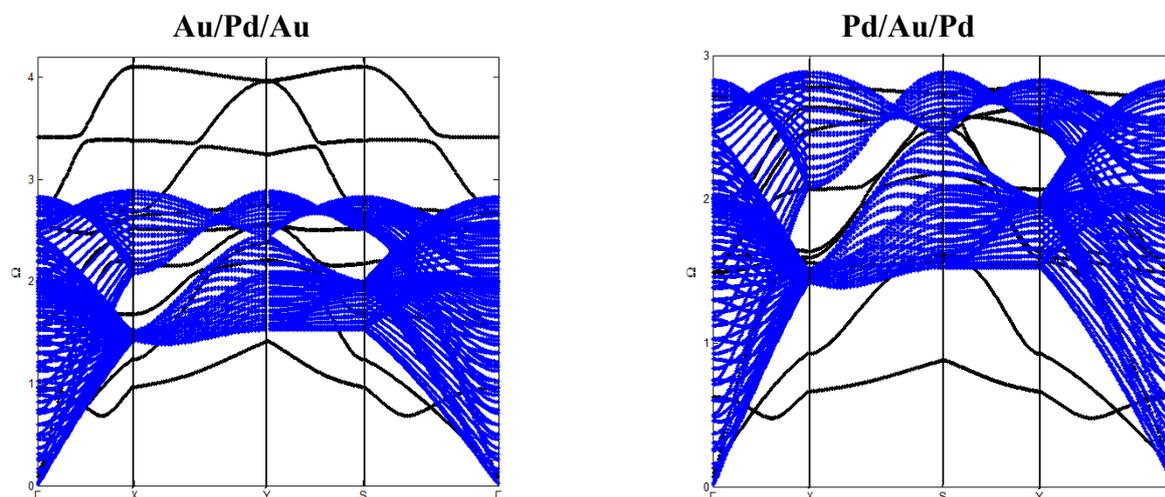


Figure. III. 22. Les états localisés au niveau d'une lame métallique : Au/Pd/Au et Pd/Au/Pd.

III. 8.2. Cas d'une interface Cu/Pt/Cu

Sur la figure III. 23, nous représentons les états localisés au niveau d'une lame de cuivre insérée entre deux structures de platine, à gauche, et son système inverse à droite. Nous remarquons que dans le cas Pt/Cu/Pt, l'apparition de trois branches optiques plus énergétiques au-dessus de la bande passante, trois autres branches à l'intérieur du gap et deux autres branches. Par contre, dans le cas Cu/Pt/Cu, il n'existe aucune branche au-dessus de la bande de volume. Par-ailleurs, nous notons quatre branches de phonons à l'intérieur du gap énergétique et deux autres branches au-dessous de la bande passante.

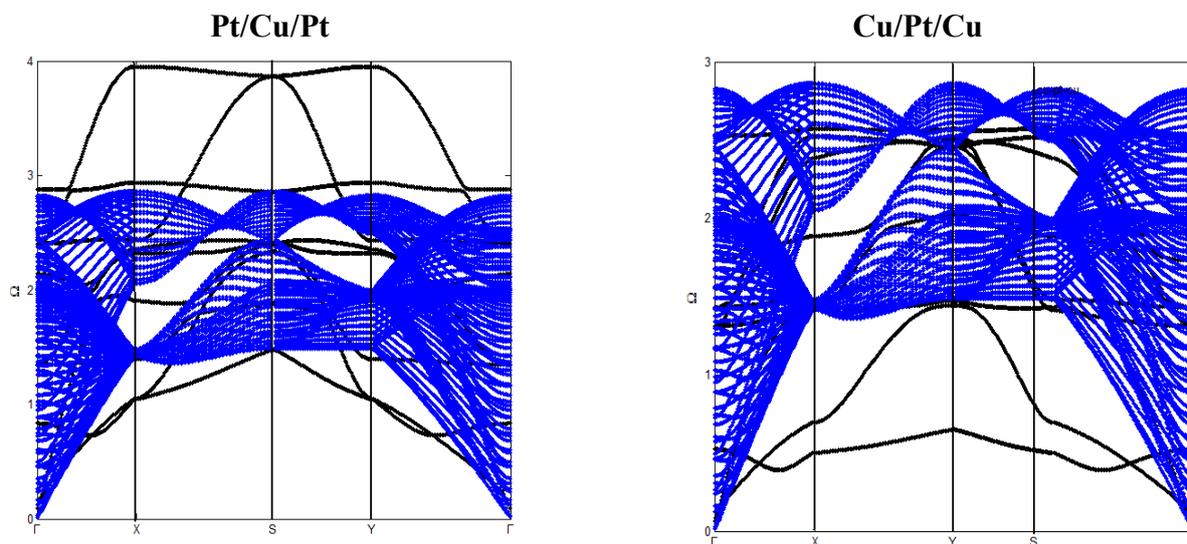


Figure. III. 23. Les états localisés au niveau d'une interface métallique : Pt/Cu/Pt et Cu/Pt/Cu.

III. 8.3. Cas d'une interface Cu/Pd/Cu

La fig. III.24, représente un calcul des états localisés pour deux autres lames insérées en sandwich métallique. La première interface est Cu/Pd/Cu sur la partie gauche et l'interface Pd/Cu/Pd sur la droite.

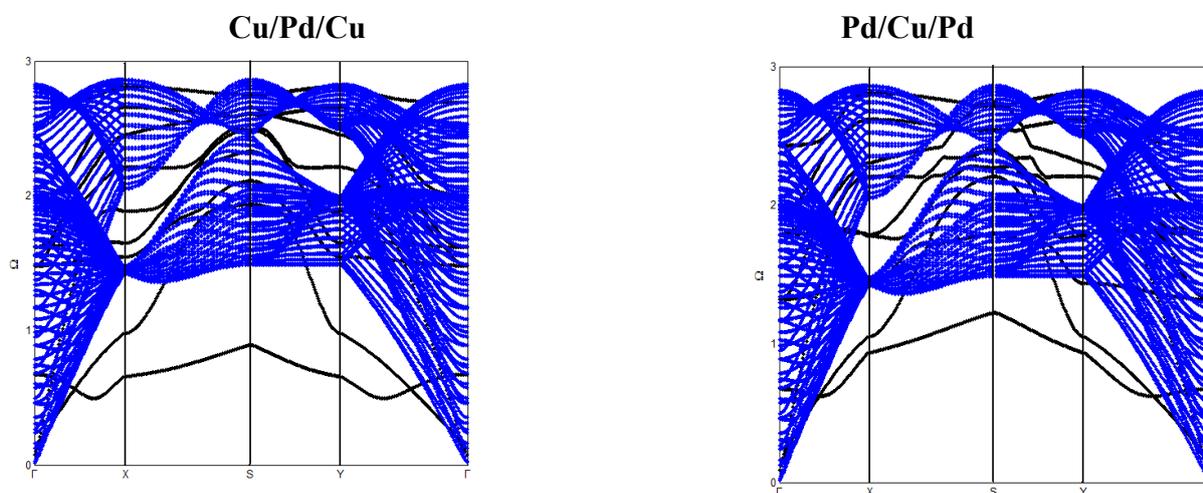


Figure. III. 24. Les états localisés au niveau d'une interface métallique : Cu/Pd/Cu et Pd/Cu/Pd.

Pour les deux structures Cu/Pd/Cu et Pd/Cu/Pd, nous remarquons l'apparition de plusieurs branches de phonons localisés à l'intérieur du gap qui ont des énergies plus élevées et deux autres branches de phonons à des faibles énergies au-dessous de la bande de volume. A part que, nous pouvons distinguer une légère différence dans les valeurs énergétiques des différentes branches de phonons localisés.

III. 9. Densités d'états vibrationnelles locales

III. 9. 1. Densités d'états vibrationnelles des sites Cu et Pt

La variation des densités d'états des sites Cu et Pt est représentée sur les figs. III. 25 et III.26. Les spectres montrent des pics et des oscillations qui s'étalent sur une plage de fréquences correspondantes aux modes propageants. On note une multitude de pics de résonances de formes variées, et d'amplitudes différentes, leurs nombres, hauteurs, et largeurs dépendent fortement de la masse de l'atome de l'interface.

Nous remarquons que les pics de résonances sont beaucoup plus important dans le cas d'une lame platine Cu/Pt/Cu que dans le cas de la lame cuivre Pt/Cu/Pt. Par exemple, le cas du site 2 (Cu) dans le cas Cu/Pt/Cu, présente plusieurs pics de résonances, alors que dans le cas inverse, on remarque seulement deux pics plus intenses situés à des fréquences, $\Omega = 2.14$ et $\Omega = 2.23$.

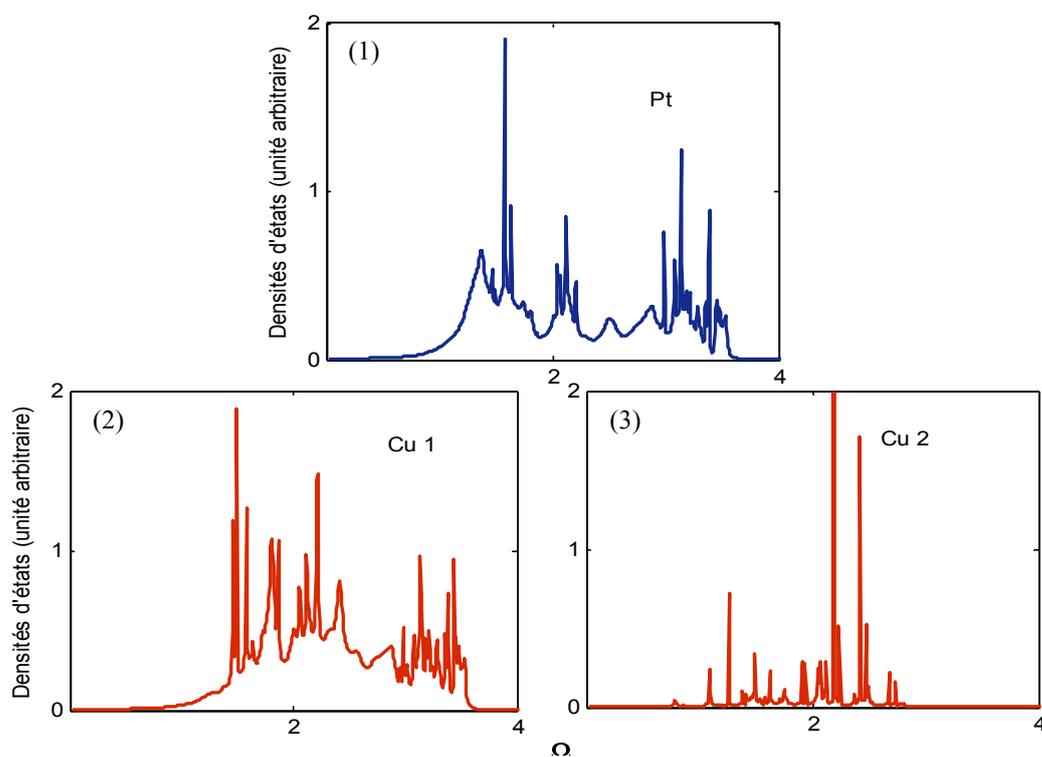


Figure. III. 25. Densités d'états vibrationnelles locales des sites de l'interface dans la structure Cu/Pt/Cu.

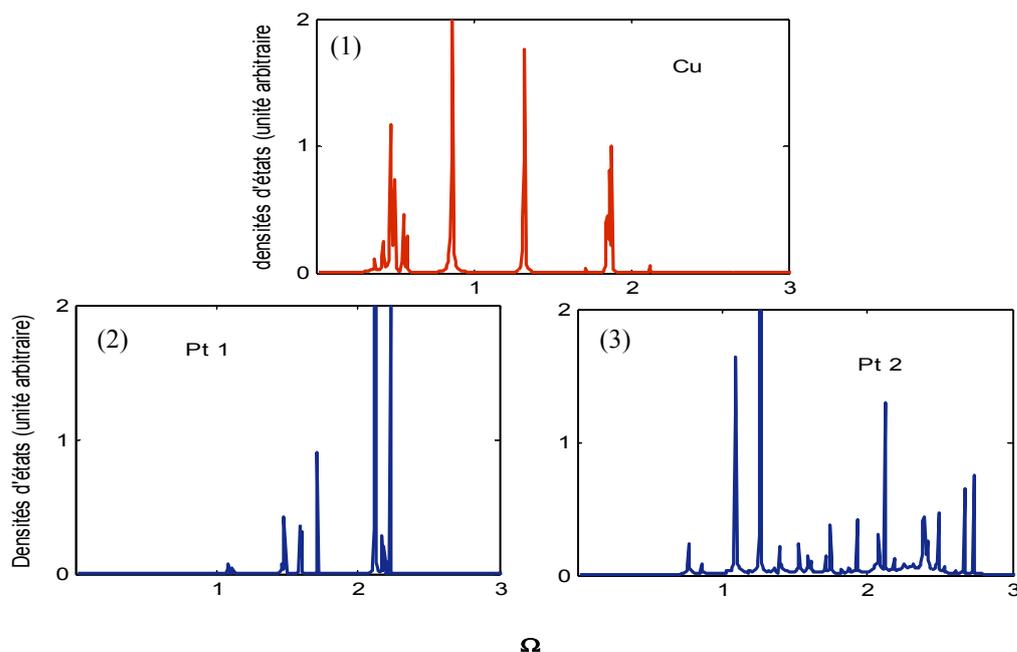


Figure.III. 26. Densités d'états vibrationnelles locales des sites de l'interface dans la structure Pt/Cu/Pt.

III. 9. 2. Densités d'états vibrationnelles des sites Au et Pd

Nous avons également calculé les densités d'états vibrationnelles pour les différents sites Pd et Au dans les structures considérées. Les résultats sont représentés sur les figures III. 27 et III. 28, en fonction des fréquences excitatrices. Nous remarquons que pour le système Au/Pd/Au, les densités d'états présentent plusieurs pics de résonances pour les trois sites.

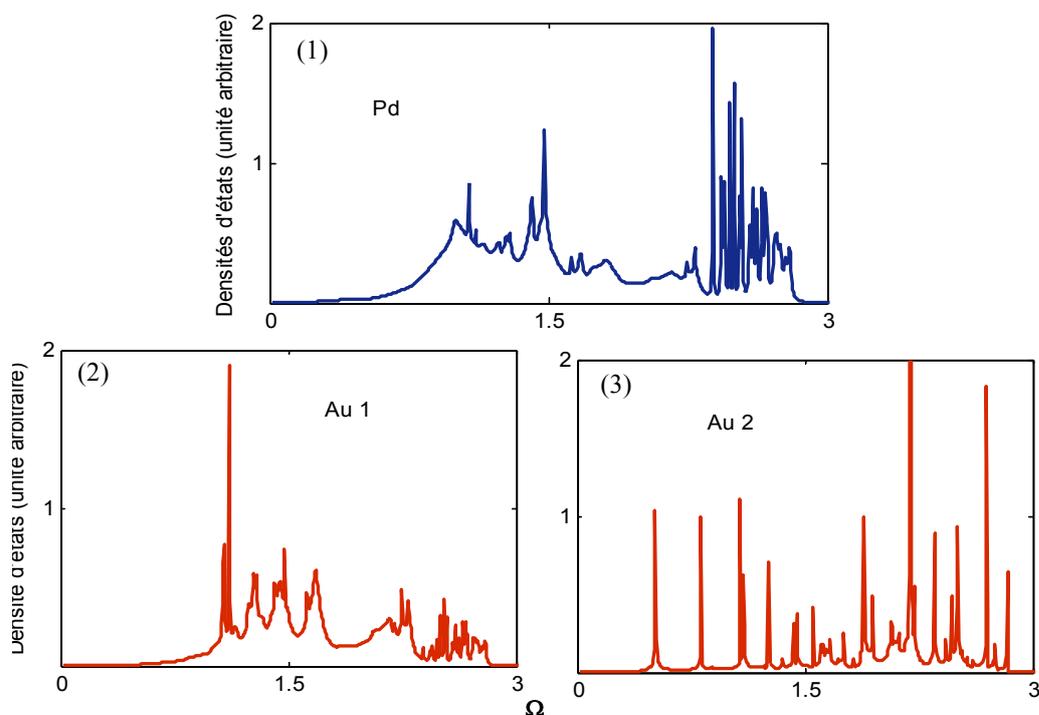


Figure.III. 27. Densités d'états vibrationnelles locales des sites de l'interface dans la structure Au/Pd/Au.

Et pour le cas inverse, nous signalons que les courbes des densités d'états ont une allure semblable que le système précédent, mais pas identique.

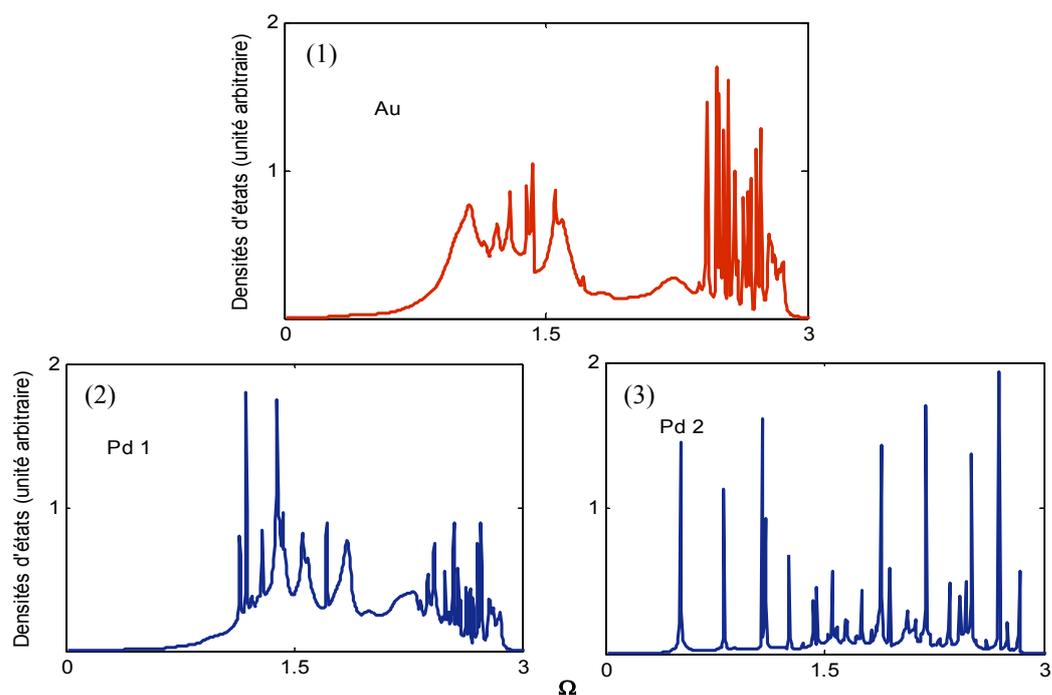


Figure. III. 28. Densités d'états vibrationnelles locales des sites de l'interface dans la structure Pd/Au/Pd.

III. 9. 3. Densités d'états vibrationnelles des sites Cu et Pd

Sur les figures III. 29 et III. 30, nous représentons la variation des densités d'états vibrationnelles locales des deux systèmes Pd/Cu/Pd et Cu/Pd/Cu, respectivement, en fonction de la fréquence normalisée dans la première zone de Brillouin. Nous pouvons dire que les densités d'états vibrationnelles des différents atomes présentent beaucoup plus de pics de résonances dans le système Pd/Cu/Pd que dans le système inverse, par exemple pour le site 2 qui est l'atome de Palladium dans le système Pd/Cu/Pd, présente plusieurs pics d'oscillations qui s'étalent à travers une plage de fréquences [0.7, 2.8]. Par contre, dans le cas Cu/Pd/Cu, la densité d'état du site 2 qui est l'atome de cuivre, présente un seul pic de résonances situé à une fréquence 1.81. Même cas pour le site 3, où on note plus de pics de résonances dans le cas du sandwich Pd/Cu/Pd en comparaison avec celui du système Cu/Pd/Cu, où on dénombre seulement deux pics de résonances plus intenses situés autour d'une fréquence $\Omega = 2$.

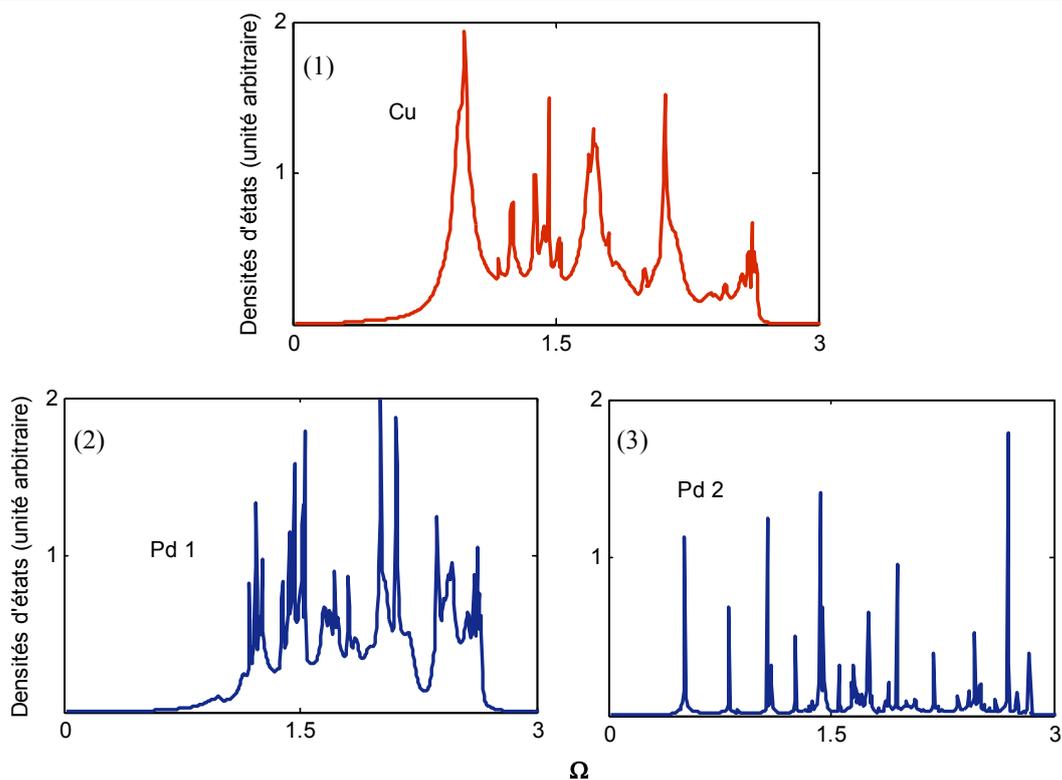


Figure. III. 29. Densités d'états vibrationnelles locales des sites de l'interface du système Pd/Cu/Pd.

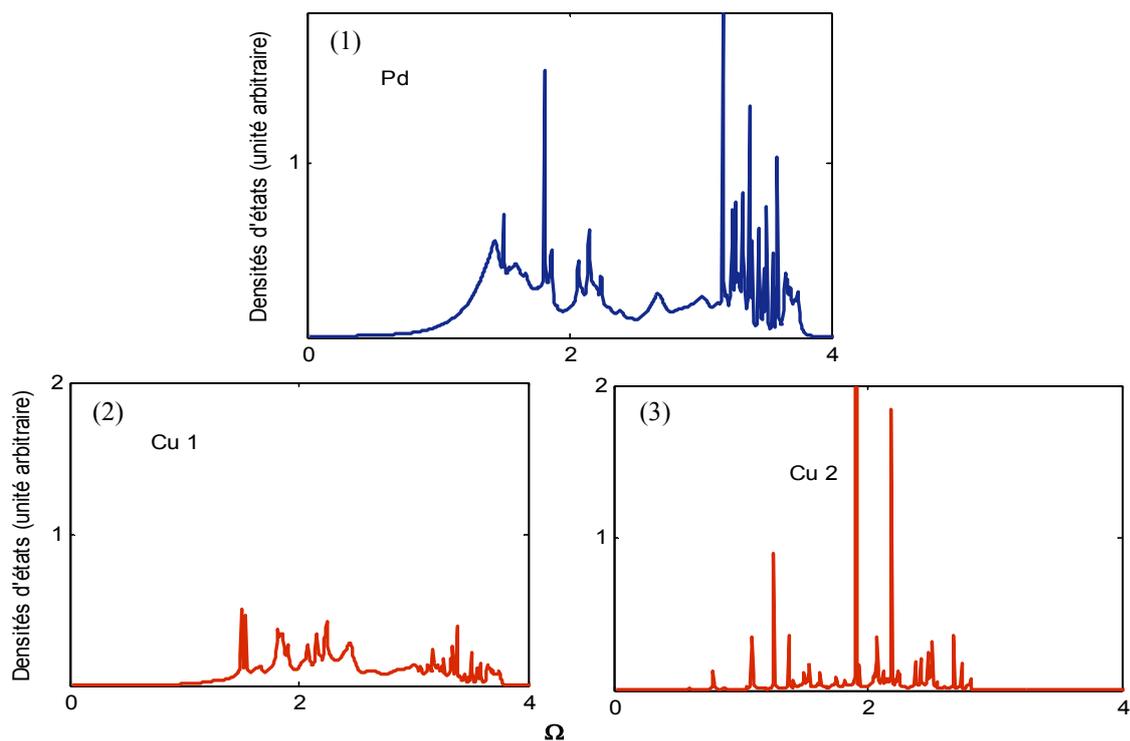


Figure. III. 30. Densités d'états vibrationnelles locales des sites de l'interface du système Cu/Pd/Cu.

Conclusion

Nous avons présenté deux systèmes modèles : le premier est une interface entre deux structures différentes du type cubique à faces centrées suivant la direction [110] ; le second est une lame insérée en sandwich entre deux structures semi-infinies de même cristallisation. Nous avons déterminé les matrices dynamiques des systèmes perturbés, et aussi tracé les états localisés au niveau de l'interface et de la lame considérée pour trois cas différents : $m_2 < m_1$, $m_2 = m_1$, et $m_2 > m_1$ et dans chaque cas, nous avons considéré l'adoucissement, l'homogénéité et le durcissement des constantes élastiques au niveau des défauts.

Nous avons relevé que le rapport des masses et le rapport des constantes des forces influent fortement sur les courbes des phonons localisées. A chaque fois que le rapport des masses est grand, les énergies des branches de phonons localisés diminuent et le cas contraire pour les constantes élastiques. Nous remarquons à chaque fois que les constantes élastiques sont importantes les branches de phonons localisés se décalent vers les hautes fréquences, et diminue au fur et à mesure que les constantes élastiques diminuent jusqu'à disparaître dans la bande du volume. Nous remarquons aussi que le nombre des branches augmente au dessous de la bande des phonons du volume à chaque fois que le rapport des masses augmente (proportionnalité). Pour ce qui est densités d'états vibrationnelles, nous remarquons plusieurs pics de résonances pour certains atomes, et pour d'autres on trouve soit un seul pic ou deux.

Références du chapitre III

- [1] M. M. Shukla and Huberto, C. J. Lambert, J. K. Wigmore, *Physica B* 263, 739 (1999).
- [2] H. Zhao and J. B. Freund, *J. Appl. Phys.* 97, 024903 (2005).
- [3] Carolina Abs Da Cruz, Thèse de Doctorat, Université de Lyon (2011).
- [4] S. Hong and T.S. Rahman, *Phys. Rev. B* 72, 205424 (2005).
- [5] R. Chadli, Thèse de Doctorat, Université M. Mammeri de Tizi Ouzou (2012).
- [6] D. A. Young and H. J. Maris, *Phys. Rev. B* 40, 3685 (1989).
- [7] M. Boucherrab, Thèse de Doctorat, Université M. Mammeri de Tizi Ouzou (2015).
- [8] Nicolas Marsot. Thèse de Doctorat d'état de l'université de Paris XI Orsay (1999).
- [9] A. Akjouj, B. Sylla, P. Zielidskit and L. Dobrzynski, *J. Phys. C: Solid State Phys.* 20, 6137 (1987).
- [10] D. A. Young and H. J. Maris, *Phys. Rev B* 40, 3685 (1989).
- [11] A. Ajouj, B. Sylla and L. Dobrzynski, *Annl. Phys. Fr.* 18, 363 (1993).
- [12] S. Hang and T. S. Rahman. *Phys. Rev. B* 72, 205424 (2005).
- [13] H. Zhao and J. B. Freund, *J. Appl.* 97, 024903 (2005).
- [14] P. K. Schelling and S. R. Phillpat, *J. Appl. Phys* 93, 5377 (2003).
- [15] P. Masri, and B. Djafri-Rouhani, *J. Phys. Colloque* 45, C5-37-C5-44 (1984).
- [16] N. Mingo, *Phys. Rev. B* 74, 125402 (2006).
- [17] B. Jusserand, *Phys. Rev B.* 42, 7256 (1990).
- [18] M. Belhadi and R. Chadli, *Surf. Rev. Lett.* 11, 321 (2004).

Chapitre VI

Propriétés vibrationnelles d'une surface alliage ordonnée Cu/Pt(111)

Objectif du chapitre

Dans ce chapitre, nous présentons une étude concernant un autre type d'inhomogénéité, à savoir une surface métallique Cu/Pt(111). Après détermination des matrices, dynamique et de raccordement, nous calculons les états localisés et les densités d'états vibrationnelles pour la surface propre en platine. Ensuite, nous calculons les mêmes grandeurs pour la surface alliage Cu-Pt(111). Puis, nous les avons comparées. Nous discuterons de l'influence de l'atome de cuivre sur les propriétés vibrationnelles de la surface Pt(111).

Introduction

L'étude des surfaces est un thème d'actualité intéressant dans le domaine de la physique des surfaces et d'interfaces. Elle permet, en effet, d'expliquer les phénomènes importants comme l'adsorption, la diffusion ainsi que la croissance cristalline. La surface est le lieu d'interactions entre le matériau et son environnement. Par conséquent, les surfaces jouent un rôle essentiel dans un grand nombre d'applications en nanotechnologie. Elles sont souvent utilisées comme des supports pour les nano-objets et interviennent directement dans les propriétés du matériau qu'on souhaite réaliser. A l'échelle atomique, une surface représente un environnement très asymétrique où les atomes ont une coordination et une structure électronique modifiées par rapport aux atomes du volume. Il en résulte que la structure de la surface peut être radicalement différente d'une simple terminaison du cristal [1].

Les premiers travaux de la physique des vibrations des surfaces sont réalisés par Lord Rayleigh (1882), qui étudia la propagation des ondes en surface des milieux continus [2]. En

suite, en 1911, Love traita un autre type d'onde de surface qui peut exister lorsque une couche d'un matériau isotrope est supportée par un substrat d'un autre type de matériau isotrope [3]. De plus, la surface d'un solide abaisse les fréquences des vibrations en volume, causant l'apparition d'ondes de surface (localisées) et des variations de la densité des états vibrationnelle. En conséquence, elle doit contribuer, de façon spécifique, aux propriétés vibrationnelles du solide [4].

La formation des alliages est un sujet compliqué dans la science des matériaux, on parle d'un alliage qui est le Cu – Pt. Ce sont des alliages très intéressants du point de vue de leurs propriétés catalytiques, et magnétiques. Pour cela ces alliages de surface ont été largement étudiés par plusieurs auteurs [5-10], et ce pour leur intérêt technologique et scientifique, dans l'adsorption, la réactivité, la catalyse, ...

Dans ce chapitre, on s'intéresse à une surface métallique ordonnée Cu-Pt (111), obtenue par dépôt d'atome de cuivre sur un substrat de Platine d'une façon que chaque atome de platine sera entouré de six atomes de Cuivre.

IV. 1 Première zone de Brillouin et direction de symétrie de la surface [111]

- *Réseau direct*

La structure du réseau direct de la surface (111) est hexagonal (Fig. IV. 1), elle est défini par les deux vecteurs de base \vec{a} et \vec{b} suivants :

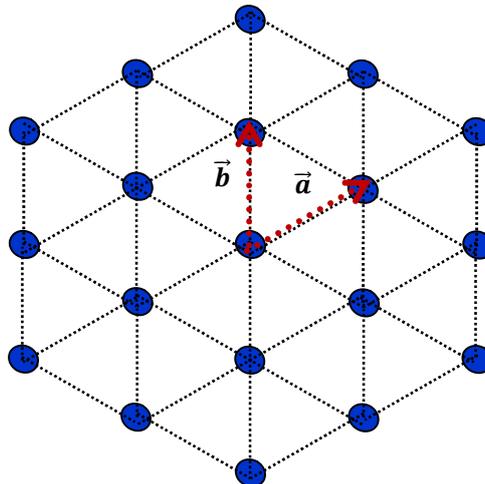


Figure. IV. 1. Représentation des réseaux directs de la surface (111).

$$\vec{a} \begin{pmatrix} a\sqrt{3/2}/2 \\ a/2\sqrt{2} \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \vec{b} \begin{pmatrix} 0 \\ a/\sqrt{2} \end{pmatrix}.$$

- **Réseau réciproque**

Le réseau réciproque du réseau direct de la surface (111) (fig. IV. 2) est obtenu à l'aide des deux vecteurs de base \vec{A}^* et \vec{B}^* comme suit :

$$\vec{A}^* \cdot \vec{a} = 2\pi$$

$$\vec{B}^* \cdot \vec{b} = 2\pi$$

$$\vec{a} \cdot \vec{B}^* = 0$$

$$\vec{b} \cdot \vec{A}^* = 0$$

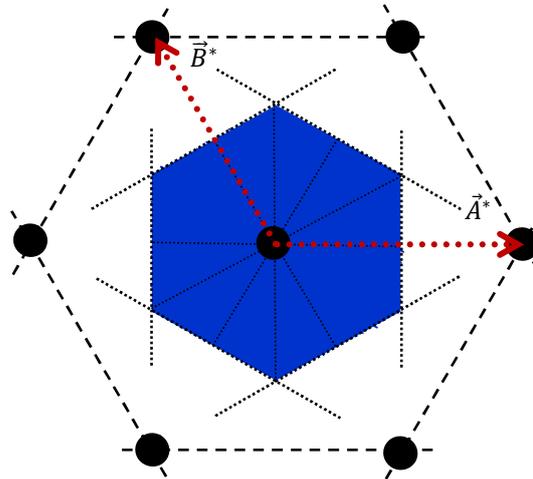


Figure. IV. 2. Représentation du réseau réciproque de la surface (111).

Un simple calcul numérique permet d'avoir les résultats suivants :

$$\vec{A}^* \begin{pmatrix} 4\sqrt{2/3} \pi/a \\ 0 \end{pmatrix} \quad \vec{B}^* \begin{pmatrix} -2\sqrt{2/3} \pi/a \\ 2\sqrt{2} \pi/a \end{pmatrix}$$

$$\|\vec{A}^*\| = 4\sqrt{2/3} \pi/a \quad \|\vec{B}^*\| = 4\sqrt{2/3} \pi/a.$$

- **Première zone de Brillouin**

La première zone de Brillouin du réseau hexagonal de la structure cubique à faces centrées dans la direction (111) est définie dans le réseau réciproque.

Sur la fig. IV. 3, nous avons représenté la première zone de Brillouin réduite, les points remarquables de cette zone sont les points de haute symétrie $\bar{\Gamma}$, K et X.

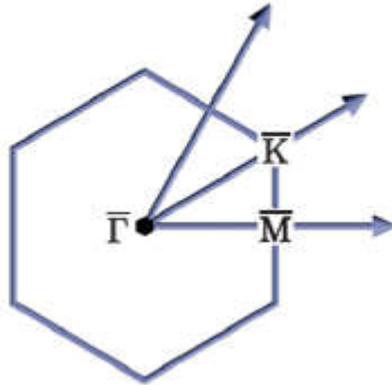


Figure. IV. 3. Représentation de la première zone de Brillouin réduite de la surface (111).

IV. 2. Représentation d'une structure cristalline dans un cfc (111)

Les atomes dans une structure cristalline cubique à faces centrées suivant la direction [111] sont arrangés de la manière suivante : un empilement de plans ordonné (ABC ABC, ...) qui est une structure hexagonale comme on l'a représenté sur la figure fig. IV. 4.

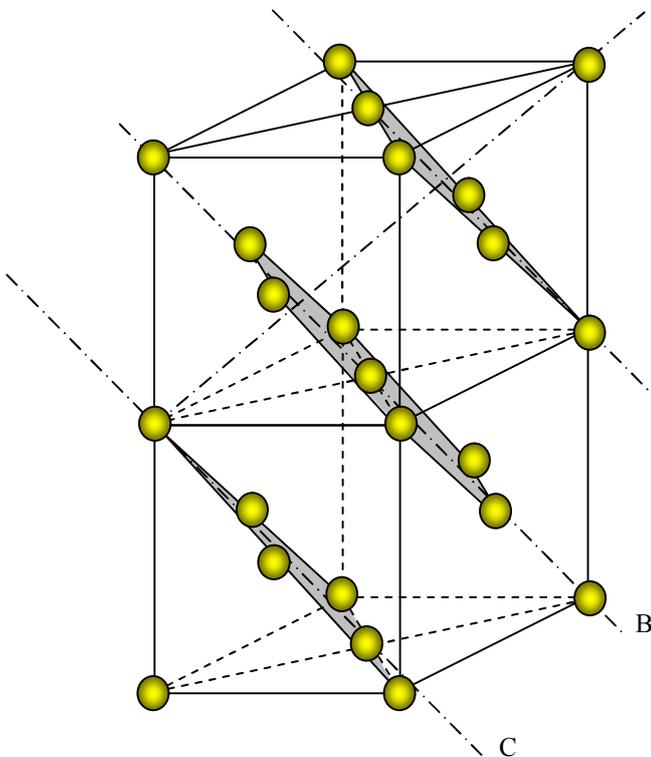


Figure. IV. 4. Empilement atomiques ABC d'une structure cristalline cfc suivant la direction [111].

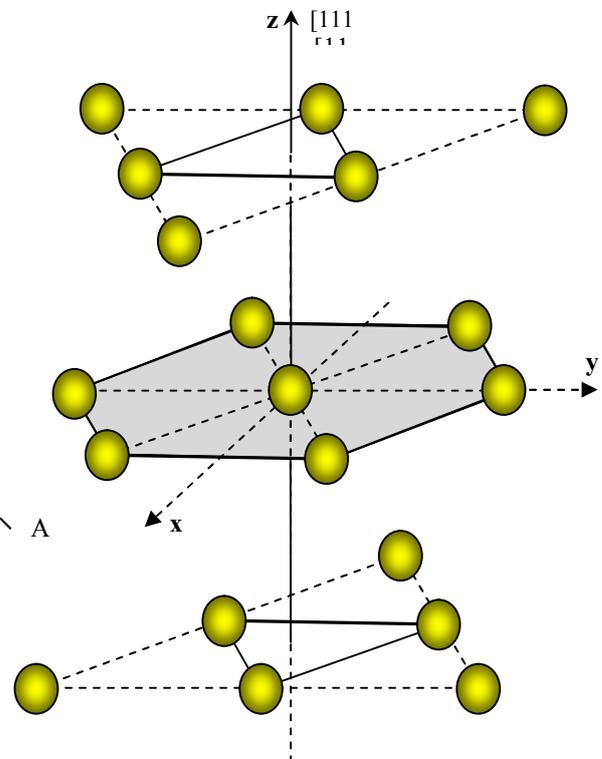


Figure. IV. 5. Premiers et seconds voisins d'un atome en volume suivant la direction [111].

IV. 3. Dynamique vibrationnelle d'un guide d'ondes parfait

La région d'étude en volume suivant la direction [111] est représentée sur la fig. IV. 5. Un atome de cuivre en volume est entouré par 12 premiers voisins situés à une distance $a/\sqrt{2}$, et 6 seconds voisins à une distance a .

L'écriture des équations du mouvement pour un atome dans la région de volume permet de déterminer la dynamique vibrationnelle en volume du substrat de platine loin de la région de surface. Pour cela, on a pris en considération les premiers et les seconds voisins dans le cadre de l'approximation harmonique associée au modèle des forces centrales. Chaque atome en volume, son équation du mouvement est la suivante :

$$\begin{aligned}
& [\Omega^2 - (4 + 2.r) + 3 \cos \varphi_y \cos 3\varphi_x + (1/6) \cos \varphi_y (Ze^{i\varphi_x} + Z^{-1}e^{-i\varphi_x}) + (2r/3)(Ze^{i4\varphi_x} \\
& + Z^{-1}e^{-i4\varphi_x}) + (1/3)(1 + r \cos 2\varphi_y) Ze^{-i2\varphi_x} + Z^{-1}e^{i2\varphi_x}]u_x(A) \\
& + [(\sqrt{3}/6) i \sin \varphi_y (Ze^{i\varphi_x} - Z^{-1}e^{-i\varphi_x}) - \sqrt{3} \sin \varphi_y \sin 3\varphi_x \\
& - (\sqrt{3}/3)ri \sin 2\varphi_y (Ze^{-i2\varphi_x} - Z^{-1}e^{i2\varphi_x})]u_y(A) + [(\sqrt{2}/3) \cos \varphi_y (\zeta e^{i\varphi_x} \\
& + Z^{-1}e^{-i\varphi_x}) - (\sqrt{2}/3)(1 + r \cos 2\varphi_y) (Ze^{-i2\varphi_x} + Z^{-1}e^{i2\varphi_x}) \\
& + (\sqrt{2}r/3) (Ze^{i4\varphi_x} + Z^{-1}e^{-i4\varphi_x})]u_z(A) \\
& [(\sqrt{3}/6) i \sin \varphi_y (Ze^{i\varphi_x} - Z^{-1}e^{-i\varphi_x}) - \sqrt{3} \sin \varphi_y \sin 3\varphi_x - (\sqrt{3}/3)ri \sin 2\varphi_y (Ze^{-i2\varphi_x} \\
& - Z^{-1}e^{i2\varphi_x})]u_x(A) + [\Omega^2 - (4 + 2.r) + \cos \varphi_y \cos 3\varphi_x \\
& + 2\cos 2\varphi_y + (1/2) \cos \varphi_y (Ze^{i\varphi_x} + Z^{-1}e^{-i\varphi_x}) + r \cos 2\varphi_y (Ze^{i2\varphi_x} \\
& + Z^{-1}e^{-i2\varphi_x})]u_y(A) + [(\sqrt{6}/3) i \sin \varphi_y (Ze^{i\varphi_x} - Z^{-1}e^{-i\varphi_x}) \\
& + (\sqrt{6}/3)ri \sin 2\varphi_y (Ze^{-i2\varphi_x} - Z^{-1}e^{i2\varphi_x})]u_z(A) \\
& [(\sqrt{2}/3) \cos \varphi_y (Ze^{i\varphi_x} + Z^{-1}e^{-i\varphi_x}) - (\sqrt{2}/3)(1 + r \cos 2\varphi_y) (Ze^{-i2\varphi_x} + Z^{-1}e^{i2\varphi_x}) \\
& + (\sqrt{2}r/3)(Ze^{i4\varphi_x} + Z^{-1}e^{-i4\varphi_x})]u_x(A) \\
& + [(\sqrt{6}/3) i \sin \varphi_y (Ze^{i\varphi_x} - Z^{-1}e^{-i\varphi_x}) \\
& + (\sqrt{6}/3) ri \sin 2\varphi_y (Ze^{-i2\varphi_x} - Z^{-1}e^{i2\varphi_x})]u_y(A) + [\Omega^2 - (4 + 2.r) \\
& + (4/3) \cos \varphi_y (Ze^{i\varphi_x} + Z^{-1}e^{-i\varphi_x}) + (r/3)(Ze^{i4\varphi_x} + Z^{-1}e^{-i4\varphi_x}) \\
& + (2/3)(1 + r \cos 2\varphi_y)(Ze^{-i2\varphi_x} + Z^{-1}e^{i2\varphi_x})]u_z(A) \tag{4.1}
\end{aligned}$$

Où $\Omega^2 = \frac{m}{k_1} \omega^2$ est la fréquence normalisée, $r = \frac{k_2}{k_1}$ le rapport des constantes de force premier et second voisins k_1 , k_2 respectivement, et Z le facteur de phase, satisfaisant la condition d'évanescence suivant la direction cartésienne Oz . Les facteurs de phases suivant les

directions ox et oy sont définis par les grandeurs suivantes : $\varphi_x = (\frac{a}{2\sqrt{6}})q_x$ et $\varphi_y = (\frac{a}{2\sqrt{2}})q_y$, q_x et q_y étant les composantes suivant x et y du vecteur d'onde du réseau réciproque.

Les équations du mouvement que nous avons trouvé avant, peuvent se mettre sous une forme matricielle :

$$[\Omega^2 I - D(e^{i\varphi_x}, e^{i\varphi_y}, Z, r)]|u\rangle = 0 \quad (4.2)$$

Où D représente la matrice dynamique en volume, elle est de taille (3×3) , et I c'est une matrice identité de même taille que la matrice D .

La condition mathématique pour que le système matriciel (4.2) ait des solutions non triviales est que le déterminant soit nul, c'est-à-dire :

$$\det[\Omega^2 I - D(e^{\varphi_x}, e^{\varphi_y}, Z, r)] = 0 \quad (4.3)$$

Cette équation peut se mettre sous forme d'une équation caractéristique séculaire de degré 6 en Z , à savoir :

$$A_0 + A_1 Z + A_2 Z^2 + A_3 Z^3 + A_4 Z^4 + A_5 Z^5 + A_6 Z^6 = 0 \quad (4.4)$$

où les coefficients A_n sont des constantes dépendantes de Ω , φ_x , φ_y et r . Par ailleurs, la symétrie de notre modèle en volume permet de déterminer que si Z est une solution pour l'équation (4.4), le facteur de phase Z^{-1} est aussi une autre solution.

Pour satisfaire la condition d'évanescence qui est $Z < 1$, on ne peut prendre que les 3 valeurs acceptables physiquement pour Z parmi les solutions possibles de l'équation (4.4). Le champ d'évanescence est alors déterminé en volume pour le système de surface alliage considéré puisque ces solutions constituent dans l'espace $\{\Omega, \varphi_x, \varphi_y\}$ la base des modes évanescents.

IV. 4. Courbes de dispersion

La relation de dispersion calculé dans le cadre de l'approximation harmonique dans le réseau réciproque du réseau hexagonal suivant les directions de hautes symétries de la première zone de Brillouin ΓM , ΓK et KM , avec :

$$\Gamma = (0,0,0), \quad K = \left(0, \frac{2\pi}{\sqrt{3}a}, 0\right) \quad \text{et} \quad M = \left(\frac{2\pi}{3a}, \frac{2\pi}{\sqrt{3}a}, 0\right)$$

Les résultats trouvés sont illustrés sur la figure (IV. 6).

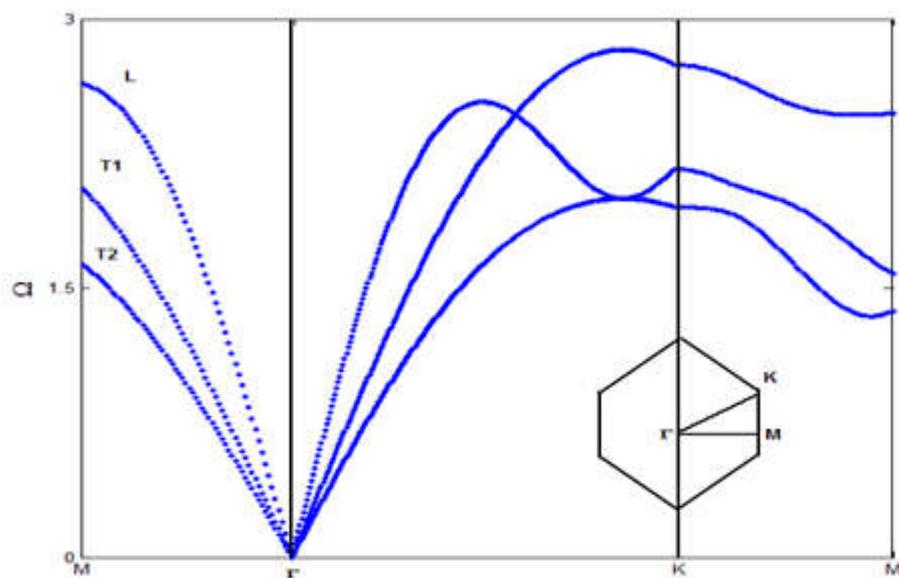


Figure. IV. 6. Courbes de dispersion d'une structure fcc [111] parfaite dans les directions de haute symétrie.

La courbe de dispersion est représentée sur la figure (IV.6). Cette dernière représente les modes de phonons de la structure cubique à faces centrées suivant la direction [111], en fonction des vecteurs d'onde pris le long des directions de haute symétrie dans la première zone de Brillouin. Dans la première direction Γ -M, nous remarquons que la courbe de dispersion contient trois types de branches : deux branches transversales (notées T1 et T2) pour lesquelles les vibrations se propagent perpendiculairement au mouvement des atomes, et une autre branche longitudinale (notée L) pour laquelle la direction de propagation de la vibration et le déplacement des atomes sont colinéaires. Le même comportement est bien observé dans la direction Γ -K. Tandis que le long de la direction K-M, nous remarquons l'existence de trois modes transversaux et longitudinaux. L'ensemble des vibrations est décrit pour des vecteurs d'ondes de la première zone de Brillouin, par conséquent, nous obtenons deux modes propres par branche. L'analyse de l'évolution des courbes de dispersion permet de relever l'intervalle de propagation des modes (transversaux et longitudinaux) dans chaque direction de haute symétrie, comme nous l'avons résumé dans le tableau (IV.1) ci-dessous.

	Mode transversal 1	Mode transversal 2	Mode longitudinale
Γ -M	$\Omega \in [0, 1.632]$	$\Omega \in [0, 2.053]$	$\Omega \in [0, 2.63]$
Γ -K	$\Omega \in [0, 1.955]$	$\Omega \in [0, 2.75]$	$\Omega \in [0, 2.15]$
K-M	$\Omega \in [1.955, 1.363]$	$\Omega \in [2.75, 2.47]$	$\Omega \in [2.15, 1.59]$

Tableau IV. 1. Intervalle de propagation des modes dans les directions de haute symétrie.

IV. 5. Calcul des facteurs de phase

Les relations de dispersion calculées n'ont pas la forme convenable pour le problème qui nous intéresse, comme les ondes élastiques localisées au voisinage des défauts. Pour cela, il faut calculer les modes évanescents du système ($|Z| < 1$) en plus des modes propageant définis dans le guide d'onde parfait auparavant. En effet, on doit tenir compte les modes évanescents du système, et non seulement les modes propageants, donc pour chaque fréquence Ω donnée, on doit prendre toutes les solutions $|Z| \leq 1$. Par ailleurs, la solution à notre problème c'est d'utiliser la méthode du déterminant.

Pour compléter la description des relations de dispersion, en tenant compte aussi bien des modes atténués que des modes propageants, il est très important de représenter sur un graphique les facteurs de phase (d'atténuation) Z en fonction de la fréquence normalisée Ω . L'évolution des modes propres de vibrations dans l'espace est donnée par la fig. VI. 7.

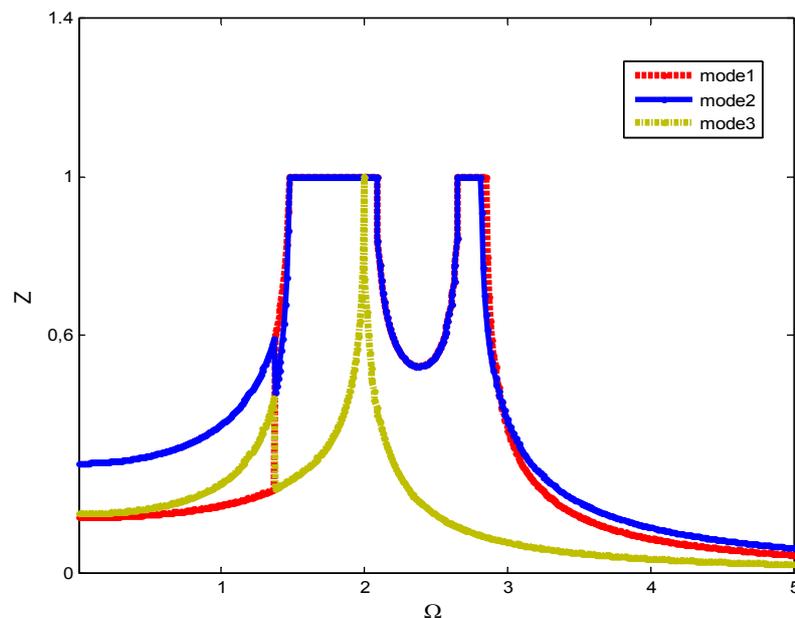


Figure. IV. 7. Evolution des facteurs de phases en fonction de la fréquence normalisée Ω .

IV. 6. Matrice dynamique du système de surface alliage Cu – Pt[111]

Les équations du mouvement gouvernant les déplacements vibrationnels des atomes des différents sites du système, en présence de la surface, sont obtenues à partir de l'équation (1.4).

Dans notre calcul numérique, il faut déterminer les constantes de force qui relient les atomes premiers et deuxièmes voisins entre les atomes dans le système de surface alliage ordonné,

que nous avons déjà définis. Les résultats sont donnés en fonction de la longueur de liaison entre les sites atomiques correspondants. Les résultats obtenues pour les paires atomiques $(Cu-Cu)^1$, $(Cu-Cu)^2$, $(Pt-Pt)^1$, $(Pt-Pt)^2$, $(Cu-Pt)^1$ et $(Cu-Pt)^2$ sont regroupés dans le tableau suivant :

Type de paire	Longueur de liaison (Å)	Constantes de force ($J.m^{-2}$)
$(Cu-Cu)^1$	2.566	27.5
$(Cu-Cu)^2$	3.615	01.4
$(Pt-Pt)^1$	3.28	35.24
$(Pt-Pt)^2$	3.77	1.203
$(Cu-Pt)^1$	2.67	28.64
$(Cu-Pt)^2$	3.77	1.02

Tableau. IV. 2: Distances entre premiers et seconds voisins pour le système alliage cuivre et platine.

La matrice dynamique D du système considéré, de surface alliage Cu-Pt(111), trouve son origine en écrivant les équations du mouvement vibrationnel des atomes (A), (B), (C), (D), et (E), indiqués sur la Fig. IV. 10.

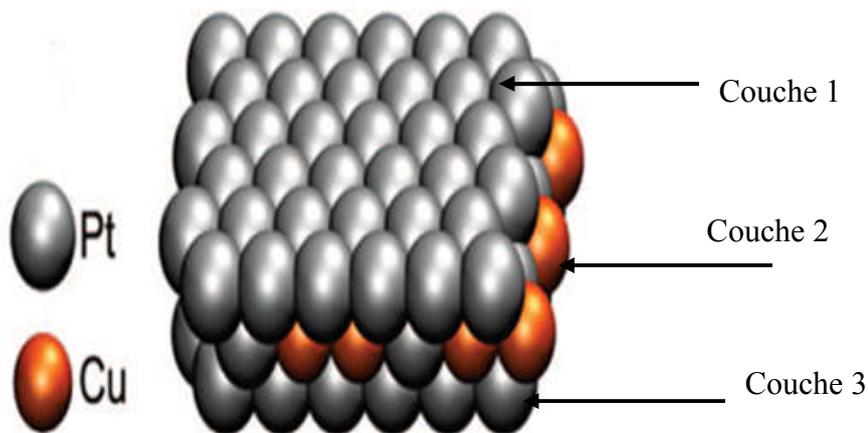


Figure. IV. 8. Représentations d'une surface métallique Cu-Pt(111).

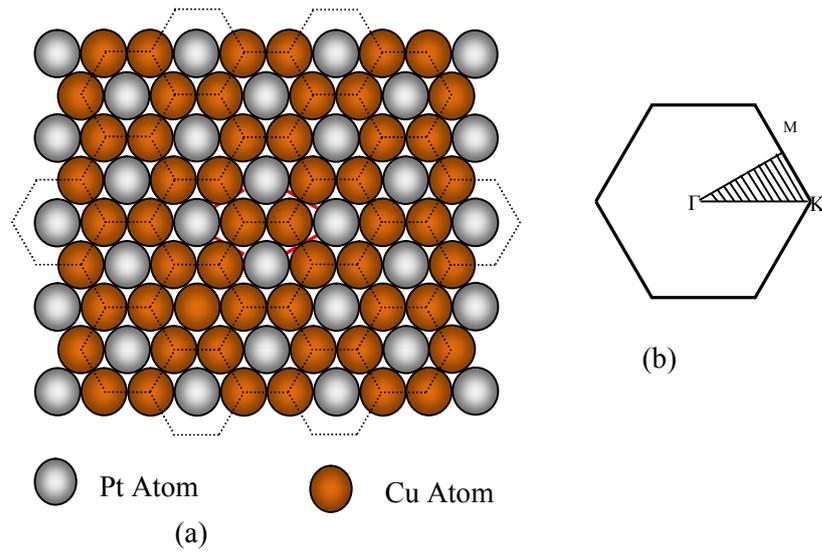


Figure. IV. 9. (a) Représentation schématique de la 2^{ème} couche de la surface alliage Cu-Pt(111), (b) Représentation de la première zone de Brillouin.

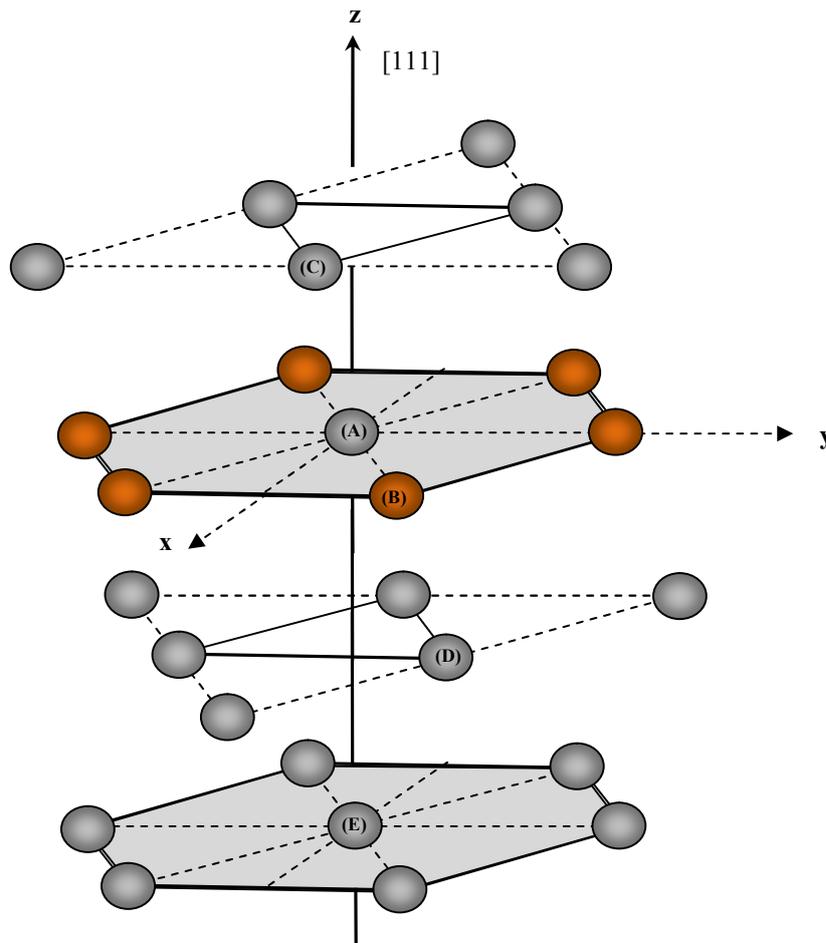


Figure. IV. 10. Représentation schématique de la surface alliage Cu-Pt(111).

L'ensemble des équations du mouvement vibrationnel des atomes définis précédemment constitue un système linéaire homogène. Celui-ci, peut se mettre sous forme d'une matrice rectangulaire D , contenant plus d'inconnus (18 inconnus) que d'équations (15 équations), telle que :

$$[D]|u\rangle = |0\rangle \quad (4. 5)$$

Avec

$$\dim [D] = 12 \times 18$$

$$\dim |u\rangle = 18 \times 1$$

$$\dim |0\rangle = 12 \times 1$$

où $|u\rangle$ est un vecteur colonne décrivant les déplacements vibrationnels de tous les atomes d'une maille élémentaire de la zone considérée.

IV. 7. Matrice de raccordement

Notre but dans cette étude est d'établir les relations de raccordement entre les déplacements vibrationnels des atomes appartenant à la surface alliage et les champs vibrationnels des modes évanescents en volume. Pour cela, nous allons représenter les déplacements atomiques des sites appartenant à la région de raccordement par une combinaison linéaire de vecteur $\{R\}$ définissant un espace fini. La connaissance des facteurs de phase $[Z, 1/Z]$, caractérisant les modes évanescents dus à la présence de la surface et déterminés à partir de l'étude précédente en volume, permet de faire cet état de raccordement.

Pour un atome appartenant à la région de raccordement de notre système de surface alliage, on peut décrire ses déplacements vibrationnels à l'aide de la relation suivante :

$$u_\alpha(n_x, n_y, n_z) = \sum_i^{i=3} Z_i^{n_z} P(\alpha, i) R \quad (4. 6)$$

Ici α représente l'une des trois directions cartésiennes, et $P(\alpha, i)$ sont les poids pondérés associés aux différents modes évanescents. Ils sont déterminés à l'aide des cofacteurs de la matrice dynamique en volume D définie auparavant.

Le vecteur $|u\rangle$ décrivant tous les déplacements vibrationnels de tous les atomes d'une maille élémentaire de la zone considérée, peut être décomposé en deux parties : la première est notée par $|irr\rangle$, elle est constituée par les déplacements atomiques des cinq sites irréductibles

formant la région de la surface c'est-à-dire les atomes (A), (B), (C) et (D). Quand à la seconde notée par $|rac\rangle$, elle est formée par les déplacements associés aux sites raccordés (E), ceci pour la base $|R\rangle$. Ainsi on écrit :

$$|u\rangle = \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |rac\rangle \end{pmatrix} \quad (4.7)$$

Avec

$$\dim|irr\rangle = (12 \times 1)$$

$$\dim|rac\rangle = (6 \times 1)$$

A partir de là, le raccordement des atomes peut être décrit à l'aide des expressions suivantes :

$$|u\rangle = \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |rac\rangle \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} I_d & 0 \\ 0 & R_1 \\ 0 & R_2 \end{bmatrix} \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R\rangle \end{pmatrix} \quad (4.8)$$

où I_d est une matrice identité de dimension (12×12) ; et R_1 , et R_2 sont des matrices carrées de dimension (3×3) .

En mettant $D_r = \begin{bmatrix} I_d & 0 \\ 0 & R_1 \\ 0 & R_2 \end{bmatrix}$, le système d'équation (4.8) peut s'exprimer à l'aide de cette matrice comme suit :

$$|u\rangle = \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |rac\rangle \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} I_d & 0 \\ 0 & R_1 \\ 0 & R_2 \end{bmatrix} \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R\rangle \end{pmatrix} = D_r \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R\rangle \end{pmatrix} \quad (4.9)$$

La matrice D_r de dimension (18×12) est appelée matrice de raccordement.

En utilisant cette relation, on peut réécrire le système d'équations (4.5) comme suit :

$$[D(12 \times 18)] \cdot [D_r(18 \times 12)] \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R\rangle \end{pmatrix} = |0\rangle \quad (4.10)$$

Soit encore

$$[D_s(12 \times 12)] \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R\rangle \end{pmatrix} = |0\rangle \quad (4.11)$$

avec D_s définit comme étant le produit matriciel des deux matrices D et D_r .

Ceci, pour des valeurs des rapports des constantes de forces, les modes propres de phonons de surface localisés au voisinage de la surface alliage métallique ordonnée Cu-Pt(111) sont déterminés à l'aide de la relation de compatibilité suivante :

$$\det[D_s(12 \times 12)] = 0 \quad (4.12)$$

IV. 8. Les états localisés

IV. 8. 1. Les états localisés au niveau d'une interface propre en platine Pt(111)

Les propriétés vibrationnelles de notre système surface alliage métallique Cu-Pt(111) sont présentées dans cette partie. Nous avons calculé les phonons localisés de la surface propre Pt(111), qu'on va utiliser comme système de référence dans le but de connaître l'influence des atomes de cuivre sur cette surface. Les phonons de surface calculés sont mentionnés par des lignes noires pour la surface propre Pt(111) et la surface alliage sont calculés, en général, suivant les directions de haute symétrie $\overline{\Gamma M}$, \overline{MK} , et $\overline{K\Gamma}$ comme montré les figures. IV. 11 et IV. 12.

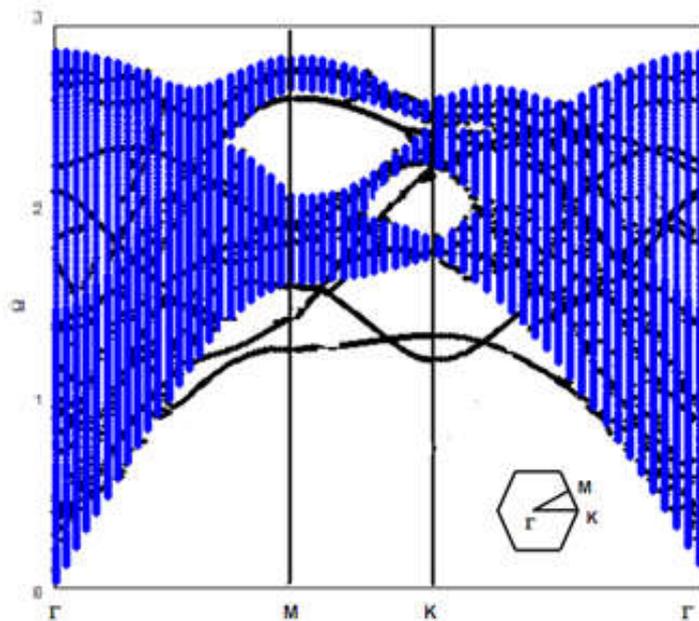


Figure. IV. 11. Les courbes de dispersion des phonons de surface calculées pour la surface propre Pt(111) avec la bande des phonons en volume. Les états de surface sont indiqués par les lignes continues.

Les résultats trouvés pour la surface propre Pt(111) sont représentés sur la figure IV. 11. Nos calculs détaillent la présence de trois branches de phonons localisées situées sous la bande de phonons en volume. La plus basse d'entre elles est appelée branche de Rayleigh. Aux plus grandes longueurs d'ondes (c'est-à-dire au voisinage du point Γ) ce mode correspond

essentiellement aux déformations vibrationnelles verticales de la surface. Nos résultats montrent une branche de résonance dans l'intervalle \overline{MK} , près de la limite inférieure de la bande de volume, qui devient après une branche de phonon de surface dans le dernier intervalle. Nos résultats numériques montrent une résonance dans l'intervalle $\overline{K\Gamma}$. Nos résultats montrent, aussi, l'existence de deux branches de phonon à des énergies plus élevées.

IV. 8. 2. Les états localisés au niveau d'une interface Alliage Cu- Pt(111)

Sur la figure IV 12, les résultats correspondent aux phonons de surface de la surface alliage ordonnée Cu-Pt(111). La branche de Rayleigh pour la surface Pt(111) est maintenue est modifiée seulement très légèrement pour la surface alliage. Cependant, trois nouvelles branches apparaissent au-dessous de la bande de volume le long des directions de haute symétrie $\overline{\Gamma M}$, \overline{MK} et $\overline{K\Gamma}$. Les branches de phonons dans les deux gaps d'énergie sont fortement modifiées par la présence des atomes de Cuivre dans la couche intérieure de la surface alliage. Etant donné que la masse atomique effective et les constantes élastiques diminuent et augmentent, respectivement, dans une représentation de champ moyen, pour la couche extérieure, il est susceptible que les branches de phonons de la surface Pt(111) soient poussées vers les hautes énergies dans la surface alliage ordonnée ; pour être remplacées par des résonances dans les gaps d'énergie supérieures.

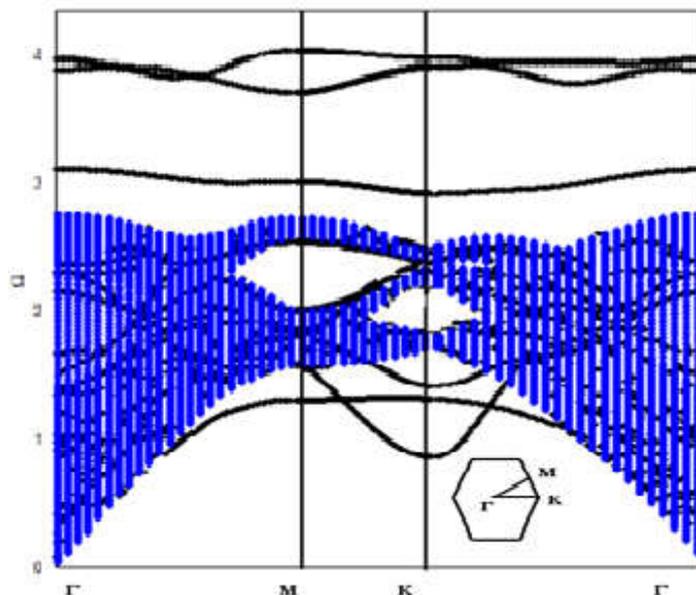


Figure. IV. 12. Les courbes de dispersion des phonons de surface calculées pour la surface alliage Cu-Pt(111) avec la bande des phonons en volume. Les états de surface sont indiqués par les lignes continues.

En outre, dans les branches de phonons de surface de la surface alliage en comparaison à celles de la surface propre Pt(111), est l'apparition de nouvelles branches de phonons optiques. En effet, le système de surface alliage exhibe trois telles branches de phonons de surface. L'une d'entre elles apparaît juste à la limite supérieure de la bande des phonons en volume, quand aux deux autres elles sont localisées plus haut au-dessus de cette bande. C'est clair que ces nouvelles branches de phonons de surface sont induites par la présence des atomes de Cuivre entourés par six plus proches voisins d'atomes de cuivre dans la couche atomique intérieure.

IV.9. Densité d'état vibrationnelle

Les densités d'états vibrationnelles locales de notre système sont calculées numériquement par site atomique dans la couche de surface intérieure. Ces densités d'états sont données dans les unités arbitraires, en fonction de la fréquence normalisées Ω dans la première zone de Brillouin. Sur la figure IV. 13 nous représentons les densités d'états vibrationnelles pour un site atomique de platine dans la couche atomique intérieure de la surface propre Pt (111), comme référence pour comparer avec la surface alliage Cu-Pt(111).

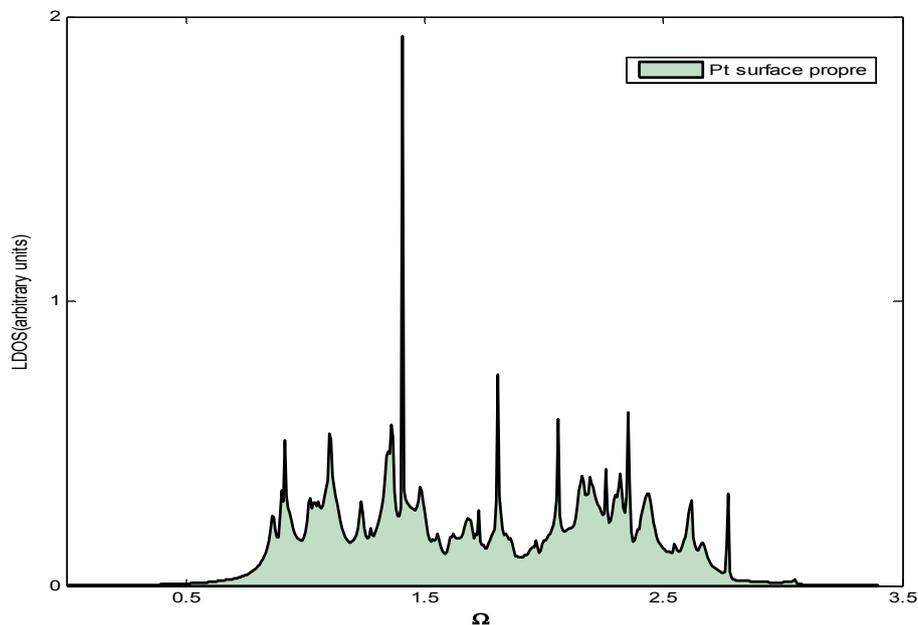


Figure. IV. 13. La densité d'états vibrationnelle locale des sites atomiques de platine de la surface propre Pt(111).

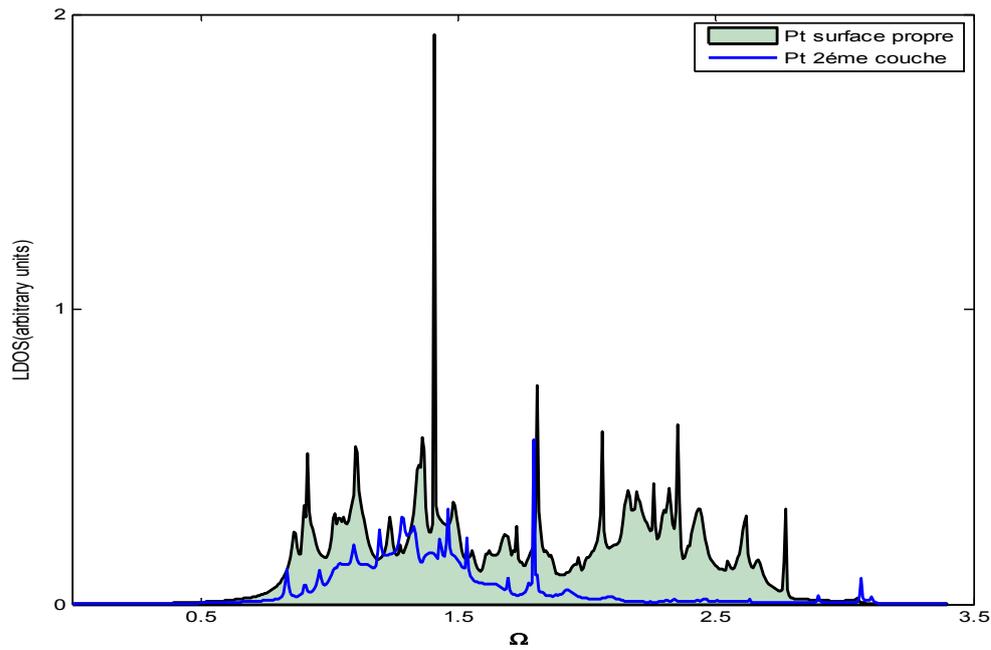


Figure. IV. 14. Les densités d'états vibrationnelles locales des sites atomiques de Pt dans la couche 2 atomique de la surface alliage avec celui de la densité d'états vibrationnelle de la surface propre Pt(111) .

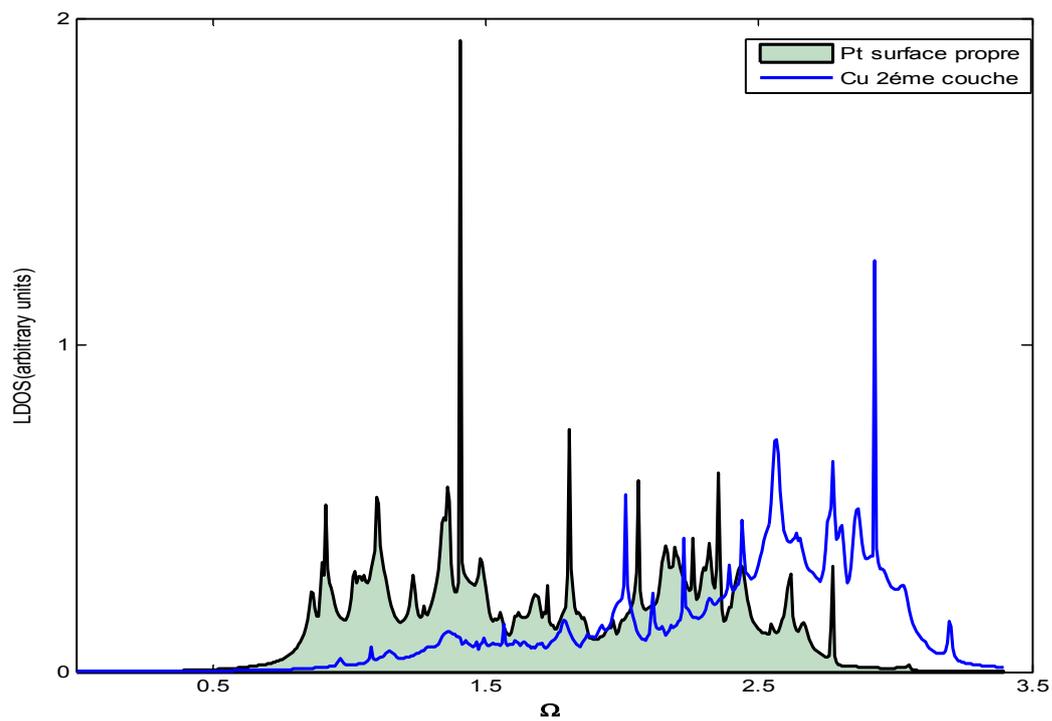


Figure. IV. 15. Les densités d'états vibrationnelles locales des sites atomiques de Cu dans la couche 2 atomique de la surface alliage avec celui de la densité d'états vibrationnelle de la surface propre Pt(111) .

Conclusion

Ce travail reporte une investigation des propriétés vibrationnelles de la surface alliage ordonnée Cu-Pt(111) obtenue par le dépôt d'atomes de Cu sur la surface (111) d'un substrat de platine. La méthode de raccordement employée ici pour les calculs analytiques et numériques de ces propriétés vibrationnelles en surface, s'avère être un outil théorique de base et efficace. Tout d'abord, le résultat le plus remarquable dans nos calculs est l'apparition de nouvelles branches de phonons pour la surface Cu-Pt(111) en comparaison avec la surface propre Pt(111). En effet, le système de surface alliage ordonnée exhibe trois telles branches de phonons de surface. Quant aux résultats des densités d'états, ils montrent une diminution remarquable dans le spectre des densités d'états vibrationnelles des sites atomiques de platine dans la surface alliage, en comparaison à celle du site atomique de platine en deuxième couche dans la surface propre Pt(111). Ces différences sont dues essentiellement à la présence d'atomes de Cuivre dans la surface alliage, ce qui correspond à un transfert net d'activité vibrationnelle à partir des sites atomiques de platine aux sites atomiques de cuivre.

Références du chapitre IV

- [1] A. Ben Hadj Hamouda, Thèse de Doctorat, Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II. France (2007).
- [2] L. Rayleigh, Proc. Lond. Math. Soc. 17, 4 (1887).
- [3] A. E. H. Love, *Some Problems of Geodynamics*, (London, Cambridge University Press, 1911).
- [4] Y. S. Lee, K. Y. Lim, Y. D. Chung, C. N. Whang and Y. Jeon, Surf. Interf. Anal 30, 475 (2000)
- [5] S. Zhou, B. Varughese, B. Eichhorn, G. Jackson and K. McIlwrath, Angewandte Chemie 117, 4615 (2005).
- [6] J. S. Tsay, T. Mungen, K. Wandelt, Thin Solid Films 397, 152 (2001).
- [7] J. A. Rodriguez and M. Kuhn, J. Phys. Chem 98, 11251 (1994).
- [8] H. H. Brongersma and M. J. Sparnaay, Surf. Sci. 71, 657 (1978).
- [9] J. Banhart, P. Weinberger and J. Voitlander, J. Phys.: Condens. Matter 1, 7013 (1989).
- [10] S. Mizukami, Y. Ando and T. Miyazaki, Phys. Rev. B 66, 104413 (2002).

Conclusion et perspectives

La demande du marché dans le domaine des matériaux multifonctionnels est en croissance continue. Face à cette situation, les scientifiques essaient de trouver des matériaux innovants, en combinant différents types de matériaux. La plupart des travaux sont tournés vers l'exploration des interfaces obtenues par l'assemblage de différents films et couches atomiques. Cette voie extrêmement prometteuse s'appuie sur le fait que certaines propriétés des matériaux sont intimement liées à leur structure.

Dans cette thèse, nous avons développé une approche analytique basée sur des simulations numériques permettant le traitement des phénomènes de localisation des ondes vibrationnelles dans les structures cfc suivant les directions de haute symétrie. L'étude est menée en utilisant la méthode dite de raccordement, introduite pour la première fois par Feuchtwang, en 1967, et reprise et appliquée par Szeiftel et Khater, en 1987. Le développement de cette théorie dans l'approximation harmonique, décrivant toutes les interactions des plus proches voisins, permet de décrire le mouvement de vibration des atomes d'un système donné par un nombre fini d'équations et de déterminer les modes vibrationnels localisés au voisinage des surfaces, interfaces et autres inhomogénéités à partir des valeurs et des vecteurs propres de la matrices dynamique. Elle permet aussi de représenter les densités d'états phononiques locales associées.

Nous avons examiné les propriétés dynamiques de deux types d'interfaces dans des structures cfc suivant deux directions, [100] et [110]; la première est de type A/B, et la deuxième est de type A/B/A. A partir de la matrice dynamique des systèmes perturbés, nous avons tracé les états localisés au niveau des interfaces pour trois cas différents des masses atomiques : $m_2 < m_1$, $m_2 = m_1$, et $m_2 > m_1$ et dans chaque cas, nous avons considéré trois possibilités de l'environnement élastiques, à savoir : l'adoucissement, l'homogénéité et le durcissement des contraintes au niveau de zones d'interfaces. Nous avons aussi déterminé les densités d'états vibrationnelles associées aux sites appartenant à la zone inhomogène. Par ailleurs, nous avons réalisé des applications sur des cas réels, nous citons : Cu/Pt, Au/Pd et Cu/Pd, après avoir calculé les constantes élastiques qui relient les différents atomes dans chaque structure. Notre

étude a montré que l'inhomogénéité dans une structure cristalline influe considérablement sur les propriétés vibrationnelles des systèmes. En effet, le défaut atomique crée toujours de nouveaux états localisés dans son voisinage. Notons aussi que le nombre de branches qui apparaissent et les spectres des densités d'états vibrationnelles dépendent fortement des masses des atomes composant l'alliage et des constantes élastiques qui relient les différents sites. Les interfaces atomiques conduisent à l'apparition de plusieurs types de résonances. Ces dernières sont dues à l'interaction entre les modes propageants du volume avec les états localisés au voisinage du défaut et d'autres sont issues de l'interaction entre le continuum et les réflexions multiples.

Les résultats les plus remarquables dans nos calculs est l'apparition de nouvelles branches de phonons pour la surface Cu-Pt(111) en comparaison avec la surface propre Pt(111). Quant aux résultats des densités d'états, ils montrent une diminution remarquable dans le spectre des densités d'états vibrationnelles des sites atomiques de Pt dans la surface alliage, en comparaison avec celle du site atomique de Pt en première couche dans la surface propre Pt(111). Ces différences sont dues essentiellement à la présence d'atomes de Cu dans la surface alliage, ce qui correspond à un transfert net d'activité vibrationnelle à partir des sites atomiques de Pt aux sites atomiques de Cu.

La présence d'interfaces dans une structure peut jouer le rôle d'un filtre sélectif pour certaines ondes, ils permettent ainsi d'apporter une réponse complète sur l'impact de la morphologie de l'interface sur les propriétés vibrationnelles des atomes dans le système. La maîtrise parfaite des propriétés des systèmes en présence d'interfaces et de surfaces va contribuer à la fabrication et la production de matériaux de caractéristiques améliorées, multi fonctionnels moins coûteux, plus légers et plus fiables par la réalisation de revêtements atomiques.

Perspectives

Comme perspectives, nous proposons :

- Appliquer la méthode de raccordement à des interfaces alliages.
- Etudier les propriétés vibrationnelles d'un autre type d'interface qui est la structure hexagonale compact.
- Calculer la diffusion phononique, le transport thermique pour ces modèles.
- Explorer les interfaces dans le but de chercher de bons matériaux isolants pour les ondes sonores (réduction de bruit).
- Prendre en considération d'autres interactions, telle que l'interaction entre les électrons et les phonons.

Résumé

Le travail réalisé dans le cadre de cette thèse constitue une contribution à une meilleure compréhension des propriétés vibrationnelles des interfaces et surfaces métalliques de structure cfc suivant les directions de haute symétrie.

Nous nous intéressons, en particulier, à la dynamique des réseaux et les propriétés vibrationnelles des structures cfc en présence de défauts structuraux et défauts implantés. L'utilisation de ces nanojonctions métalliques dans les applications industrielles est subordonnée à la maîtrise des propriétés dynamiques des surfaces en contacts. Afin de comprendre le transport électronique et énergétique dans ces structures, il est très important de connaître les processus de dispersion et de diffusion des modes vibrationnels aux interfaces et surfaces alliages. Nos résultats montrent que le comportement des phonons aux interfaces est modifié comparativement au volume. Les défauts créent de nouveaux états de phonons, localisés au niveau de la zone perturbée. Ces derniers sont une signature caractéristique de chaque configuration cristalline et de chaque type de défaut.

Mots- clés : Interfaces et surfaces métalliques – Etats localisés et VDOS
Dynamiques des nanostructures

Abstract

The work, presented in this thesis, constitutes a contribution to a better understanding of the vibration properties of the interfaces and the metallic surfaces of fcc materials, in the high symmetry directions.

In particular, we are interested to dynamic networks and the vibrational properties of the fcc structures, in the presence of the structural and implanted defects. The use of the metallic nanojunction, in industrial applications is subordinated to the mastery of the dynamic properties of surfaces, which are on contacts. In order to understand the electronic and energy transport in these structures, it is very important to know the process of dispersion and diffusion of the vibration modes at the interfaces and surfaces alloys. Our results show that the behavior of the phonons at the interfaces is modified compared to those of the bulk. The defects create new phonons localized vibration states, at the perturbed domain. The latter are a characteristic signature of each crystalline configuration and of each defect types.

Keywords: Metallic interfaces and surfaces – Localized vibration States and VDOS
Nanostructure dynamics