

UNIVERSITE MOULOUD MAMMERI DE TIZI-OUZOU
FACULTE DES SCIENCES
LABORATOIRE DE PHYSIQUE ET CHIMIE QUANTIQUE

Rapport de Stage

MASTER DE PHYSIQUE

Présenté par

Monsieur CHIKH Anis

sur le sujet intitulé :

**« Spectres de vibration au voisinage d'une interface reliant
deux métaux nobles »**

Travail soutenu, le 11 juillet 2016 devant le jury suivant :

LAMROUS Omar Président

BOURAHILA Boualem Rapporteur

NAFA Ouahiba Examinatrice

Année universitaire : 2015 / 2016

REMERCIEMENT

Le travail de ce mémoire a été réalisé au laboratoire de physique et chimie quantique (LPCQ) de l'Université Mouloud MAMMERI de Tizi-Ouzou, sous la direction du Professeur B. BOURAHLA. Je suis heureux de lui témoigner ici ma reconnaissance pour l'efficacité et la bienveillance avec lesquelles il m'a constamment guidé et encouragé au cours de la période de recherche que j'ai passé au sein du groupe « Excitations magnétiques et vibrationnelles des systèmes de basse dimensionnalité ». Il a toujours su m'orienter et me proposer les choix scientifiques les plus adaptés à la résolution des problèmes que j'ai rencontrés.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude au professeur HAMID BOUZAR directeur du laboratoire de physique et chimie quantique (LPCQ) de l'université Mouloud MAMMERI de Tizi-Ouzou pour m'avoir accueilli et de m'avoir permis de travailler dans de bonnes conditions.

Je tiens également à remercier Monsieur LAMROUS Omar Professeur à l'UMMTO, d'avoir accepté de présider le jury de soutenance, ainsi qu'au Docteur NAFA Ouahiba, qui m'a fait l'honneur de juger mon travail, en qualité d'examineur.

Mes remerciements vont aux chercheurs de LPCQ (directeur et membres), aux thésards en général et, en particulier ceux de l'équipe n°4 pour nos discussions enrichissantes, leurs suggestions, conseils, et surtout pour l'ambiance amicale.

Mes plus grands remerciements vont naturellement aussi à ma famille, mon père, mon frère et son épouse et ma sœur et sont marie, mes neveux et à ma grande famille, ainsi que mes amis qui se reconnaîtront, qui m'ont toujours soutenu et encouragé en toutes circonstance, et une pensée spéciale revient à ma mère qui sans elle tout cela ne serait pas, qu'elle se repose en paix.

Sommaire

Introduction générale..... - 1 -

Chapitre I

Théorie de la dynamique des réseaux cristallins - 4 -

1. Notions cristallographique - 4 -

1.1. Réseau cristallin - 4 -

1.2. Les défauts dans les cristaux - 4 -

2. Dynamique de vibration - 5 -

2.1. Définition des vibrations cristallines..... - 5 -

2.2. Construction de l'Hamiltonien et approximations - 6 -

2.2.1. Approximation Born-Oppenheimer - 7 -

2.2.2. Approximation harmonique - 8 -

2.3. Dynamique des atomes d'un système parfait..... - 8 -

2.3.1. Méthode classique - 9 -

2.3.2. Zone de Brillouin..... - 10 -

2.4. Dynamique des atomes d'un système perturbé - 10 -

2.4.1. Méthodes théoriques..... - 10 -

2.4.2. Principe de la méthode de raccordement..... - 11 -

2.4.3. Etat localisé de phonon..... - 12 -

2.4.4. Etude de diffusion - 13 -

2.4.5. Coefficients de transmission et de réflexion - 13 -

Chapitre II

Propriétés vibrationnelles des interfaces atomiques reliant métaux nobles de structures cfc... - 14 -

Introduction - 14 -

1. Etude de la dynamique du système parfait..... - 14 -

1.1. Structure cfc parfaite - 14 -

1.2.	Détermination des modes propageants	- 15 -
1.2.1.	Equations de mouvement	- 15 -
1.2.2.	Courbes de dispersion	- 16 -
1.2.3.	Vitesses de groupe.....	- 17 -
1.2.4.	Discussion des résultats.....	- 18 -
2.	Etude de la diffusion via une interface.....	- 19 -
2.1.	Les modes évanescents.....	- 20 -
2.2.	Matrice dynamique.....	- 20 -
2.3.	Matrice de raccordement.....	- 21 -
2.4.	Application : Interface reliant deux métaux nobles.....	- 22 -
2.5.	Spectres de transmission et de réflexion	- 23 -
i)	- Interface Ag/Cu.....	- 23 -
ii)	- Interface Cu/Ag.....	- 24 -
iii)	- Interface Cu/Au.....	- 24 -
iv)	- Interface Au/Cu.....	- 25 -
v)	- Interface Ag/Au.....	- 25 -
vi)	- Interface Au/Ag.....	- 26 -
2.6.	Discussion des résultats obtenus	- 26 -
	Références	- 30 -

Introduction générale

De l'échelle de l'univers à l'échelle atomique, les ondes constituent un moyen incontournable pour accéder à la connaissance et à l'exploration du monde qui nous entoure. L'étude de la propagation de celles-ci intéresse différents domaines, tels que la géologie, le génie civil, la télécommunication, le stockage de l'information, ...

L'avènement de la science des matériaux a joué un rôle prépondérant dans le développement et l'intégration des ondes dans les applications technologiques. Ainsi les ondes de pression se propageant dans l'air donnent naissance au son dans le domaine de l'acoustique, une onde électromagnétique dans le vide génère la lumière dans le domaine de la photonique ou l'optique, les tremblements de terre sont les conséquences directes de la propagation des ondes mécaniques, et les ondes de déformation des solides sont les résultats de la dynamique des réseaux atomiques.

Les propriétés physiques des matériaux dépendent du comportement des électrons (e^-) et des noyaux qui les composent. Dans le cadre de l'approximation Born-Oppenheimer, il est possible de découpler le mouvement des noyaux de ceux des électrons, donc les propriétés peuvent être découplées avec une bonne approximation [1], d'une part, celles liées aux électrons et d'autre part celles liées aux mouvements des noyaux autour de leurs positions d'équilibre. Dans ce travail, nous nous intéressons à la dynamique des atomes des cristaux. Nous déterminons la façon dont les sites vibrent et nous identifions les modes propres de vibration et nous donnons les relations de dispersion liant la fréquence de vibration au vecteur d'onde.

Les vibrations atomiques et leurs interactions avec les électrons qui les constituent sont la base des propriétés de la physique du solide et ses variantes (optique, thermodynamique, ...) elles dépendent des propriétés de bandes et l'arrangement atomique local [2]. Le quantum d'énergie de vibrations séparant deux niveaux d'énergies successifs est appelé "phonon". Ce concept fut introduit par le physicien Albert Einstein en 1905, par analogie au "photon" qui désigne le quantum d'énergie de la lumière. Le phonon peut être assimilé à une particule d'énergie " $\hbar\omega$ " et de vecteur d'onde " $\vec{q}$ ". Il faut dire que le phonon est une particule fictive, il n'a pas d'existence propre, il n'existe que parce que le réseau existe et que les atomes vibrent. Il se comporte à l'intérieur du cristal comme une vraie particule et on le traite comme tel.

Comme toutes les particules, les phonons interagissent avec les autres particules présentent dans leur voisinage. En effet, c'est par l'intermédiaire des phonons que les électrons libres du cristal échangent de l'énergie avec le réseau d'atomes [3].

Depuis, de nombreux chercheurs apportèrent leurs contributions dans ce domaine. Les premières études ont vu le jour avec Lord Rayleigh qui a discuté l'existence d'ondes localisées de

phonon, pouvant se propager dans les directions parallèles à la surface. Une grande avancée fut réalisée grâce à l'avènement de la théorie classique de la dynamique des réseaux formulée pour la première fois par M. Born et T. Von Karman en 1912, en utilisant les conditions aux limites périodiques dans les systèmes infinis. Par la suite, W. Ledermann a étudié la dynamique des systèmes semi-infinis [4]. Depuis, d'autres travaux ont pu montrer que les interfaces peuvent jouer un rôle prépondérant dans les propriétés physiques et dynamiques des solides, notamment : la propagation d'ondes élastiques [5], diffusion et le transport de chaleur [6].

La simulation numérique des phénomènes physiques de son côté, a conduit à une révolution scientifique permettant d'étudier le fonctionnement et les propriétés des systèmes, et de prédire leurs évolutions. Mais, la problématique principale réside dans le choix des modèles physiques et dans la conception de méthodes numériques efficaces [7]. L'étude théorique présentée est basée sur des simulations numériques, utilisant le formalisme développé par Landauer-Büttiker. Le travail est mené à l'aide de la méthode de raccordement qui permettra de prendre en considération le problème de la brisure de symétrie causée par les surfaces [8]. Nous utilisons l'approche basée sur la dynamique vibrationnelle classique de Newton, dans l'approximation harmonique et cela pour aboutir aux spectres de transmissions et réflexions phononique qui nous permettront de bien comprendre le comportement de ses phonons à l'approche d'une interface.

Dans le domaine de la physique du solide ou généralement les sciences des matériaux, l'or, l'argent et le cuivre sont regroupés dans une même famille appelée métaux nobles, ils cristallisent dans une structure cubique face centrée ou bien « cfc » et la conserve à basse température et leurs intérêts dans la technologie et d'autant plus grand qu'ils sont suffisamment abondant dans la nature et que leurs propriétés électroniques sont bien connues, donc idéales pour l'industrie [9].

Notre contribution dans ce domaine porte sur l'étude de l'influence des interfaces dans les métaux nobles sur la propagation des ondes élastiques.

L'étude théorique présentée est basée sur des simulations numériques, utilisant le formalisme développé par Landauer-Büttiker. Le travail est mené à l'aide de la méthode de raccordement qui prendra en considération le problème de la brisure de symétrie causée par les surfaces [8]. Notre approche est basée sur la dynamique vibrationnelle classique de Newton. Cette dernière est un outil qui permet d'aboutir aux spectres de transmissions et réflexions phononique, ce qui permettra de bien comprendre le comportement de ses phonons à l'approche d'une interface.

Ce travail est constitué de deux chapitres :

Le premier est un rappel de quelques notions nécessaires à la compréhension de ce travail. Nous avons exposé, aussi, le principe de la méthode utilisée pour l'étude des phonons en présence des interfaces métalliques.

Le second chapitre constitue une application directe de la théorie précédente à l'étude de la dynamique des réseaux en présence d'interfaces reliant deux métaux nobles.

Chapitre I

Théorie de la dynamique des réseaux cristallins

1. Notions cristallographique

Les notions de base concernant les phonons et les propriétés dynamiques des structures à maillage cubique sont essentielles à la compréhension des travaux menés dans le cadre de ce mémoire.

L'objectif est de rappeler les propriétés découlant de la dynamique des réseaux et d'énoncer les principales théories utilisées pour étudier le mouvement des atomes dans de telles structures.

En premier lieu, un rappel des principales notions de cristallographie est incontournable en raison des grandes simplifications du traitement des systèmes contenant un grand nombre d'atomes, due à la périodicité [1]. En plus, les matériaux technologiques à base de métaux nobles sont fabriqués sous forme cristalline avec un grand degré d'ordre et une pureté remarquable [10].

1.1. Réseau cristallin

On s'intéresse essentiellement à la structure cfc qui est généralement la structure dans laquelle se cristallisent la majorité des métaux et plus précisément les métaux nobles et qui la conserve même à très basse température. C'est une structure avec une maille élémentaire rhomboédrique et une maille conventionnelle de multiplicité égale à 4, ayant 8 nœuds au sommet et 6 nœuds situés au centre des faces. A grande échelle chaque nœud a 12 premiers voisins et 6 seconds voisins situés à une distance " $\frac{a\sqrt{2}}{2}$ " et " a " respectivement du nœud considéré.

1.2. Les défauts dans les cristaux

Le cristal parfait est un modèle idéal dans lequel les espèces (molécules, ions, atomes) sont empilées de manière régulière et infinie, on sous-entend généralement par défaut toute région où l'arrangement microscopique diffère de manière drastique de celui d'un cristal parfait [2]. Dans la réalité, tout cristal présente des défauts par rapport à ce modèle idéal, le premier étant la surface extérieure de ce cristal. Ce sont ces défauts qui sont à l'origine de certaines propriétés intéressantes de la matière, telles que la déformation plastique, la résistance à la rupture, la conductivité électrique et électronique.

On distingue quatre types de défauts :

- **Les défauts ponctuels** (0 D) : lacunes, atomes interstitiels. Ils concernent un nœud unique et ne perturbent que les quelques sites voisins. Un défaut ponctuel typique est l'absence d'un atome (lacune), la présence d'un atome du réseau entre les atomes (défaut interstitiel), la présence d'un atome étranger entre les atomes du réseau (solution solide interstitielle) ou à la place d'un atome du réseau (solution solide de substitution).

- **Les défauts linéaires** (1 D) : dislocations, ils ne concernent que les nœuds situés sur une ligne et ne perturbent que quelques nœuds voisins. Il existe deux types de dislocations, coin et vis.
- **Les défauts surfaciques ou plans** (2 D) : joints de grains, joints de phases, joints de macle, défauts d'empilement, parois d'antiphase ; ... Ce ne sont pas des défauts internes au cristal mais le résultat de plusieurs monocristaux accolés les uns aux autres pour former des polycristaux.
- **Les défauts volumiques** (3 D) : pores, précipités, macles, inclusions. Ils sont le résultat du remplacement d'une partie du cristal par une autre d'un composé différent [4].

2. Dynamique de vibration

En cristallographie, les positions des atomes sont bien définies. Mais en réalité, la situation est bien plus complexe et les atomes oscillent autour de leurs positions d'équilibre. En effet, le solide renferme plusieurs formes d'énergie issues essentiellement du mouvement rotatoire des molécules, du mouvement oscillatoire des atomes et des déplacements et excitations des électrons [8]. Grâce aux forces interatomiques qui assurent la cohésion du cristal, le mouvement des atomes se transmet de proche en proche, d'où la vibration du réseau cristallin et le transport de l'énergie dans le solide.

A température ambiante, l'amplitude de vibration des atomes est de l'ordre de 5 à 10% de la distance interatomique et des oscillations persistent même à température nulle (vibrations résiduelles) [11]. Ces vibrations ont une grande importance pour l'étude des propriétés électriques des solides et cela en modifiant le potentiel cristallin dans lequel évoluent les électrons, donc il perturbe leurs mouvements. Avec la dynamique du réseau, on peut décrire certaines propriétés d'un solide comme la chaleur spécifique, la dilatation thermique ou la réponse en présence d'une radiation [12,13].

2.1. Définition des vibrations cristallines

Un phonon désigne un quantum d'énergie de vibration dans un solide cristallin : lorsqu'un mode de vibration du cristal de fréquence définie " ν " cède ou gagne de l'énergie, il ne peut le faire que par paquets d'énergie " $h\nu$ ", h étant la constante de Planck. Ce paquet est considéré comme une quasi-particule, à savoir une particule fictive appelée phonon. Le cristal est alors réputé échanger des phonons lorsqu'il perd ou gagne de l'énergie. Le concept permet une analogie avec la lumière qui possède des propriétés similaires : elle se manifeste tantôt comme une onde, tantôt comme un paquet d'énergie, qui correspond à une particule élémentaire appelée photon [14].

Si l'étude des phonons prend une part importante dans la physique de la matière condensée, c'est parce qu'ils jouent un rôle important dans un grand nombre de propriétés physiques des solides dont : la capacité calorifique, ou capacité à stocker la chaleur ; la conductivité thermique, ou capacité à conduire la chaleur ; la conductivité électrique, ou capacité à conduire le courant électrique ; la capacité à propager le son [15].

On décrit les modes de vibration à partir du concept de phonon. Ce sont Born et Von Kerman qui, entreprirent de décrire les vibrations atomiques à partir de deux éléments : la structure cristallographique du matériau et les potentiels ou forces interatomiques. Ils développèrent ce que l'on appelle désormais la théorie de vibrations [16].

2.2. Construction de l'Hamiltonien et approximations

Un système physique dans son état fondamental constitué de N_i noyaux et de N_e électrons en interaction, est décrit par l'équation de Schrödinger stationnaire suivante

$$H_T(\vec{r}, \vec{R})\psi(\vec{r}, \vec{R}) = E_T\psi(\vec{r}, \vec{R}) \quad (1.1)$$

$\psi(\vec{r}, \vec{R})$ est la fonction d'onde propre de l'Hamiltonien H_T associé à la valeur E_T dépendant simultanément de la position de tous les noyaux et de tous les électrons. E_T est la valeur propre associée à la fonction propre $\psi(\vec{r}, \vec{R})$ correspondant à un état stationnaire permis.

L'Hamiltonien du système dans l'approximation non relativiste peut s'écrire comme suit :

$$H_T(\vec{r}, \vec{R}) = T_i(\vec{R}) + U_{ii}(\vec{R}) + T_e(\vec{r}) + U_{ee}(\vec{r}) + U_{ie}(\vec{r}, \vec{R}) \quad (1.2)$$

Où $T_i(\vec{R})$ et $T_e(\vec{r})$ sont, respectivement, les opérateurs énergie cinétiques des noyaux et des électrons. Les opérateurs $U_{ii}(\vec{R})$ et $U_{ee}(\vec{r})$ sont ceux qui décrivent l'énergie potentiel répulsive noyaux-noyaux et électrons-électrons, respectivement. $U_{ie}(\vec{r}, \vec{R})$ est l'opérateur énergie potentiel d'interaction ressentie par les électrons dans le champ positif des noyaux. Les électrons sont de masse m_e et de charge e . Les noyaux sont de masse M_n et de numéro atomique Z_A . $\vec{R}$ désigne la position des noyaux ($\vec{R}_{n,\alpha}$, avec $\alpha = 1, 2, 3$ et $n = 1, \dots, N_i$), $\vec{r}$ réfère à la position des électrons ($\vec{r}_{j,\alpha}$, avec $\alpha = 1, 2, 3$ et $j = 1, \dots, N_e$) de sorte que :

$$T_i(\vec{R}) = - \sum_n \frac{1}{2M_n} \overrightarrow{\nabla_{\vec{R}_n}}^2 \quad (1.3)$$

$$U_{ii}(\vec{R}) = \sum_{n < n'} \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_{An}Z_{An'}}{|\vec{R}_n - \vec{R}_{n'}|} \quad (1.4)$$

$$T_e(\vec{r}) = - \sum_i \frac{1}{2m_e} \overrightarrow{\nabla_{\vec{r}_i}}^2 \quad (1.5)$$

$$U_{ee}(\vec{r}) = \sum_{i < j} \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^2}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} \quad (1.6)$$

$$U_{ie}(\vec{r}, \vec{R}) = - \sum_{i,n} \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_{An}e}{|\vec{r}_i - \vec{R}_n|} \quad (1.7)$$

La complexité du système à plusieurs corps est très importante, et l'équation obtenue ne peut être résolue que moyennant des approximations simplificatrices sur l'Hamiltonien H et la fonction ψ [17].

2.2.1. Approximation Born-Oppenheimer

L'approximation principale qui permet de découpler le mouvement du noyau de celui des électrons, fut celle élaborée conjointement par Born et Oppenheimer en 1927. Elle consiste à prendre en considération la différence de masse entre les noyaux et les électrons ($m_p = 1836m_n$) et du coup supposé les noyaux sont fixent par rapport aux électrons [1]. Pour étudié le mouvement des électrons un traitement quantique s'impose, tandis qu'une étude classique est suffisante pour décrire le mouvement des noyaux démunis de leurs électrons et mettre en évidence la dynamique de vibration des ions autour de leurs positions d'équilibre. Il faut en revanche, faire appel à la mécanique quantique pour en quantifier l'énergie [18]. Ces quantas d'énergie de vibration sont les phonons définis précédemment.

Dans ce contexte, on peut négliger le terme correspondant à l'énergie cinétique des noyaux $T_i(\vec{R})$ dans l'expression de l'Hamiltonien, et il s'écrit alors :

$$H(\vec{r}, \vec{R}) = U_{ii}(\vec{R}) + T_e(\vec{r}) + U_{ee}(\vec{r}) + U_{ie}(\vec{r}, \vec{R}) \quad (1.8)$$

La fonction $\psi(\vec{r}, \vec{R})$ sera aussi séparée en deux parties. La partie électronique et la partie nucléaire.

$$\psi(\vec{r}, \vec{R}) = \varphi(\vec{r}, \vec{R}) \chi(\vec{R}) \quad (1.9)$$

Les positions $\vec{R}$ des noyaux sont considérées comme des paramètres pour la fonction d'onde φ , puisque $H(\vec{r}, \vec{R})$ n'inclut pas d'opérateur différentiel par rapport aux positions atomiques, par conséquent $U_{ii}(\vec{R})$ agit uniquement sur $\chi(\vec{R})$. On obtient :

$$H(\vec{r}, \vec{R}) \varphi(\vec{r}, \vec{R}) = E(\vec{R}) \varphi(\vec{r}, \vec{R}) \quad (1.10)$$

Où E est l'énergie de Born-Oppenheimer. En minimisant cette énergie, elle nous informera sur la position des noyaux correspondant à l'état fondamental.

2.2.2. Approximation harmonique

La détermination des positions d'équilibre revient à minimiser l'énergie E , définie précédemment. Dans l'hypothèse que les déplacements sont faibles par rapport aux distances interatomiques, on peut effectuer un développement de Taylor [1].

$$E(\vec{r}_n^\alpha) = E(\vec{R}_n^\alpha) + \sum_{n\alpha a} \frac{dE}{d\vec{r}_{n\alpha}^a} \vec{U}_{n\alpha}^a + \frac{1}{2} \sum_{n\alpha a} \frac{d^2E}{d\vec{r}_{n\alpha}^a d\vec{r}_{n'\beta}^b} \vec{U}_{n\alpha}^a \vec{U}_{n'\beta}^b + \dots \quad (1.11)$$

Les indices : a et b désignent les différentes mailles du cristal et n et n' les différents atomes de la maille. α et β désignent les trois directions de l'espace (Ox, Oy, Oz).

$E(\vec{R}_n^\alpha)$ est l'énergie du cristal, sans tenir compte des vibrations du réseau (régime statique), elle est sans intérêt pour la description des vibrations atomiques, vue qu'on s'intéresse à la variation autour d'une position d'équilibre donnée.

$$\frac{dE}{d\vec{r}_{n\alpha}^a} \vec{U}_{n\alpha}^a = -\vec{F}_{n\alpha} \quad (1.12)$$

Cette équation est la dérivée de l'énergie par rapport aux déplacements atomiques. Elle représente les forces exercées sur l'ion en question et qui s'annule aux positions d'équilibres.

L'approximation harmonique revient à négliger dans le développement tous les termes d'ordre supérieur à deux, et elle consiste à supposer que la réponse élastique du système autour de sa position d'équilibre, soit une fonction linéaire ou encore que l'énergie soit quadratique vis-à-vis du déplacement relatif des nucléons [19]. On aura dans ce cas :

$$E(\vec{r}_n^\alpha) = \frac{1}{2} \sum_{n\alpha a} \frac{d^2E}{d\vec{r}_{n\alpha}^a d\vec{r}_{n'\beta}^b} \vec{U}_{n\alpha}^a \vec{U}_{n'\beta}^b \quad (1.13)$$

Pour deux atomes différents on pose :

$$\frac{d^2E}{d\vec{r}_{n\alpha}^a d\vec{r}_{n'\beta}^b} = k_{n\alpha, n'\beta}^{a,b} \quad (1.14)$$

Les coefficients $k_{n\alpha, n'\beta}^{a,b}$ définissent les constantes de forces interatomiques.

2.3. Dynamique des atomes d'un système parfait

Le résultat qu'on obtient dans le cadre d'une description classique de la dynamique de vibration, pourra être transposé sans difficulté au cas quantique, et s'accorde parfaitement avec les résultats expérimentaux [20]. C'est la raison pour laquelle on s'attache dans ce qui suit, à décrire classiquement les vibrations du réseau.

2.3.1. Méthode classique

Les forces interatomiques, sont essentiellement la cause de l'arrangement spécifique des atomes du réseau dans le cristal. Elles font office de ressort reliant une paire d'atome dans l'approche classique. Concrètement, sous l'effet d'une excitation quelconque (thermique, électromagnétique, mécanique, ...), les atomes vibrent tout en entraînant une modification du nuage électronique, dû à la force de rappel des atomes voisins qui tentent de le ramener à sa position d'équilibre [21,22]. L'équation régissant le mouvement d'un atome de masse " m_n " positionné sur le site n est donnée par la deuxième loi de Newton :

$$m_n \frac{d^2 \vec{u}(n, t)}{dt^2} = \sum_{n'} \vec{F}_{nn'} \quad (1.15)$$

L'indice n' désigne l'ensemble des sites adjacents au site n .

Nous adopterons dans notre étude, le modèle des forces centrales dans l'approximation harmonique. L'équation (1.15) se mettra sous la forme :

$$m \frac{d^2 \vec{u}_\alpha(n, t)}{dt^2} = - \sum_{n \neq n'} \sum_{\beta} \left(\frac{r_\alpha \cdot r_\beta}{r^2} \right) k(n, n') [\vec{u}_\beta(n, t) - \vec{u}_\beta(n', t)] \quad (1.16)$$

Où $\alpha, \beta = x, y, z$, et $m = m_n$ est la masse de l'atome du site n et $\vec{u}_\alpha(n, t)$ l'amplitude de vibration.

r_α est la composante cartésienne selon la direction α du vecteur $\vec{r}(n, n')$ joignant les positions d'équilibre des atomes n et n' , r est le module du vecteur $\vec{r}(n, n')$ et $k(n, n')$ est la constante de force.

Vu que le réseau est supposé périodique, nous imposons les conditions aux limites périodiques de Bon-Von Kerman [6] et dans ce cas, les solutions sont des ondes planes progressives de la forme :

$$\vec{u}_\alpha(n, t) = \vec{u}_\alpha(n) \times \exp i (\vec{q} \cdot \vec{r}(n, n') - \omega t) \quad (1.17)$$

Où $\vec{u}_\alpha(n)$ est l'amplitude vibrationnelle suivant α et ω sa fréquence de vibration.

En remplaçant l'expression $\vec{u}_\alpha(n, t)$ dans l'équation (1.16), on obtient une équation qui se décompose en un système de $3N$ équations pour N atomes de la maille élémentaire. Elle se met sous la forme matricielle suivante :

$$[\omega^2 I - D(\vec{q})] |u\rangle = 0 \quad (1.18)$$

$D(\vec{q})$ est la matrice dynamique de taille $(3N \times 3N)$, pour chaque vecteur d'onde $\vec{q}$, elle dépend des constantes de force entre les différents atomes, I est la matrice identité de même rang que la matrice D et $|u\rangle$ est le vecteur propre du déplacement.

Pour déterminer les pulsations propres de vibration du système, il faut calculer les valeurs propres de la matrice dynamique. Le système (1.18) admet des solutions non triviales si et seulement si :

$$\det[\omega^2 I - D(\vec{q})] = 0 \quad (1.19)$$

2.3.2. Zone de Brillouin

Le réseau réciproque joue un rôle fondamental dans la plupart des études analytiques des structures périodiques. La maille primitive de Wigner-Seitz du réseau réciproque est appelée première zone de Brillouin, et que seuls les vecteurs d'ondes situés dans cette zone correspondent à des ondes distinctes [11]. La détermination des modes de vibration se limitera donc aux vecteurs d'ondes $\vec{q}$ appartenant à celle-ci. En effet, si l'on considère le rapport des déplacements de deux atomes successifs

$$\frac{\vec{u}_{n+1}}{\vec{u}_n} = \frac{ue^{iq(n+1)a}}{ue^{iqna}} = e^{iqa} \quad (1.20)$$

Considérons à présent un autre vecteur d'onde en dehors de la première zone de Brillouin, tel que

$$\vec{q}' = \vec{q} + \frac{2n\pi}{a} \quad (1.21)$$

Le rapport des déplacements sera égal à :

$$\frac{\vec{u}_{n+1}}{\vec{u}_n} = e^{iq'a} = e^{i(qa+2n\pi)} = e^{iqa} \quad (1.22)$$

On déduit que les vibrations décrites par les vecteurs $\vec{q}$ et $\vec{q}'$ sont identiques [1]. La détermination des modes de vibration se limitera aux vecteurs d'ondes contenus dans la première zone de Brillouin, et seront caractérisés par l'ensemble des solutions " ω_s " avec $s = 1, 2, \dots, 3N$.

2.4. Dynamique des atomes d'un système perturbé

Un système perturbé est un système comportant un défaut, ce qui signifie que la symétrie du réseau est rompue, et que les conditions de Born Von Kerman ne sont plus applicables, autrement dit la brisure de symétrie rend difficile la résolution des équations du mouvement d'où la nécessité de faire appel à une méthode appropriée pour limiter le nombre d'inconnu et remédier au problème rencontré [23,24].

2.4.1. Méthodes théoriques

Plusieurs méthodes de calculs ont été développées afin de remédier aux problèmes liés à l'étude de la dynamique vibrationnelle en présence de défauts. Parmi les méthodes les plus utilisées, on peut citer, Méthode de diagonalisation directe (slab methode), historiquement introduite par Clark en 1965, et sa 1^{ère} application à un système physique est réalisé par Allen et s'est intéressés au mode de surface d'un réseau cfc et les effets induits par une couche absorbée. Le nombre de plans utilisé pour la modélisation doit être grand pour garantir l'existence d'un volume ce qui augmente la dimension de la matrice dynamique qui en résulte et donc augmente le temps de calcul, ce qui constitue l'inconvénient majeur de la méthode. Une autre méthode introduite par G. Green en 1850. Ce fut une méthode très utilisée notamment par Neumann en 1877 pour sa théorie des potentiel Newtonien dans un espace à 2D, puis appliqué par Kerschhoff en 1882 pour l'équation de propagation des ondes dans un espace à trois dimensions et en fin par Helmholtz en acoustique. Cette méthode consiste à annuler les

interactions atomiques situées à gauche et à droite d'un plan bissecteur de deux plans atomiques consécutifs. Elle est considérée comme une perturbation d'un système initialement illimité. Les états vibrationnels du système perturbé sont alors donnés par les pôles d'une fonction mathématique déterminée à l'aide des matrices dynamiques des deux systèmes parfait et perturbé. Une autre méthode introduite par Feuchtwang en 1967 lors d'une étude de l'équilibre de la structure statique d'un réseau cristallin semi-infini à 3D, sous le nom de Méthode de raccordement (Matching Method), puis développée par Khater et Szeftel en 1987 [25]. Elle s'est imposée par la suite comme un outil incontournable dans la résolution des problèmes liés à la propagation d'ondes élastique dans les systèmes perturbés.

2.4.2. Principe de la méthode de raccordement

L'application de cette méthode impose la subdivision du cristal en trois régions distinctes (figure (1.1)).

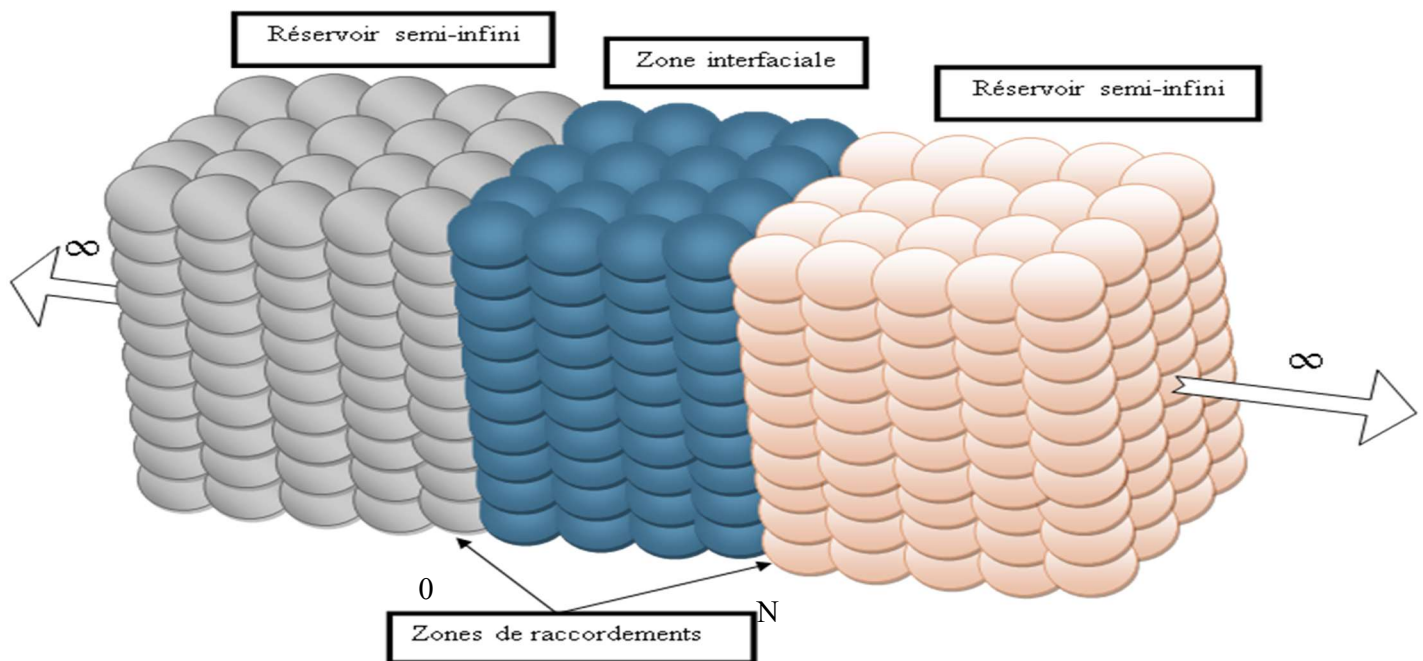


Figure (1.1) : Subdivision d'un cristal selon le concept de la méthode de raccordement.

Les zones semi-infinies sont des zones parfaites loin des effets des perturbations. Les zones de raccordement délimitent la zone qui est la région du défaut. Elles servent à relier les déplacements des atomes de la zone défaut à ceux des régions parfaites.

On considère une onde incidente orienté de gauche à droite et un repère dont l'origine est fixée sur la position du premier plan perturbé.

Pour un mode incident $i < 0$, les déplacements $\vec{u}_{in}^i$ sont tels que :

$$\vec{u}_{in}^i = (Z_{\bar{v}})^i \vec{u}_{\bar{v}} \quad (1.23)$$

L'indice $\bar{v}$ désignera toujours le mode incident. $Z_{\bar{v}}$ est un facteur de phase qui satisfait la condition de propagation ou d'évanescence de l'onde suivant la direction cartésienne α qui relie les vecteurs déplacements des deux atomes adjacents tels que :

$$\vec{u}^{i\pm 1} = (Z_{\bar{v}})^{i\pm 1} \vec{u}^i \text{ avec } Z_{\bar{v}} = e^{iq_\alpha a} = e^{i\varphi_\alpha} \quad (1.24)$$

On écrit les équations du mouvement des atomes de la région perturbée, et celle de la région de raccordement, en utilisant l'expression des déplacements atomiques donnée dans l'équation (1.23) et (1.24). On peut mettre le système d'équations obtenu sous la forme matricielle :

$$[\Omega^2 I - D_d(e^{iq_y a}, e^{iq_z a}, \lambda_i)] |u\rangle = 0 \quad (1.25)$$

Où λ_i est le rapport des constantes de force entre premiers et seconds voisins. $\Omega^2 = \left(\frac{\omega}{\omega_0}\right)^2$ est la fréquence normalisée donnée en fonction de la fréquence caractéristique $\omega_0^2 = \frac{k_1}{m}$, k_1 est la constante de force entre premiers voisins.

D_d est la matrice dynamique du système perturbé, $|u\rangle = \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |rac\rangle \end{pmatrix}$ représente les déplacements de tous les sites appartenant aux régions de raccordement et de défaut. Il peut être décomposé en deux parties : $|irr\rangle$ constituée par les déplacements des sites irréductibles formant la région défaut, et $|rac\rangle$ formée par les déplacements des sites de raccordement.

La condition de compatibilité du système parfait donne accès, pour chaque donnée $(\vec{q}, \Omega)$ à une équation séculaire en Z_1 (composante de Z dans la direction de propagation(ox)) dont les solutions caractérisent les différents modes dans la zone parfaite suivant la direction normale à la zone contenant le défaut [26].

Pour $|Z_1| < 1$, les solutions correspondent aux modes évanescents.

Pour $|Z_1| > 1$, les solutions correspondent aux modes divergents.

Pour $|Z_1| = 1$, les solutions correspondent aux modes propageant.

2.4.3. Etat localisé de phonon

Les états de phonons localisés pourront être déterminés en calculant en premier lieu les modes évanescents dans le domaine (q, Ω) . Il faudra ensuite écrire les équations de mouvement des atomes appartenant aux sites représentatifs des deux régions défaut et raccordement. Le résultat est un système matriciel rectangulaire $D_d(n \times m)$, où le nombre d'équations est plus petit que le nombre de déplacements atomiques ce qui veut dire qu'elle sera rectangulaire. Ce problème se réglera en utilisant la méthode de raccordement.

Matrice de raccordement : elle consiste à exprimer l'ensemble des déplacements atomiques en fonction uniquement des sites irréductibles et des grandeurs de raccordement, on obtient une matrice $D_R(m \times n)$.

Les états vibrationnels localisés dans la zone de défaut sont déterminés en calculant les valeurs propres du produit matriciel suivant :

$$\det([D_d] \times [D_R]) = \det[M_s] = 0 \quad (1.26)$$

2.4.4. Etude de diffusion

Une onde incidente se propage selon un mode " i " ($Z_1 = 1$) se scinde en deux parties en arrivant à la zone de défaut, une partie réfléchiée et une partie transmise. Les déplacements atomiques dans les sous-espaces peuvent être exprimés comme une combinaison de modes propres du guide d'ondes parfait à la même fréquence. Après le défaut, on aura :

$$\vec{u}_T^i = \sum_v T_{\bar{v}v}(Z_v)^i \vec{u}_{\bar{v}v} \text{ pour } i \geq N + 1 \quad (1.27)$$

Dans l'espace avant le défaut :

$$\vec{u}_R^i = \sum_v R_{\bar{v}v}(Z_v)^{-i} \vec{u}_{\bar{v}v} \text{ pour } i \leq -1 \quad (1.28)$$

Où R et T sont des facteurs complexes qui permettent de calculer les coefficients de réflexion et de transmission après normalisation par les vitesses de groupes de l'onde plane de la région parfaite.

2.4.5. Coefficients de transmission et de réflexion

Les équations du mouvement des atomes du système perturbé peuvent être réécrites dans la base vectorielle $|u\rangle$, qu'on peut décomposer comme :

$$|u\rangle = \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |T\rangle \\ |R\rangle \end{pmatrix} \quad (1.29)$$

Les coefficients de transmission $t_{\bar{v}v}$ et de réflexion $r_{\bar{v}v}$ peuvent être déterminés, après normalisation à l'aide de la vitesse de groupe (assurant la conservation de l'énergie) et l'unitarité (partie réfléchiée et transmise). Les coefficients de réflexion et de transmission [27] sont donnés, respectivement, par

$$r_{\bar{v}v} = |\rho_{\bar{v}v}|^2 = \frac{v_v}{v_{\bar{v}}} |R_{\bar{v}v}|^2 \quad (1.30a)$$

$$t_{\bar{v}v} = |\tau_{\bar{v}v}|^2 = \frac{v_v}{v_{\bar{v}}} |T_{\bar{v}v}|^2 \quad (1.30b)$$

Ici v désigne un mode propageant et $\bar{v}$ un mode incident. τ et ρ sont les éléments de la matrice de diffusion.

Chapitre II

Propriétés vibrationnelles des interfaces atomiques des métaux nobles de structures cfc

Introduction

Les performances des matériaux sont dues à la maîtrise de leurs propriétés. Que ce soit dans les matériaux traditionnels (alliages, composites) ou dans les nouveaux matériaux (couches minces, nano- et microstructures), les interfaces sont omniprésentes et fabriquées de façon à optimiser le fonctionnement de ces structures multi-constituées [28,29]. Les interfaces cristallines sont des jonctions atomiques entre deux systèmes permettant des échanges d'informations, et servent à réaliser de nouveaux dispositifs caractérisés par des nouveaux effets physiques différents de ceux du matériau massif, de nombreux chercheurs se sont intéressés à ce sujet que ce soit par des méthodes numériques (Dynamique Moléculaire, calcul ab-initio [3] ...etc.) ou bien expérimentalement [30,31]. Le transfert de phonons à travers une interface entre deux solides est crucial pour le fonctionnement des dispositifs. Dans ce contexte, notre contribution consiste à explorer d'un point de vue vibrationnel les phénomènes de diffusion des ondes élastiques par des interfaces cristallines de métaux nobles (Cu, Ag, Au).

Dans le domaine des petites longueurs d'ondes, et compte tenu de l'aspect atomiques des interfaces, nous pouvons prédire de nouvelles propriétés vibrationnelles, et mesurer les courbes de dispersion associées ce qui permet d'avoir des informations concernant ces structures et les forces interatomiques mises en jeu par les matériaux composant le système.

1. Etude de la dynamique du système parfait

1.1. Structure cfc parfaite

Le système modèle est un réseau infini avec un paramètre de maille a . Les atomes, de masse m , sont situés aux nœuds du réseau et reliés aux atomes adjacents via des forces interatomiques, on note " k_1 " et " k_2 " les interactions entre premiers et seconds voisins, respectivement.

La structure cfc est illustrée sur la figure (2.1)

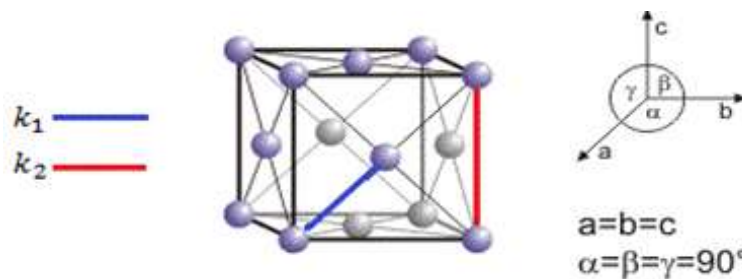


Figure (2.1) : Représentation d'une maille conventionnelle d'un système cfc parfait.

1.2. Détermination des modes propageants

L'étude de la propagation du son dans les milieux continus élastiques est un vieux problème de mécanique. La vitesse de propagation est alors indépendante de la longueur d'onde. Il ne peut pas être de même dans le cristallin, qui cesse de se comporter comme un milieu continu dès que la longueur d'onde devient comparable à la distance inter-atomique [32]. On décrit alors les modes de vibration à partir du concept de phonon.

1.2.1. Equations de mouvement

La projection de l'équation dynamique (1.16), suivant les trois directions de l'espace donnera les équations du mouvement d'un atome (i, j, k) du réseau tridimensionnel. Pour un réseau cfc, on aura en appliquant l'équation (1.24) le système d'équations suivants :

Projection suivant Ox :

$$\left[m\omega^2 - 4k_1 - 2k_2 + \frac{k_1}{2}(z_1 + z_1^{-1})[(z_2 + z_2^{-1}) + (z_3 + z_3^{-1})] + k_2(z_1^2 + z_1^{-2}) \right] u_x(i, j, k) \\ + \frac{k_1}{2}[(z_1 - z_1^{-1})(z_2 - z_2^{-1})]u_y(i, j, k) + \frac{k_1}{2}[(z_1 - z_1^{-1})(z_3 - z_3^{-1})]u_z(i, j, k) = 0$$

Projection suivant Oy :

$$\left[m\omega^2 - 4k_1 - 2k_1 + \frac{k_1}{2}(z_2 + z_2^{-1})[(z_1 + z_1^{-1}) + (z_3 + z_3^{-1})] + k_2(z_2^2 + z_2^{-2}) \right] u_y(i, j, k) \\ + \frac{k_1}{2}[(z_2 - z_2^{-1})(z_1 - z_1^{-1})]u_x(i, j, k) + \frac{k_1}{2}[(z_2 - z_2^{-1})(z_3 - z_3^{-1})]u_z(i, j, k) = 0$$

Projection suivant Oz :

$$\left[m\omega^2 - 4k_1 - 2k_1 + \frac{k_1}{2}(z_3 + z_3^{-1})[(z_1 + z_1^{-1}) + (z_2 + z_2^{-1})] + k_2(z_3^2 + z_3^{-2}) \right] u_z \\ + \frac{k_1}{2}[(z_3 - z_3^{-1})(z_1 - z_1^{-1})]u_x(i, j, k) + \frac{k_1}{2}[(z_3 - z_3^{-1})(z_2 - z_2^{-1})]u_y(i, j, k) = 0$$

Où z_j est le facteur de phase satisfaisant la condition de propagation suivant l'axe Ox . Ils sont donnés par : $z_j = \exp(iq_\alpha a) = e^{i\varphi_\alpha}$, où $j = 1, 2, 3$.

Les équations peuvent se mettre sous la forme d'un problème aux valeurs propres.

$$[\Omega^2 I - D(z_1, \lambda)]|u\rangle = 0 \quad (2.1)$$

$\Omega^2 = \frac{m\omega^2}{k_1} = \left(\frac{\omega}{\omega_0}\right)^2$ est la fréquence normalisée du système, $\lambda = \frac{k_2}{k_1}$ est le rapport entre les constantes de forces des premiers et seconds voisins.

Dans le cadre de notre étude le tableau suivant résume les valeurs des différentes constantes de forces des matériaux étudiés :

Matériau	Premier voisin (k_1) (J/m ⁻²)	Second voisin (k_2) (J/m ⁻²)	Le rapport (λ)
Cu	38.01	5.03	0.13
Ag	27.9	2.9	0.10
Au	45.33	1.4	0.03

Tableau(1.1): valeurs des constantes de forces pour les différent métaux étudiés

$|u\rangle$ est le vecteur déplacement. Les matrices I et D sont, respectivement, la matrice unité et la matrice dynamique du système parfait.

$$D = \begin{bmatrix} D_{11} & D_{12} & D_{13} \\ D_{21} & D_{22} & D_{23} \\ D_{31} & D_{32} & D_{33} \end{bmatrix}, \text{ ses éléments sont les suivants :}$$

$$D_{11} = m\omega^2 - 4k_1 - 2k_2 + \frac{k_1}{2}(z_1 + z_1^{-1})[(z_2 + z_2^{-1}) + (z_3 + z_3^{-1})] + k_2(z_1^2 + z_1^{-2}),$$

$$D_{22} = m\omega^2 - 4k_1 - 2k_1 + \frac{k_1}{2}(z_2 + z_2^{-1})[(z_1 + z_1^{-1}) + (z_3 + z_3^{-1})] + k_2(z_2^2 + z_2^{-2}),$$

$$D_{33} = m\omega^2 - 4k_1 - 2k_2 + \frac{k_1}{2}(z_3 + z_3^{-1})[(z_1 + z_1^{-1}) + (z_2 + z_2^{-1})] + k_2(z_3^2 + z_3^{-2}),$$

$$D_{12} = D_{21} = \frac{k_1}{2}[(z_1 - z_1^{-1})(z_2 - z_2^{-1})], D_{13} = D_{31} = \frac{k_1}{2}[(z_2 - z_2^{-1})(z_3 - z_3^{-1})],$$

$$D_{23} = D_{32} = \frac{k_1}{2}[(z_3 - z_3^{-1})(z_2 - z_2^{-1})].$$

1.2.2. Courbe de dispersion

Le système (2.1) admet des solutions si : $\det[\Omega^2 I - D(Z_1, \lambda)] |u\rangle = 0$.

Les valeurs propres de la matrice donnent les fréquences propres de vibration Ω en fonction de φ_x , lorsque q_x balaie la première zone de Brillouin.

La Courbe de dispersion est tracée sur la figure suivante :

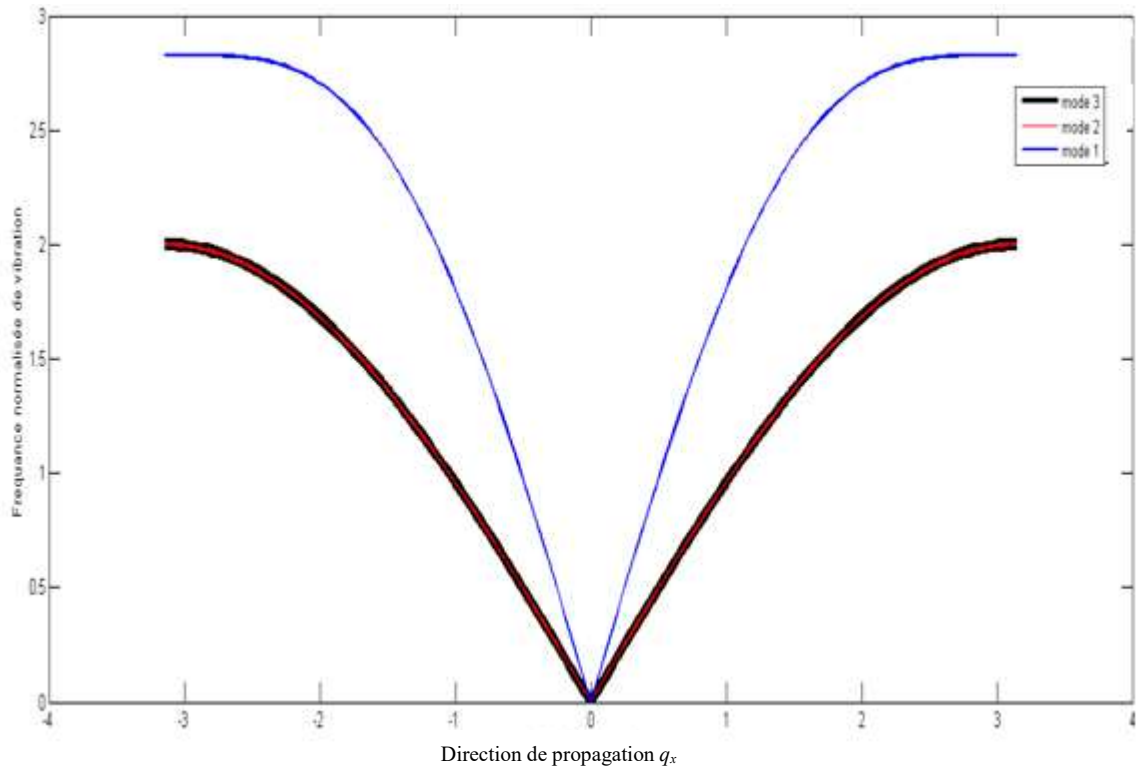


Figure (2.2) : Courbe de dispersion d'un réseau cfc parfait.

1.2.3. Vitesses de groupe

C'est la vitesse à laquelle l'énergie ou l'information est transportée dans le milieu dispersif, ou lorsque les directions de propagation sont multiples. Elle est définie pour des valeurs d'onde $\vec{q}$ réelles par l'expression

$$\vec{V}_g = \overrightarrow{\text{grad}}[\Omega(\vec{q})] \quad \text{soit} \quad V_g = \frac{\partial \Omega}{\partial q} \quad (2.2)$$

Dans le cas où $\vec{q}$ est complexe nous imposons une annulation de la vitesse de groupe. Une valeur nulle ou négative de la vitesse de groupe signifie que dans certain cas, des ondes propageantes deviennent stationnaires ou inverses leurs sens de propagation quand on change leur vecteur d'onde. La matrice D_V s'obtient en dérivant la matrice dynamique D .

Les vitesses de groupe de la structure cfc sont représentées sur la figure (2.3).

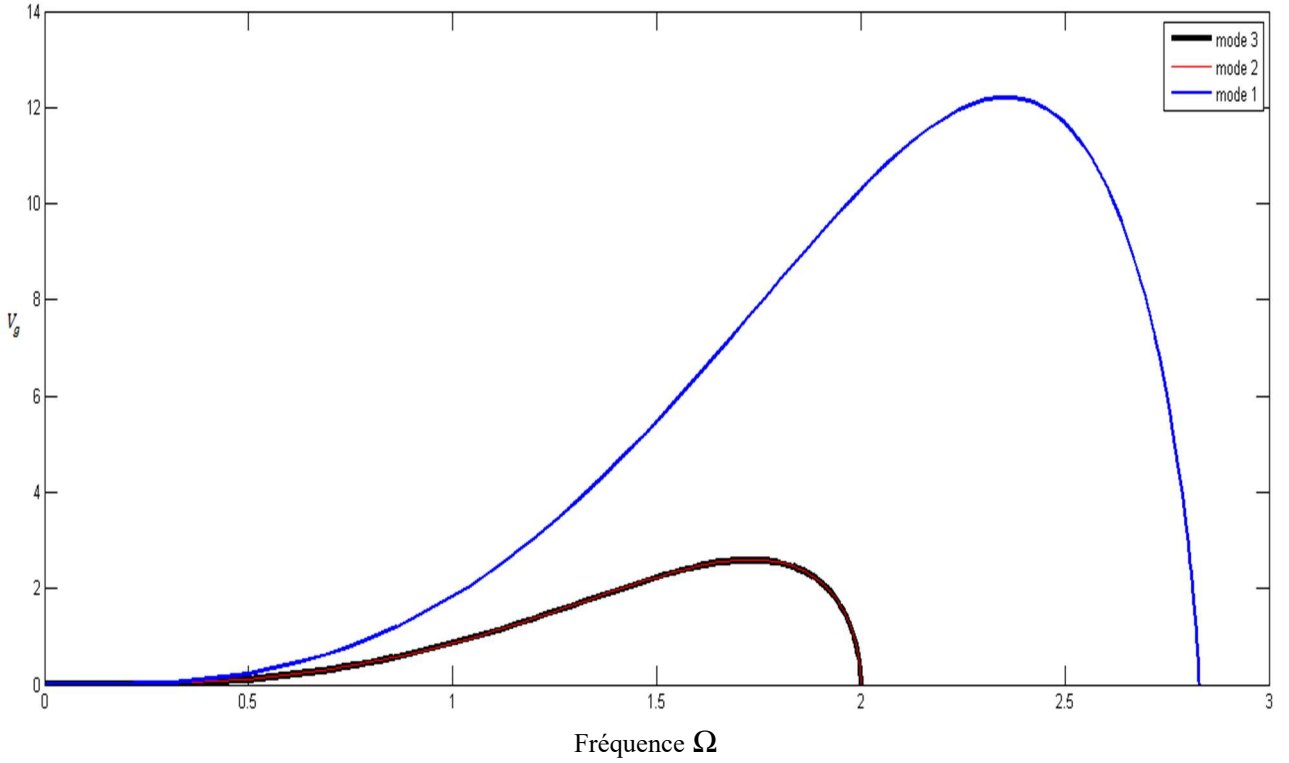


Figure (2.3) : Vitesses de groupe d'un réseau cfc parfait en fonction de Ω .

1.2.4. Discussion des résultats

Les courbes de dispersion du réseau cfc sont symétriques par rapport à l'origine, cela est due à la symétrie du problème étudié lors du passage vers l'espace réciproque et l'inversion du temps dans la 1^{ère} zone de Brillouin qui impose la parité des courbes par rapport à φ_x . Leurs dépendances en φ_x n'est pas linéaires ce qui signifie que le système est dispersif. En plus, vue que les trois branches ont une énergie $\Omega \rightarrow 0$ quand $\varphi_x \rightarrow 0$ alors les branches sont acoustiques, elles correspondent aux trois modes propageants dont deux entre eux sont dégénérés.

Les trois modes sont propageants dans des intervalles bien définis :

Mode (1) : $[\Omega_{1m} = 0.00, \Omega_{1max} = 2.82]$, Mode (2), (3) : $[\Omega_{2,3min} = 0.00, \Omega_{2,3max} = 2.00]$.

Les trois branches se recouvrent sur l'intervalle $[0.00, 2.00]$. Au-delà de cette plage de fréquence, il ne reste que la branche correspondant au mode (1), allant jusqu'à la valeur maximale de la fréquence normalisée $\Omega_{1max} = 2.82$ au bord de la zone supérieure. Les courbes de dispersion pouvant être assimilées aux spectres des énergies possibles pour les phonons en fonction de leurs impulsions. Pour un cristal réel, un tel spectre est très important, il permet de caractériser les énergies et les impulsions que celui-ci est susceptible de fournir ou d'absorbé lorsqu'il entre en interaction avec un autre système. On obtient les vitesses de groupe par le calcul de la pente des courbes de dispersion de chaque mode de vibration. Nous observons sur la figure (2.3), que l'étendue de la plage où la vitesse $V_g \neq 0$ est bien

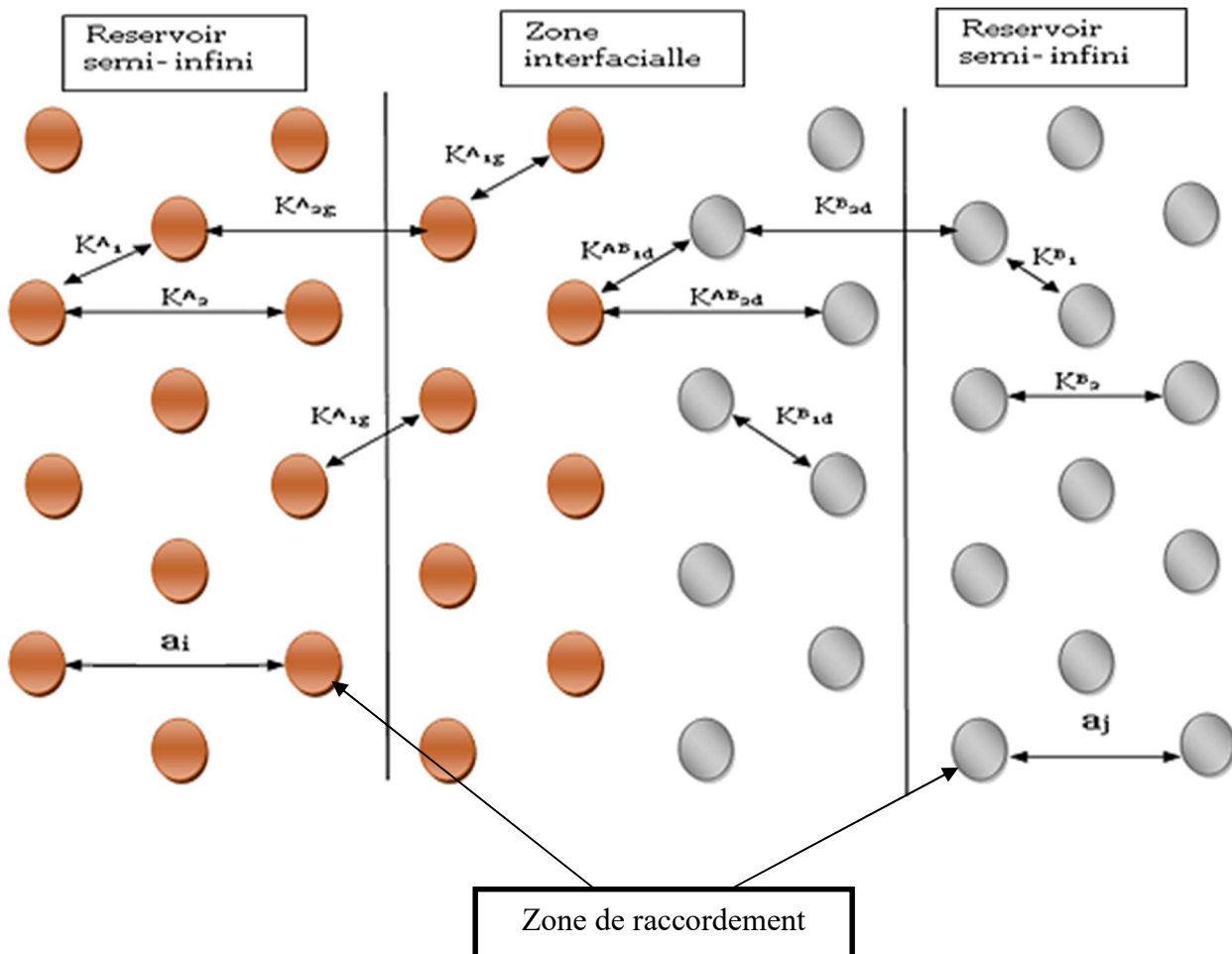
celle des modes propageants. On remarque aussi que la pente des courbes ne change pas de signe, ce qui signifie que l'onde incidente se propage sans changement de direction dans le cristal.

2. Etude de la diffusion via une interface

Dans ce travail, le système étudié est composé de deux sous-système semi-infini A et B , de masse m_A, m_B , respectivement, reliés par une interface dans la direction $[100]$. Les constantes de forces sont différentes selon la nature et la position de l'atome considéré.

Avant d'entreprendre l'étude dynamique du système, on subdivise le système en trois zones :

- i) Les zones à gauche de A et à droite de B : elles correspondent à des réservoirs semi-infinis parfaits (partie examinée au début de ce chapitre) ;
- ii) La zone du milieu : elle correspond à la zone interfaciale. Elle relie le centre du système aux zones A et B par l'intermédiaire de zones dites de raccordement ;
- iii) Les frontières entre les zones citées en i) et ii) appelées plus communément zones de raccordement. Un schéma résumant les 3 zones est donné sur la figure suivante :



Figure(2.4) : Représentation schématique d'une interface cfc de type A/B, séparant deux matériaux différents.

Telles que les constantes d'interaction sont : k_1^A, k_1^B et k_2^A, k_2^B entre premiers et seconds voisins en volume des matériaux A et B , respectivement. On note $k_{1g}^A, k_{1d}^B, k_{2g}^A, k_{2d}^B$ les interactions entre premiers et seconds voisins des sites situés dans les zones de raccordement et ceux irréductibles de même type (comme indiqué sur la fig.(2.4). Certains auteurs ont rapporté que les constantes de force citées ont une valeur qui diminue de 15 à 20% par rapport à sa valeur dans la structure parfaite. Dans la zone perturbée, les interactions, entre A et B , sont notées, respectivement, k_{1d}^{AB}, k_{2d}^{AB} entre premiers et seconds voisins. Ces dernières ne sont pas disponibles, nous les avons prises comme moyenne arithmétique des deux constantes des deux matériaux A et B , tel que : $k_{id}^{AB} = (k_i^A + k_i^B)/2$ [33].

2.1. Les modes évanescents

Les solutions de l'équation (2.1) donnent les fréquences propres Ω , et les vecteurs propres correspondants $\vec{u}_v$ pour le cristal parfait. Dans la perspective d'analyser les spectres de vibration (les états localisés, transmission et réflexion) des interfaces de type A/B, la connaissance à la fois des modes propagants et des modes évanescents, solutions de l'équation (2.1) sont indispensables. Les solutions exactes sont obtenues en fonction de la fréquence normalisée Ω , des vecteurs d'ondes φ_y, φ_z et les interactions dans le système considéré.

L'équation (2.1) admet des solutions non triviales si et seulement si :

$$\det[\Omega^2 I - D(Z_1, \lambda)] |u\rangle = 0 \quad (2.4)$$

Cela donne lieu à une équation séculaire caractéristique de degré six en Z_1 , qui s'exprime sous la forme polynomiale suivante :

$$c_0 + c_1 Z_1^1 + c_2 Z_1^2 + c_3 Z_1^3 + c_4 Z_1^4 + c_5 Z_1^5 + c_6 Z_1^6 = 0 \quad (2.5)$$

Les coefficients c_i s'expriment en fonction de $\Omega, \varphi_y, \varphi_z$ et k .

2.2. Matrice dynamique

En écrivant les équations de mouvement (1.16) des sites d'interface et ceux des zones de raccordement (situés de part et d'autre de la jonction), on obtient la matrice dynamique du système, elle est de forme rectangulaire $D_d(n \times m)$. Avec : n = nbre d'atomes irréductibles + le nbre d'atomes des régions de raccordement] $\times$ le nombre de degrés de liberté ; $m = n +$ [le nombre d'atomes adjacents reliés directement aux atomes de raccordement] $\times$ le nombre de degrés de liberté.

Dans notre cas, on aboutit à une matrice de taille D_d (18 $\times$ 24).

2.3. Matrice de raccordement

Le but de cette matrice est d'exprimer les déplacements atomiques de la matrice D_d en fonction des amplitudes des sites interfaciale et les grandeurs de raccordement. On obtient une matrice $D_d(m \times n)$. dite de raccordement. Pour la déterminer, il faut suivre les étapes suivantes :

Nous définissons deux bases distinctes $\{R\}$, $\{T\}$, dans les deux espaces (avant et après l'interface). La dimension des vecteurs est liée au nombre de modes de vibration obtenus lors de l'étude de la dynamique des réseaux parfaits [25], ainsi, dans ce travail $\{R\}$ et $\{T\}$ sont de dimension trois.

Un atome de la region de raccordement (à droite), on peut écrire ses déplacements comme suit :

$$u'_\alpha(n_x, n_y, n_z) = \sum_{j=1}^3 Z_j^{n_x} A'(\alpha, j) T_j \quad (2.6)$$

Et pour un atome de la region de raccordement gauche :

$$u_\alpha(n_x, n_y, n_z) = A(\alpha, i) Z_i^{n_x} + \sum_{i=1}^3 Z_i^{-n_x} A(\alpha, i) R_i \quad (2.7)$$

Où R_i et T_j sont, respectivement, les vecteurs unitaires des bases $\{R\}$ et $\{T\}$. α désigne les trois directions de l'espace. Et les deux coefficients A et A' représentent les poids pondérés associés aux différents modes évanescents. Ils sont déterminés à l'aide des vecteurs propres.

Le vecteur regroupant les déplacements atomiques de la zone perturbée est noté $|u\rangle$, il peut être décomposé en deux parties :

$$|u\rangle = \begin{bmatrix} |irr\rangle \\ |rac\rangle \end{bmatrix} \quad (2.8)$$

La partie $|irr\rangle$ est composée des déplacements des 4 sites irréductibles $\times 3$ degré de libertés. $\dim(|irr\rangle) = 4 \times 3 = 12$. La partie $|rac\rangle$ est constituée des déplacements des deux zones de raccordement, de dimension égale au 2 atomes de raccordement $\times 3$ degré de libertés. Par conséquent : la $\dim(|rac\rangle) = 2 \times 3 = 6$. On écrit la matrice de raccordement comme suit :

$$|u\rangle = \begin{bmatrix} |irr\rangle \\ |rac\rangle \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} I_d & 0 & 0 \\ 0 & R_1 & 0 \\ 0 & 0 & R_2 \\ 0 & R_3 & 0 \\ 0 & 0 & R_4 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} |irr\rangle \\ |T\rangle \\ |R\rangle \end{bmatrix} = [D_R] \begin{bmatrix} |irr\rangle \\ |T\rangle \\ |R\rangle \end{bmatrix} \quad (2.9)$$

I_d est la matrice identité dont la taille dépend du nombre d'atomes irréductibles multiplié par trois. Les blocs R_1 , R_2 , R_3 et R_4 définissent des sous-matrices carrées, dont les éléments sont exprimés en fonctions des cofacteurs.

Dans ce travail de mémoire, la taille de la matrice de raccordement est (24×18) .

Le produit de la matrice D_d obtenu précédemment, par la matrice D_R donne une matrice carrée $M_S = (18 \times 18)$.

Les spectres de vibration induits par l'existence de l'interface seront déterminés par la relation de compatibilité suivante :

$$\det[M_5(18 \times 18)] = 0 \quad (2.10)$$

2.4. Application : Interface entre deux métaux nobles

Dans ce travail, nous nous intéressons à la diffusion d'ondes élastiques via une interface métallique entre métaux nobles. Pour cela un formalisme mathématique a été mis au point et développé au chapitre précédent.

Les courbes présentant les coefficients de transmission et de réflexion, des différentes combinaisons possibles entre les métaux nobles, sont données sur les figures ci-après. Les combinaisons donnent six systèmes possibles (à mono-interface). Les paramètres caractérisant les métaux nobles parfaits et hétérostructures (interface) qui sont employés sont rappelés dans les tableaux suivants :

Métal parfait	Masses($\times 10^{-25} \text{ Kg}$)
Au	3.27
Ag	1.79
Cu	1.05

Tableau (2.1) : Masses atomique des métaux nobles d'après [1].

Système	$k_1^A \text{ (J/m}^2\text{)}$	$k_1^B \text{ (J/m}^2\text{)}$	$k_{1g}^A \text{ (J/m}^2\text{)}$	$k_{1d}^B \text{ (J/m}^2\text{)}$	$k_{1d}^{AB} \text{ (J/m}^2\text{)}$
Ag/Cu	27.9	38.01	22.32	30.40	32.95
Cu/Ag	38.01	27.9	30.40	22.32	32.95
Ag/Au	27.9	45.33	22.32	36.26	36.61
Au/Ag	45.33	27.9	36.26	22.32	36.61
Cu/Au	38.01	45.33	30.40	36.26	41.67
Au/Cu	45.33	38.01	36.26	30.40	41.67

Tableau (2.2) : Les constantes d'interaction entre deux sites atomiques, d'après [3] et [33].

2.5. Spectres de transmission et de réflexion

Pour l'étude de la diffusion, nous excitons les hétérostructures par une onde incidente se déplaçant de gauche à droite selon un mode de vibration propageant i . Au niveau de la nanojonction, l'onde se décompose en deux parties : l'une transmise et l'autre réfléchie. Le formalisme de calcul des coefficients de transmission et de réflexion a été détaillé dans le chapitre précédent.

Les résultats sont représentés pour une direction d'incidence correspondant à l'angle d'incidence $(\varphi_y, \varphi_z) = (0,0)$.

Les différentes structures examinées sont :

- i) Interface Ag/Cu : $m_{\text{Cu}} < m_{\text{Ag}}$, $k_{1d}^{AB} > k_1^A$ (durcissement des contraintes).
- ii) Interface Cu/Ag : $m_{\text{Ag}} > m_{\text{Cu}}$, $k_{1d}^{AB} < k_1^A$ (adoucissement des contraintes).
- iii) Interface Ag/Au : $m_{\text{Au}} > m_{\text{Ag}}$, $k_{1d}^{AB} > k_1^A$ (durcissement).
- iv) Interface Au/Ag : $m_{\text{Ag}} < m_{\text{Au}}$, $k_{1d}^{AB} < k_1^A$ (adoucissement).
- v) Interface Cu/Au : $m_{\text{Au}} > m_{\text{Cu}}$, $k_{1d}^{AB} > k_1^A$ (durcissement).
- vi) Interface Au/Cu : $m_{\text{Cu}} < m_{\text{Au}}$, $k_{1d}^{AB} < k_1^A$ (adoucissement).

Les coefficients T et R sont représentées sur les figures suivantes

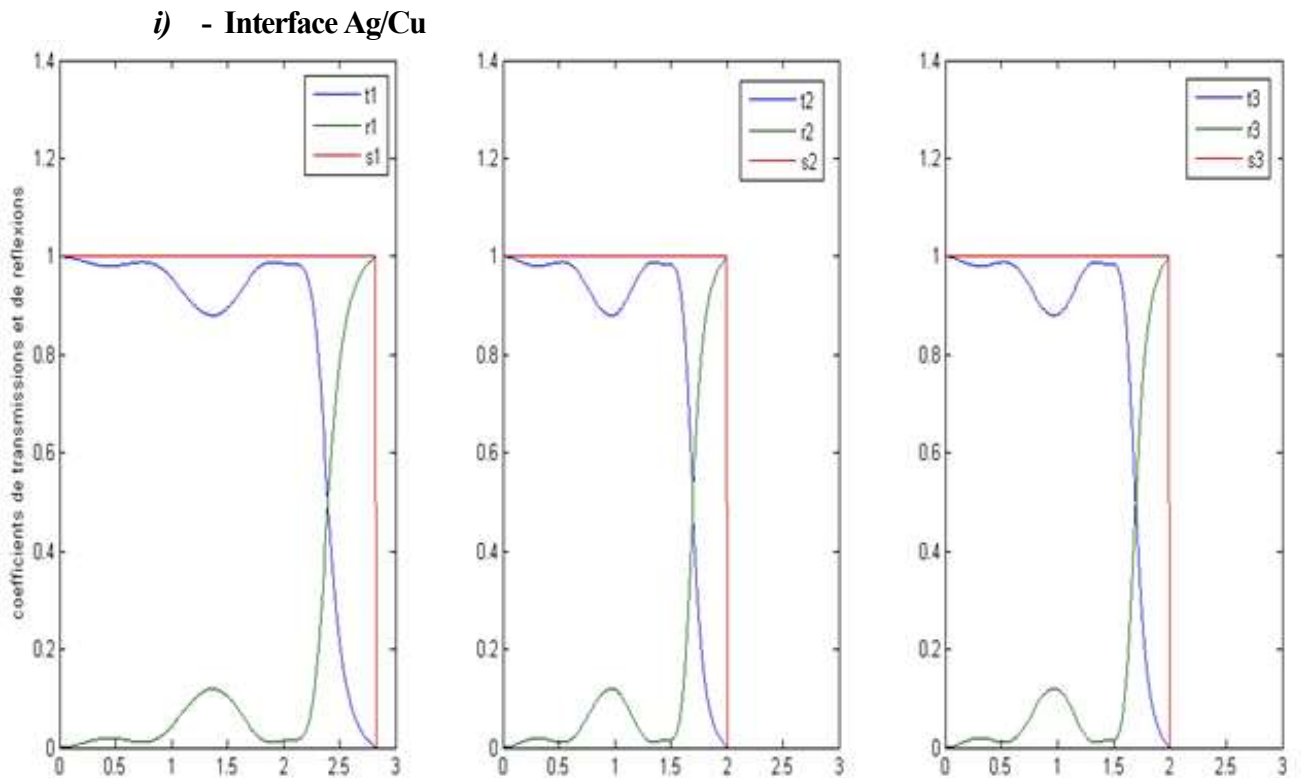
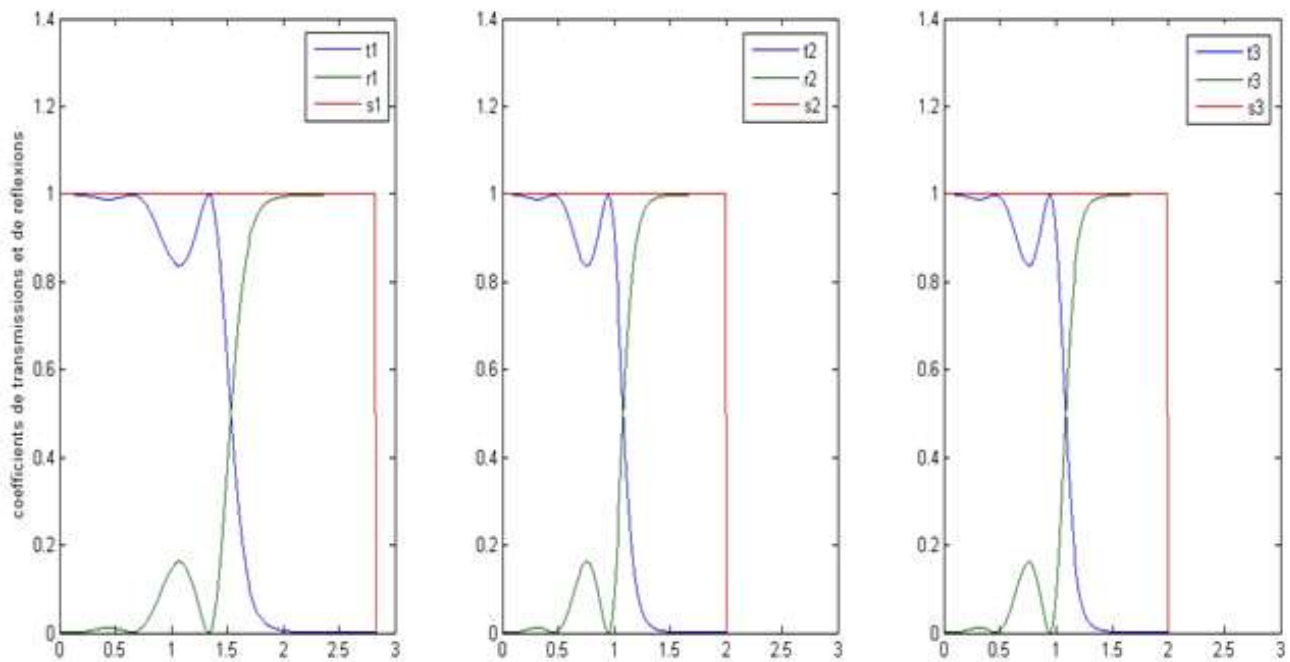
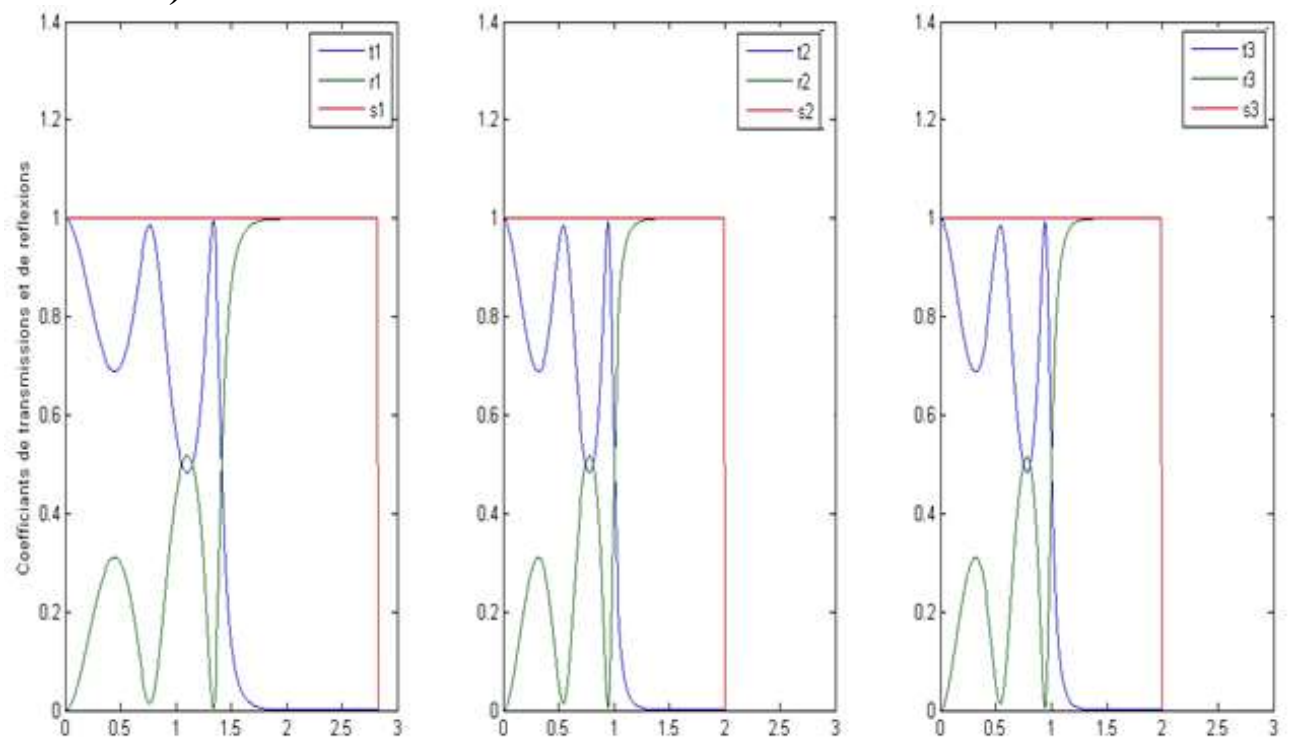
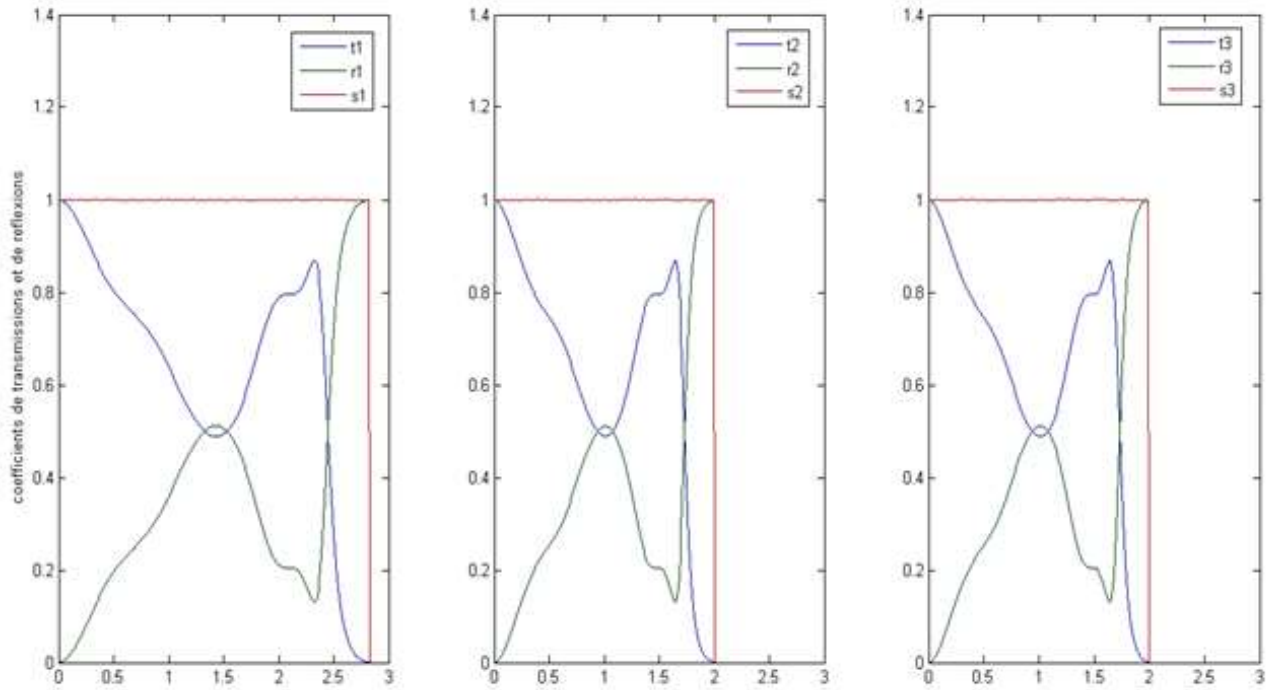
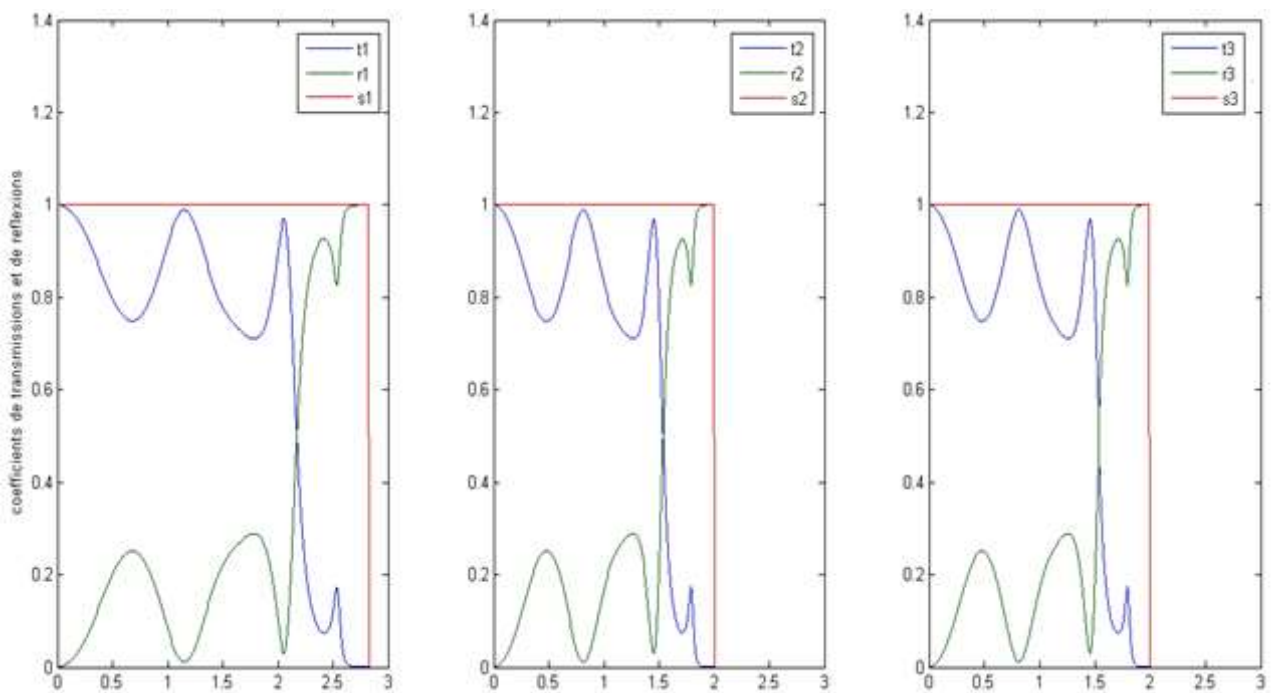


Figure (2.5) : Coefficients de transmissions et de réflexions d'une interface Ag/Cu.

ii) - Interface Cu/Ag**Figure (2.6) :** Coefficients de transmissions et de reflexions d'une interface Cu/Ag.**iii) - Interface Cu/Au****Figure (2.7) :** Coefficients de transmissions et de reflexion d'une interface Cu/Au.

iv) - Interface Au/Cu**Figure (2.8) :** Coefficients de transmissions et de reflexions d'une interface Au/Cu.**v) - Interface Ag/Au****Figure (2.9) :** Coefficients de transmissions et de reflexions d'une interface Ag/Au.

vi) - Interface Au/Ag

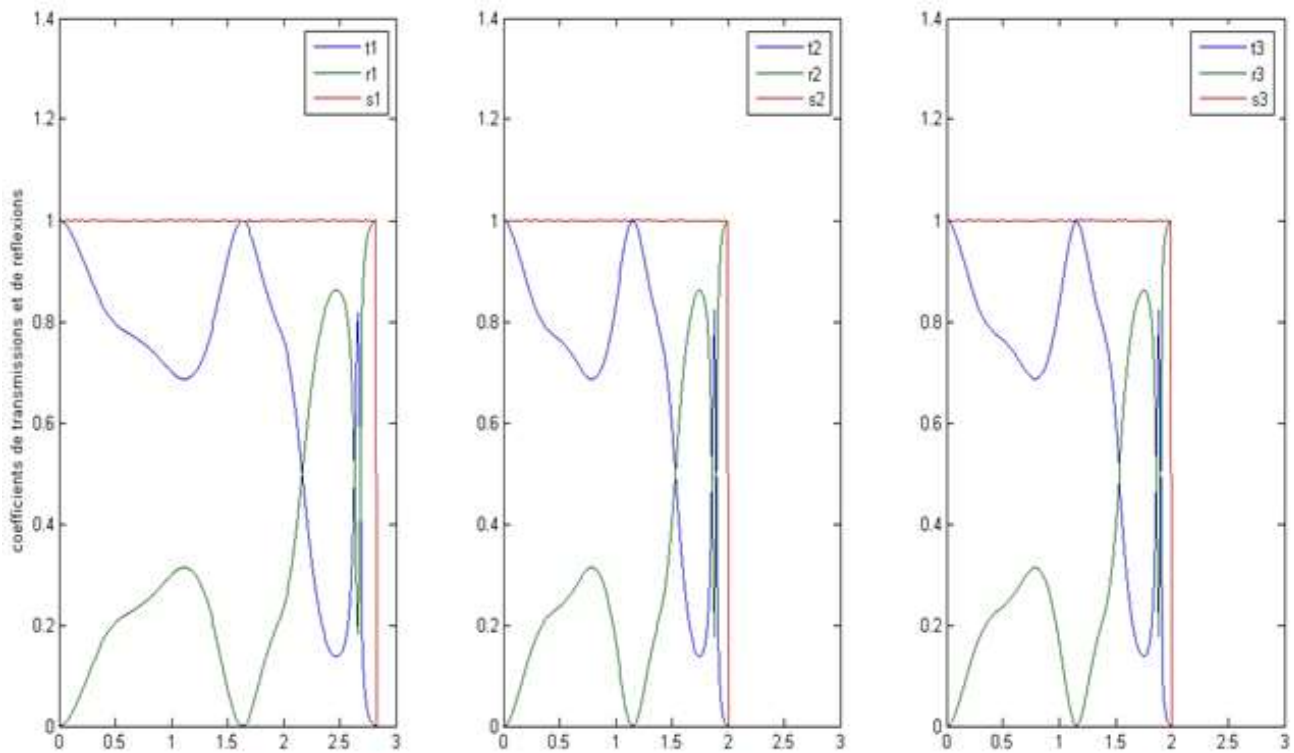


Figure (2.10) : Coefficients de transmissions et de reflexions d'une interface Au/Ag.

2.6. Discussion des résultats obtenus

Les résultats présentés dans ce mémoire sont obtenus dans le cas d'une interface reliant deux structures cfc semi-infinies et pour une onde incidente venant de gauche se déplaçant vers la droite de la zone interface suivant la direction [100]. Les spectres de vibration des systèmes interfaces examinés sont ceux se rapportant aux spectres de transmission et réflexion. Les calculs numériques ont été réalisés pour les possibilités de jonction entre les trois métaux nobles Cu, Au et Ag.

Pour chaque possibilité, nous avons étudié le comportement de l'onde de vibration en fonction de l'environnement élastique et massique des deux réservoirs situés de part et d'autre de la zone interface. La première constatation, commune à toutes les interfaces, est que la condition d'unitarité est vérifiée. D'ailleurs, cette propriété est utilisée comme teste de contrôle de nos calculs des coefficients de transmission et de réflexion. Nous notons, aussi, la dégénérescence des deux modes, numérotés (2) et (3) sur la figure (2.2) du système parfait, apparaît systématiquement dans tous les cas considérés, et que les courbes obtenues s'étendent sur la totalité des intervalles de fréquence, là où la propagation des ondes est permise pour les structures parfaites correspondants. Ce qui correspond évidemment aux domaines où les vitesses de groupe sont non nulles.

Sur l'ensemble des courbes de transmission et de réflexion représentés, on note une grande similitude dans leurs comportements face aux mêmes conditions de masse et de l'environnement élastique.

En effet, la forme de ces courbes suit la même allure, elles diffèrent qu'en nombre de fluctuations ainsi qu'en intensité de la transmission. D'après les courbes, les coefficients de transmission et de réflexion des trois modes ont la même réponse (même comportement) dans chaque structure dans la gamme de fréquences de vibrations permises, pour chaque mode définie dans la structure parfaite.

Dans le cas d'un système constitué d'une jonction entre Ag et Cu (cas des deux premières combinaisons (*i* et *ii*)), nous remarquons sur les courbes de transmission et de réflexion que si l'onde se propage de Cu vers Ag (Cu/Ag), Figure (2.5), ou bien l'inverse de Ag vers Cu (Ag /Cu) Figure (2.6), qu'elles ont un comportement similaire face aux vibrations du réseau, avec une transmission d'amplitude importante, à basse fréquences, et nous notons la présence d'une seule oscillation. Cette dernière est due à la perte d'énergie des ondes élastiques au voisinage de l'interface, de plus, il y a interférences entre les ondes élastiques dans la région perturbée (interface) donnent lieu à de multiples réflexions par les limites et les frontières du domaine interfacial. Nous observons, la diminution de l'amplitude de transmission, aux hautes fréquences, et devienne nulle aux bords de la zone de Brillouin et cela pour les trois modes de vibration des deux structures. La différence entre les deux courbes c'est que pour une onde venant de Ag vers Cu (système Ag/Cu), la transmission est importante sur presque tout le long de l'intervalle de propagation avec la présence d'un petit pic de réflexion à $\Omega_1 \sim 1.4$ pour le mode (1) et $\Omega_{2,3} \sim 0.9$ pour les modes (2) et (3), elle ne s'annule pas qu'au bord d'intervalle. Par contre dans le système Cu/Ag, la transmission figure (2.6), s'annule plus rapidement, on trouve que le mode (1) s'annule à $\Omega \sim 2.00$ et pour les modes (2), (3) à la fréquence $\Omega_{2,3} \sim 1.40$.

Quant au petit pic de réflexion, il se décale vers les basses fréquences, ainsi on le trouve à $\Omega_1 \sim 1.00$ pour le mode (1) et à $\Omega_{2,3} \sim 0.75$ pour les modes (2) et (3). La différence s'explique par la variation de l'environnement élastique et les différences de masses, lors du passage de l'onde incidente à travers l'interface.

Si on remplace Ag par Au dans les premières structures. On se retrouve avec deux matériaux semi-finis d'or et de cuivre reliés par une interface (cas *iii* et *iv*). Dans ces configurations, les courbes de transmission/réflexions des deux systèmes sont complètement différentes. Si l'onde vient de Cu vers Au (Cu/ Au), la courbe de transmission (figure (2.7)) présente plusieurs fluctuations notamment à basse fréquences, chose qu'on n'a pas trouvé précédemment, cela est dû essentiellement à la masse de Au qui est plus importante par rapport à celle du Cu (tableau 1) et cela influe aussi sur spectre de transmission qui s'annule à $\Omega_1 \sim 1.7$ et $\Omega_{2,3} \sim 1.25$ et ne couvre pas la totalité de l'intervalle de propagation. Alors que dans la figure (2.8) l'onde est transmise sur tout l'intervalle de propagation avec une diminution aux hautes fréquences, qui commence à $\Omega_1 \sim 2.4$ et $\Omega_{2,3} \sim 1.65$ mais le plus

intéressant, c'est la diminution de la transmission se fait aussi à basse fréquence avec une réponse quasi-linéaire $\Omega_1 \sim 1.5$ et $\Omega_{2,3} \sim 1.0$. Ceci est dû au fait que l'or est placé à gauche de la structure et sa masse est beaucoup plus grande et donc plus difficile à exciter, jusqu'à ce que l'onde acquière une énergie suffisante pour franchir cette barrière, pour faire remonter la transmission et puis finalement s'annule à haute fréquence.

Pour les deux dernières structures (cas *v* et *vi*) où l'argent remplace le cuivre. D'après les tableaux (1) et (2), la masse et les constantes de force de l'or sont bien plus supérieures à celles de l'argent. Sur la figure (2.9) les fluctuations dans le spectre de la transmission sont dû au durcissement des constantes de force et au fait que la masse soit lourde, on peut prédire que la transmission ne se fera pas aux hautes fréquences, ce qui est le cas avec la présence d'un pic aux alentours de $\Omega_1 \sim 2.5$ et $\Omega_{2,3} \sim 1.80$, causé par une énergie supplémentaire issue des ondes élastiques au voisinage de l'interface. Sachant qu'au cours de déplacement, les ondes acquièrent une énergie supplémentaire en interagissant avec les modes localisés dans la zone perturbée. De plus, elles interfèrent entre elles dans la région perturbée et donnent lieu à des ondes résultantes, avec des longueurs d'ondes particulières, dues aux multiples réflexions par les limites et la frontière du domaine interfacial mais vu que l'or est plus lourd alors la transmission arrive à un peu moins de 18% de sa valeur maximale. Tandis que dans la structure Au/Ag, la propagation se fait sur tout l'intervalle, avec la présence d'un pic aux alentours de $\Omega_1 \sim 2.75$ et $\Omega_{2,3} \sim 1.90$ qui atteint 84%, dû aussi à l'énergie gagnée en interagissant avec les modes localisés mais cette fois si, il rencontre des atomes d'argent plus légers et un environnement élastique favorable. Ces pics peuvent être définies comme des pics de résonance de types Fano [34]. A basse fréquence, la transmission diminue brusquement car l'énergie nécessaire pour franchir la barrière constituée d'atome de Au est grande, dès que celle-ci a été acquise, la transmission remonte pour atteindre sa valeur maximale puis diminuée à hautes fréquences.

En résumé, on peut dire que l'environnement élastique et le rapport des masses jouent un rôle très important dans la transmission phononique, pour avoir :

- Une transmission assez élevée avec peu de fluctuation, on privilégie des métaux avec des masses et des constantes de force assez proche (cas de l'interface à base d'Argent et de Cuivre). Sur une grande gamme de fréquences, on utilisera une interface Ag/Cu, ou bien si on s'intéresse seulement aux basses fréquences seulement, on peut utiliser une interface Cu/Ag.
- Une transmission contrôlée à des fréquences définies, on utilisera des métaux ayant des masses très différentes avec un environnement élastique dur, soit des hétérostructures ayant de l'or comme réservoir à droite et selon le besoin pour des basses fréquences on utilisera du cuivre (Cu/Au), Pour une large gamme de fréquences, on optera plus pour de l'argent(Ag/Cu).

- Pour les structures Au/Cu et Au/Ag, l'adoucissement des forces et les masse qui deviennent légères entraves fortement la transmission, sauf dans de rares cas de fréquence bien définie, où la transmission est maximale mais en général cet environnement n'est pas intéressant que les autres pour les applications.

Comme conclusion, nos résultats montrent, à l'échelle des petites longueurs d'ondes, que les phonons sont sensibles à la structure microscopique des surfaces et des interfaces en contact, et la détermination des courbes de dispersion correspondantes peuvent fournir des informations capitales concernant ces structures et les forces interatomiques mises en jeu par les différentes espèces présentes.

Références

- [1] C. Kittel. *Physique de l'état solide*. Dunod ed. (1998).
- [2] N. W. Ashcroft, N. D. Mermin. *Physique des solides*. EDP sciences (2002).
- [3] R. Heid, K. P. Bohnen., Phys. Rep. 387, 151 (2003).
- [4] G. Belkacemi. Thèse de doctorat, Université M. Mammeri de Tizi Ouzou (2015).
- [5] N. Agait, A. L. Yeyati, J. M. Van Ruitenbeek, Phys. Rep 377, 81(2003)
- [6] M. H. Mohamed, L. L. Kesmodel, B. M. Hall, Phys. Rev. B 38, 5856 (1988).
- [7] G. Weiming, P.Yong, Z. Kunhua, G. Junme, Rare Metal Mat. Engin. 39, 45 (2010).
- [8] R.Chadli. Thèse de doctorat, Université M. Mammeri de Tizi Ouzou (2012).
- [9] G. D. Batana, A.Barrera, Phys. Rev. B 47, 8588 (1993).
- [10] L. E. Scott, Doctorate Thesis of Carnegie Mellon University (2009).
- [11] R. Laundauer. J .Phys. Condensed Matter, 1, 8099 (1989).
- [12] R. E. Allen, G .P.Aldrege, F.W. De Wette, Phys. Rev. B 4, 18 (1971).
- [13] H. Hamzeh, Thèse de doctorat, Université Paris-Sud (2012).
- [14] B. Gans, S. K. King, P. A. Knipp, D. D. Koleske, S. J. Sibener. J. Elec. Spectr.Related Phenomena 54, 333 (1990).
- [15] J. A.Thomas, R. M. Iutzi, J. H. McGaughey, Phys. Rev. B 79, 62 (2011).
- [16] V. B. Gohel, C. K. Acharya, A. R. Jani, J. Met. Phys. 15, 279 (1984).
- [17] K. O. Schweitz, J. Böttiger, J. Chevallie, J. Appl. Phys. 88, 1401 (2000).
- [18] L. N. Rosenzweig, I. M. Lifshitz, I. Nauk. Phys. Rev. B , 667, 365 (1984).
- [19] H. Helmutz, J. Reine Angew. J. Fuer Die reine und angew. Matem 1, 1 (1860).
- [20] J. Behari, B. B. Tripathi. J. Phys C. 3, 659 (1969).
- [21] C. Newman., 1, 368 (1877).
- [22] V. Pelosin, J. Hillairet, B. Rodmac, J. Phys: Condensed Matter, 6, 1099 (1994).
- [23] B. C. Clark, R. Herman, R. F. Wallis. Phys. Rev. 3, 4 (1965).
- [24] C. A. Dacruz, Thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliqués de Lyon (2011).
- [25] O. Nafa, B. Bourahla, R. Tigrine. Turk. J. Phys. 34, 13 (2010).
- [26] P. Masri, B. Djafari-Rouhani, J. Phys. Col. 45, 333 (1984).
- [27] P. D. Ditlevsen, K. J. Nomskov, Surf. Sci. 254, 261 (1991).
- [28] Y. Singht, S. S.Kushwaha, K. N.Awasthit. J. Met. Phys. 12, 2205 (1982).
- [29] T. Shiota, A. I. Mares, A. M. C. Valkering, Phys. Rev B,77, 125411 (2008).
- [30] Q. Y. Jin, H. R. Zhai, Y. B. Xu. J. Magn. Magn Mater.140,1985(1995).
- [31] S. Labat, C. Guichet, O. Thomas. Appl. Surf. Sci.188, 182(2002).
- [32]V. Jean, S. Fumeron , D. Lacroix. Thèse de doctorat, Université de Lorraine (2011).
- [33] A. Montalban, V. R.Velasco, J. Tutor, Physica B 378, 36 (2007).
- [34] U. Fano, , Phys. Rev ,124, 1866 (1961).

Résumé

Dans les matériaux solides, la dynamique du réseau participe au transport de l'énergie. De plus, elle joue un rôle important dans la réponse du solide en présence d'une radiation (rayons X, lumière visible, neutrons). Le contrôle des phonons permettra de les utiliser pour moduler la lumière et la charge aux nano-échelles spatiales et aux ultra-hautes fréquences et éventuellement pour traiter de l'information et son stockage. Les applications industrielles des dispositifs dépendent fortement du type de matériaux ainsi que la maîtrise de son ingénierie de manipulation. Dans le domaine des sciences des matériaux, le cuivre, l'argent et l'or sont regroupés sous l'appellation métaux nobles. Ils se cristallisent dans la structure cfc et conservent celle-ci vers les températures les plus basses. Aucune transformation spontanée n'est observée dans ces métaux. Les métaux nobles sont particulièrement intéressants du fait qu'ils sont monovalents, simples, purs et disponibles. Ils sont également bien adaptés aux travaux de recherche concernant les effets des inhomogénéités (impuretés, surfaces, interfaces, lacunes, ...) sur leurs spectres de phonons et leurs propriétés thermodynamiques. Par exemple, ces métaux acceptent facilement une variété d'impuretés de substitution dans de larges gammes de concentration, et leurs structures simples devraient faciliter la comparaison entre théorie et expérience. En outre, le phénomène de résistance thermique aux interfaces des structures est particulièrement intéressant pour la création de super-réseaux dans lesquels il serait possible de contrôler à la fois les phénomènes de transport électrique et thermique.

Abstract

In the solid materials, the vibration properties are involved in the transport of energy. In addition, they play an important role in the response of the solid in the presence of radiations (X -rays, visible, and neutrons). Control of phonons can be used to modulate the light and the charge for space and nano- scale, ultra- high frequencies and possibly for processing information and storage. Industrial applications of the devices depend strongly on the type of materials and the mastery of his handling engineering. In the field of materials science, Copper, Silver and Gold are called noble metals. They crystallize in the fcc structure and retain this latter towards the lower temperatures. No spontaneous conversion was observed in these metals. The noble metals are particularly interesting because they are monovalent, simple, pure and available. They are also well suited to research on the effects of inhomogeneities (impurities, surfaces, interfaces, gaps, ...) on their phonon spectra and thermodynamic properties. For example, these metals readily accept a variety of substitutional impurities in broad concentration ranges, and their simple structures should facilitate comparison between theory and experiment. In addition, the thermal resistance phenomenon at the interfaces of structures is particularly advantageous for the creation of superlattices in which it would be possible to control both the electrical and thermal transport phenomena.

