

Chapitre II – Vibrations du réseau cristallin : Phonons

Nous avons vu que les atomes s'organisaient dans les cristaux pour former des structures cristallines bien définies. Si on se place à 0 K, les atomes sont fixes dans leurs positions d'équilibre. Si on augmente la température, les atomes vont vibrer autour de leurs positions d'équilibre. L'énergie d'une vibration est quantifiée et le quantum d'énergie est appelé phonon (par analogie avec les photons). On notera \vec{q} le vecteur d'onde du phonon. Nous ne traiterons que du cas où le réseau possède deux atomes par maille.

Dans ce chapitre nous étudierons les modes de vibration $\omega(\vec{k})$ d'un cristal et l'énergie de ces modes. La physique classique suffira dans un premier temps à mettre en évidence les modes de vibration ; il s'agit en fait d'un problème de ressorts couplés. On verra ensuite quelques aspects liés au traitement de phonons par la mécanique quantique. Enfin, le problème de l'interaction électron-phonon est abordé.

A. Cas d'un cristal 1D

1. Mise en équation du problème

On considère un cristal à une dimension géométrique et ayant 2 atomes par maille élémentaire, tel que décrit sur la Figure 1.

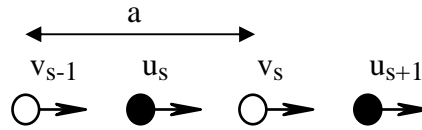


Figure 1 : Schéma du cristal 1D étudié.

On suppose que les atomes "noirs" ont une masse M_1 et on note $u_s, u_{s+1} \dots$ leurs déplacements par rapport à leurs positions à l'équilibre. Les atomes "blancs" ont une masse M_2 et on note $v_s, v_{s-1} \dots$ leurs déplacements. De plus, on suppose que les atomes "blancs" et les atomes "noirs" sont couplés par une constante de rappel C . Si on suppose que chaque plan n'interagit qu'avec ses plus proches voisins, on a :

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

et

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

Nous allons chercher des solutions sous la forme d'une onde de propagation :

$$u_s = u \cdot e^{isq\vec{a}} e^{-i\omega t} \quad \text{et} \quad v_s = v \cdot e^{isq\vec{a}} e^{-i\omega t} \quad (3)$$

ce qui, par substitution dans (1) et (2), conduit à :

$$\begin{bmatrix} 2C - M_1 \omega^2 & -C(1 + e^{-iq\vec{a}}) \\ -C(1 + e^{iq\vec{a}}) & 2C - M_2 \omega^2 \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} u \\ v \end{bmatrix} = 0 \quad (4)$$

Le système de deux équations linéaires à deux inconnues n'a une solution non triviale que si le déterminant est nul, soit :

$$M_1 M_2 \omega^4 - 2C(M_1 + M_2)\omega^2 + 2C^2(1 - \cos(qa)) = 0 \tag{5}$$

Les deux solutions du polynôme (5) en ω^2 sont données par :

$$\omega^2 = C \left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2} \mp \sqrt{\left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2} \right)^2 - \frac{2}{M_1 M_2} (1 - \cos(qa))} \right) \tag{6}$$

(on peut démontrer facilement que l'argument de la racine carrée dans (6) est bien positif). Cette relation est paire et $2\pi/a$ -périodique, on peut se contenter de la tracer sur une demi zone de Brillouin :

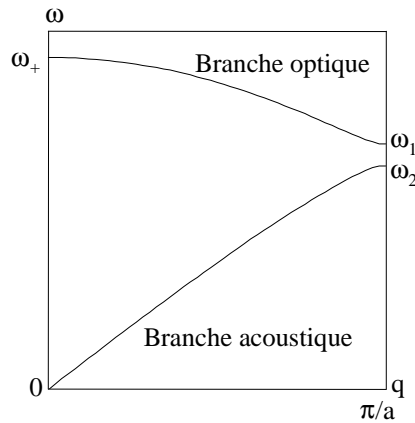


Figure 2 : Courbes de dispersion des vibrations dans un réseau linéaire de 2 atomes par maille primitive.

On remarque deux branches distinctes avec une bande interdite en fréquence. La branche supérieure correspond au signe + et la branche inférieure au signe -.

Près de l'origine, $qa \approx 0$ et les deux solutions de (5) sont :

$$\omega_+^2 = 2C \left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2} \right) \tag{7}$$

$$\omega_-^2 = \frac{C}{2(M_1 + M_2)} q^2 a^2 \tag{8}$$

Notons que l'énergie $\hbar\omega_+$ est de l'ordre de 30 meV dans les semiconducteurs "usuels".

La première solution correspond à la branche supérieure. Dans ce cas, on obtient en la reportant dans (4) que $u/v = -M_2/M_1$: les atomes vibrent en opposition de phase (figure 3). Une vibration de ce type pourrait être engendrée par le champ électrique d'une onde lumineuse, c'est pourquoi cette branche est appelée "optique".

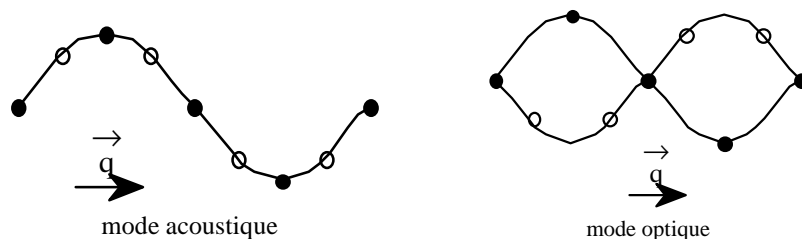


Figure 3 : Vibrations 1D transverses selon les branches acoustiques et optiques.

La seconde racine correspond à la branche inférieure. Dans ce cas, $u/v=1$ et les atomes vibrent en phase comme pour une excitation acoustique (Figure 3) : c'est la branche "acoustique", dont le nom peut se justifier également par le fait que c'est la branche à basse fréquence.

Pour les grandes longueurs d'onde ($qa \approx \pi$), les deux racines pour les deux branches sont données par (avec $M_1 > M_2$) :

$$* \text{ branche optique : } \omega_1^2 = \frac{2C}{M_2} \quad (9)$$

$$* \text{ branche acoustique : } \omega_2^2 = \frac{2C}{M_1} \quad (10)$$

2. Nombre de modes

Nous avons supposé jusque là que toutes les valeurs de q (et donc de ω) étaient acceptables. En réalité, la longueur finie L de la chaîne de $2N$ atomes entraîne une condition aux limites : on impose que les solutions u_s et v_s soient identiques aux deux extrémités de la chaîne, ce qui revient à boucler par l'esprit la chaîne sur elle-même. On peut aussi considérer que la chaîne est infinie mais en imposant des solutions u_s et v_s périodiques sur une grande distance L . Cette condition ($u_N = u_1$) est appelée *conditions aux limites périodiques de Born-von Kármán* :

$$u_N = u_1 \Rightarrow e^{iqL} = 1 \Rightarrow q = \frac{2n\pi}{L} \text{ où } n \text{ entier}$$

Remarque : on peut aussi dénombrer le nombre de modes en imposant que les deux extrémités de la chaîne soient fixes. Pour des systèmes de grande taille, la physique du problème n'est guère modifiée et l'on aboutit bien sûr au même nombre de modes.

Il n'y a donc qu'un nombre fini de modes de vibration par zone de Brillouin. La distance entre deux modes successifs dans l'espace réciproque est $\frac{2\pi}{L}$. Le nombre de modes est donc par zone et

par branche $N_m = \frac{2\pi/a}{2\pi/L} = \frac{L}{a} = N - 1$. En observant que $q = 0$ ne correspond pas à un mode de

vibration et que $q = \frac{\pi}{a}$ et $q = -\frac{\pi}{a}$ correspondent au même mode, il y a finalement $N_m = N - 2$ modes par zone et par branche. Si N est très grand, ce qui est le cas dans un cristal massif), on peut dire qu'il y a autant de modes que d'atomes dans le cristal.

3. Phonons optiques polaires

Dans un cristal où les liaisons entre atomes présentent un certain caractère ionique (III-V comme GaAs par exemple), il apparaît une densité de moment dipolaire quand les atomes ne vibrent pas en phase. Si les atomes voisins vibrent en phase, cette densité est uniforme ; s'ils sont quasiment en opposition de phase, il apparaît une onde progressive de moments dipolaires. Les phonons optiques polaires sont les modes propres associés.

B. Généralisation à un cristal 3D

Dans un cristal 3D l'espace réciproque devient également 3D et aux modes longitudinaux (acoustiques et optiques) que l'on a en 1D s'ajoutent dans chaque cas 2 modes transverses polarisés à 90° l'un de l'autre, comme illustré sur la Figure 4.

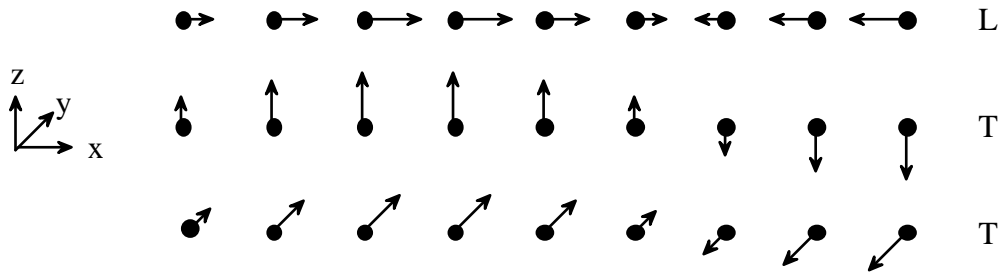


Figure 4 : Le mode de vibration longitudinal (L) et les 2 modes transverses (T) d'un réseau 3D.

On montre d'une manière générale que si la maille élémentaire contient p atomes, les courbes de dispersion sont constituées de $3p$ branches, dont 3 branches acoustiques et $3p-3$ branches optiques. Cela donne bien, pour $p=2$, 3 branches acoustiques et 3 branches optiques.

Les courbes de dispersion dépendent maintenant de la direction de propagation. Une allure typique est représentée sur la Figure 5 dans la direction [100]. En raison de la symétrie cristalline dans cette direction (ainsi que dans la direction [111]), les modes transversaux sont dégénérés; aussi l'on ne voit que 4 branches: longitudinale optique (LO), transverse optique (TA), longitudinale acoustique (LA) et transverse acoustique (TA). Les courbes de dispersion expérimentales de GaAs sont représentées sur la Figure 6 suivant 3 directions cristallographiques (Δ , Λ , et Σ). On voit que la dégénérescence des modes transverses est levée dans la direction Σ , c'est-à-dire [110].

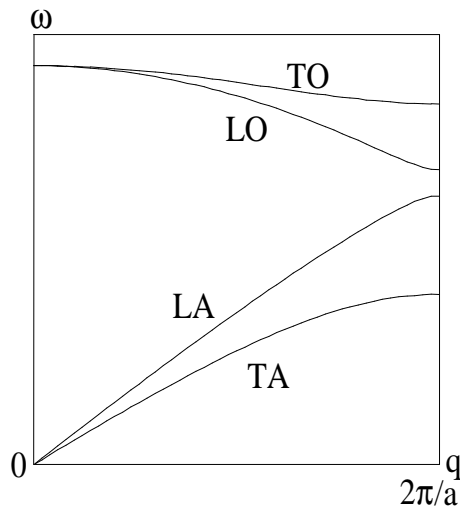


Figure 5 : Allure des courbes de dispersion dans un cristal pour des vibrations se propageant dans la direction [100].

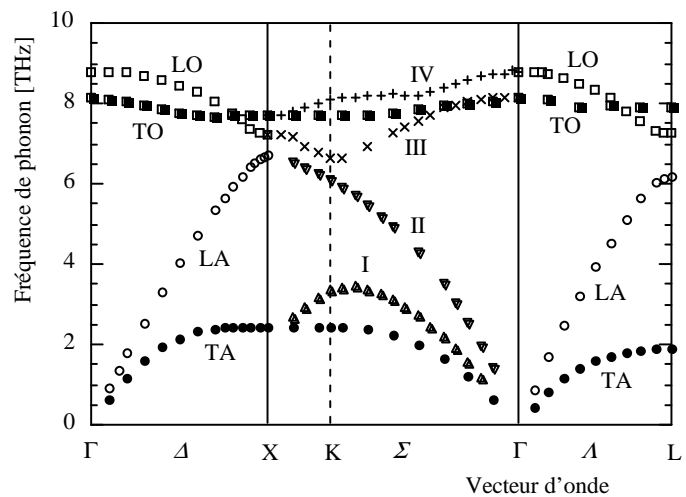


Figure 6 : Courbes de dispersion expérimentales de GaAs suivant 3 directions cristallographiques [D. Strauch, B. Dorner, J. Phys.: Condens. Matter 2, 1457-1474 (1990)].

C. Quantification de l'énergie

Pour calculer l'énergie associée aux modes de vibration il faut faire le traitement quantique du réseau d'oscillateurs harmoniques couplés que constitue le réseau cristallin. Ce traitement est fait dans tous les ouvrages de mécanique quantique (par exemple dans "Mécanique quantique", C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë, édition Hermann) ; nous ne l'aborderons pas dans ce cours.

Les valeurs propres de l'Hamiltonien du système sont quantifiées et de la forme:

$$E_n = \left(n + \frac{1}{2} \right) \hbar \omega \tag{11}$$

où n est un entier naturel et ω est la pulsation du mode considéré.

L'énergie de chaque mode de vibration est donc quantifiée ; le quantum d'énergie $\hbar\omega$ qui sépare deux niveaux consécutifs est appelé *phonon* par analogie avec le photon qui désigne le quantum d'énergie lumineuse. Un phonon peut être assimilé à une particule d'énergie $\hbar\omega$ et de vecteur d'onde \vec{q} , c'est-à-dire le vecteur d'onde du mode associé.

Remarque : un phonon n'est pas une "vraie" particule. En effet, il n'a pas d'existence propre. Il n'existe que parce que le réseau existe et que les atomes vibrent. Toutefois, il se comporte à l'intérieur du cristal comme une vraie particule et on le traite comme tel.

Les phonons sont des particules indiscernables auxquelles il faut appliquer une statistique quantique. On montre qu'ils ne sont pas soumis au principe d'exclusion de Pauli : ce sont des bosons, auxquels on applique la statistique de Bose-Einstein. La fonction d'occupation du niveau $\hbar\omega$ est donc :

$$f(\hbar\omega) = \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right) - 1} \quad (12)$$

D. Interaction électron/phonon

Comme toutes les particules, les phonons interagissent avec les autres particules présentes dans leur voisinage, en l'occurrence avec les électrons. En fait, c'est par l'intermédiaire des phonons que les électrons "libres" du cristal échangent de l'énergie avec le réseau d'atomes. Une interaction électron-réseau se traduit par le gain ou la perte d'un quantum d'énergie $\hbar\omega$. On dit aussi qu'un électron émet ou absorbe un phonon.

Ce processus se fait en conservant l'énergie et le vecteur d'onde du système. Si l'on désigne par E et \vec{k} l'énergie et le vecteur d'onde de l'électron avant interaction, et par \vec{q} le vecteur d'onde du phonon, on a après interaction:

$$\begin{cases} E' = E \pm \hbar\omega \\ \vec{k}' = \vec{k} \pm \vec{q} + \vec{G} \end{cases} \quad (13)$$

où \vec{G} est un vecteur du réseau réciproque.

Les perturbations du potentiel cristallin dues aux phonons peuvent être considérées comme des événements instantanés à l'échelle des temps de "vol libre" des électrons (temps au cours desquels les porteurs ne voient que le champ électrostatique, mais pas les perturbations). On peut donc utiliser la théorie des chocs. La densité $s(\vec{k}, \vec{k}')$ de probabilité de transition par unité de temps entre les états initial $|\vec{k}\rangle$ et final $|\vec{k}'\rangle$ est donnée par la règle d'or de Fermi (voir encore par exemple l'ouvrage "Mécanique quantique" par C. Cohen-Tannoudji, B. Diu et F. Laloë) :

$$s(\vec{k}, \vec{k}') = \frac{2\pi}{\hbar} |M(\vec{k}, \vec{k}')|^2 \cdot \text{DOS}(\vec{k}') \cdot \delta(E \pm \hbar\omega - E') \quad (14)$$

avec

$$M(\vec{k}, \vec{k}') = \langle \vec{k}' | H_i | \vec{k} \rangle = \iiint \Psi_b^*(\vec{r}, \vec{k}') \cdot H_i \cdot \Psi_b(\vec{r}, \vec{k}) d^3\vec{r} \quad (15)$$

et où H_i est le potentiel de perturbation, $\text{DOS}(\vec{k})$ la densité d'états dans l'espace réciproque et $\Psi_b(\vec{r}, \vec{k})$ (resp. $\Psi_b(\vec{r}, \vec{k}')$) la fonction d'onde associée à l'état initial (resp. final). La fréquence

d'interaction (en s^{-1}) est obtenue par intégration de $s(\vec{k}, \vec{k}')$ sur tous les états finaux possibles, c'est-à-dire les valeurs possibles de \vec{k}' :

$$\lambda(\vec{k}) = \iiint s(\vec{k}, \vec{k}') d^3\vec{k}' \quad (16)$$

Sur la Figure 7 est tracée l'évolution de la fréquence des chocs avec les phonons acoustiques dans Si, à la température de l'azote liquide (77 K) et à l'ambiante (300 K) et ce en fonction de l'énergie cinétique des électrons. Plus la température est élevée, plus les vibrations du réseau cristallin sont importantes et les chocs avec les phonons fréquents. Notons que dans le cas des acoustiques, l'énergie $\hbar\omega$ est faible et qu'on ne distingue alors souvent pas les cas d'absorption et d'émission de phonons.

Le cas de GaAs à 300 K est illustré par la Figure 8 : fréquences de chocs avec les phonons acoustiques et optiques polaires en fonction de l'énergie cinétique. Pour ce qui est des acoustiques, la fréquence est environ 10 fois plus faible que dans Si à la même température. Dans le cas des optiques polaires, l'émission de phonons n'est possible que si les électrons sont suffisamment énergétiques ($\hbar\omega \approx 36$ meV).

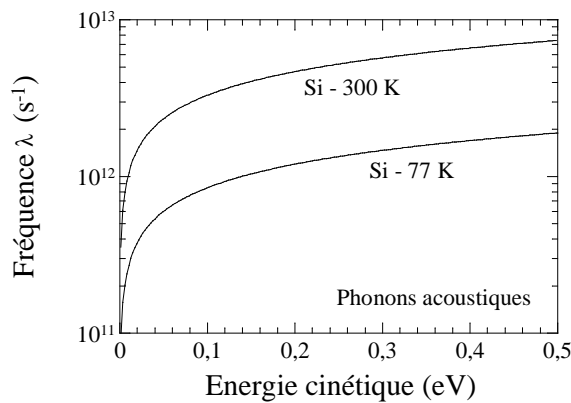


Figure 7 : Fréquence d'interaction avec les phonons acoustiques dans Si, à 77 K et 300 K. Cas des vallées Δ .

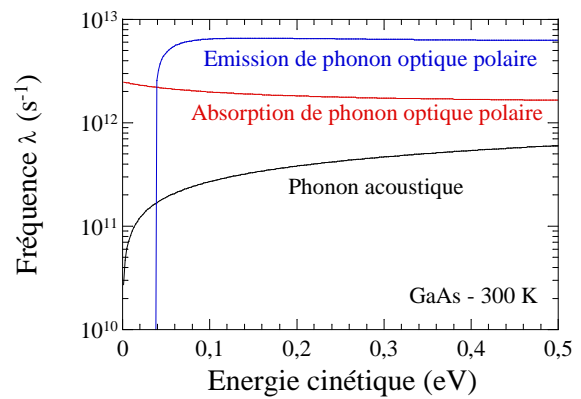


Figure 8 : Fréquences d'interaction avec les phonons acoustiques et optiques polaires dans GaAs à 300 K. Cas des vallées Γ .