



HAL
open science

Résolution de l'équation de transport de Boltzmann pour les phonons et applications

Hani Hamzeh

► **To cite this version:**

Hani Hamzeh. Résolution de l'équation de transport de Boltzmann pour les phonons et applications. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Sud - Paris XI, 2012. Français. NNT : 2012PA112371 . tel-00778705

HAL Id: tel-00778705

<https://theses.hal.science/tel-00778705>

Submitted on 24 Jan 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITE PARIS-SUD

ÉCOLE DOCTORALE : STITS (ED n° 422)
Institut d'Électronique Fondamentale - UMR CNRS 8622

DISCIPLINE : PHYSIQUE

THÈSE DE DOCTORAT

soutenu le 13/12/2012

par

Hani HAMZEH

Résolution de l'Équation de Transport de Boltzmann pour les Phonons et Applications

Directeur de thèse :

Frédéric ANIEL

Professeur (IEF - Univ. Paris-Sud)

Composition du jury :

Président du jury :

Philippe DOLLFUS

Directeur de Recherche (IEF - Univ. Paris-Sud)

Rapporteurs :

Sebastian VOLZ

Directeur de Recherche (EM2C - Centrale Paris)

Robson FERREIRA

Directeur de Recherche (LPA - ENS)

Examineur :

Jean-Luc THOBEL

Chargé de Recherche (IEMN - Univ. Lille 1)

À ma mère,

à mon père

﴿وَخَفِضْ لَهُمَا جَنَاحَ الذُّلِّ مِنَ الرَّحْمَةِ وَقُلْ رَبِّ ارْحَمْهُمَا كَمَا رَبَّيَانِي صَغِيرًا﴾

Remerciements

Je tiens à remercier en premier lieu, mon directeur de thèse Frédéric Aniel, pour m'avoir accueilli dans son équipe de recherche, d'avoir accepté d'encadrer et de m'avoir proposé cette thèse. Je le remercie pour sa disponibilité, sa bienveillance. Le côtoyer pendant presque cinq ans, et partager son bureau, fut un plaisir, tant pour sa gaieté et son humour, que pour les longues discussions qu'elles soient à caractère scientifique ou non. Je serais toujours admiratif de l'étendue de son savoir scientifique, ainsi que de sa culture générale dans beaucoup d'autres domaines dont la littérature, la société, la politique, et etc. dont nous avons eu maintes occasions d'aborder. Outre le fait que c'était une expérience enrichissante d'un point de vue scientifique, cette thèse en fut une également du point de vue humain. Je suis infiniment reconnaissant pour sa confiance, l'autonomie et les libertés qu'il m'a accordées, et le savoir qu'il m'a permis d'acquérir.

Je remercie vivement Messieurs Sebastian Volz et Robson Ferreira pour avoir accepté de rapporter sur ce travail de recherche, et Messieurs Philippe Dollfus et Jean-Luc Thobel d'avoir accepté de participer à mon jury de thèse, et je les remercie tous pour l'intérêt porté à mon travail de recherche et leur temps.

J'ai collaboré sur un des volets de cette thèse avec mon ancien collègue Eric Tea, que je remercie particulièrement pour le temps qu'il m'a consacré lors de l'encadrement de mon stage de recherche de M2R et pour sa disponibilité. Je tiens à exprimer mes remerciements aussi à tous les membres de l'équipe EPHYCAS dont je faisais partie, les « permanents » : Nicolas Zerounian, pour la routine d'extraction de points graphiques ainsi que pour s'être occupé de procurer tout le matériel informatique nécessaire et ces commentaires et conseils très serviables pour toutes les communications orales et graphiques, et Anne-Sophie Grimault, surtout pour avoir supporté notre humour en salle de café ; ainsi que les non-permanents, notamment Eloy Ramirez-Garcia pour sa gentillesse et Bouchra Tissafi.

Tous les (ex-)membres de l'ex-département NAEL, permanents, doctorants ou post-doctorants, lesquels j'ai côtoyé pendant toutes ces années à l'IEF, ont leurs places dans cette liste de remerciement, notamment Matthieu Martin, Zheng Han, Thi Phuong Ngo. Je remercie particulièrement Mr Philippe Boucault pour m'avoir accueilli dans son département de recherche, de plus avec Mr Sébastien Sauvage pour avoir assister et participer à mes répétitions de soutenance et leurs commentaires qui m'ont bien servi.

Je n'oublie pas de remercier pour leur gentillesse et leur bienveillance les (ex-)membres des services administratifs rattachés à l'enseignement : Mme Claudine Falchetta, Mme Elisabeth Bouyssy ; ou à l'IEF : Mme Sylvie Durand, Mme Patricia Polselli, Mlle Vanessa Benard, Mme Marie-Pierre Caron, Mme Francine Plumelle, Mlle Ingrid Fey ; ou bien encore, à l'UFR d'Orsay : Mme Françoise Pallais.

Les collègues (ex-)doctorants et (ex-)post-docs des autres départements que j'ai côtoyés pendant mes longues années à l'IEF : Vincent Talbo, Fulvio Mazzamuto, Ahmad Driss, Audrey Valentin, Fatma Outay, Damien Querlioz, Yasser Almechio, François Réveret, Andres De Luna, Jaafar Chabi, Salam Sakr, Huu Nha Nguyen, et tous les autres. Ca fut un plaisir.

Les (ex-)doctorants d'autres laboratoires et d'autres disciplines que j'ai eu le plaisir de connaître, je vous remercie des moments partagés : Lina Majed, Dalya Jreige, Wilfrid Faider, Jean-Christophe Tourneux, Morgane Bourdonnais, Alice Michalot, Julie Muñoz, Arnaud Stevenin, Sebastien Benard, Cécile Ouairy, Leslie Duroure, François Tariel, et les autres doctorants des Doctoriales de juin de 2010.

Je tiens à exprimer mes remerciements à toutes les personnes avec lesquelles j'ai interagi dans le cadre de mon enseignement, dont Arnaud Bournel qui fut mon tuteur d'enseignement pendant mon monitorat, et Sylvie Galdin-Retailleau qui avec le dernier m'ont fait aimer, grâce à leurs cours, la physique des semi-conducteurs il y a quelques années maintenant.

Je clôture cette première partie des remerciements qui relève du monde académique, par Paul-Henri Tichit, qui fait le lien entre beaucoup de monde, merci pour tout, mais surtout parce que t'es « c ». Promis un jour je te laisserai me dépasser au *Roger* (quoique non finalement).

Ne pas citer dans ces remerciements mes amis de toujours m'est inenvisageable : Sami Adra, Marc Abi Karam et Hani Kabbara ; vous resterez mes frères à jamais. Par la suite, je remercie aussi mes amis d'expatriation : mon âme sœur Hamdi Ben Abid, et mon grand frère Zaatat Makni, ainsi que Fadi Khoury, et mon *wingman* Raoul Garios ; et dans la foulée : Luc Gharios, frère du dernier (et mon petit frère), et *okhty* Michel Moussa.

Special thanks and special thoughts: to my confident and dearest sweetie Stefanie Haumann; and to my roomie and bro Daniel Brine.

And I cannot allow myself to forget the gang: Edouard Salwan, Hanna Hajjar, Tarek Issa, Nadim Hajjar, and Jean Salloum, vivement de nouvelles *aventures*, and "new *experiences*" while always "thinking out of the box".

Je tiens à remercier également, pour des raisons diverses et multiples : Aude Nicolas, Rouba Kraytem, Maude Charbonnier, et Marie Robert.

Thanks and cheers to all the *Corco* people & co: my big sister Clare Morton, *b*head* Bettina Tran Dinh, Sheilann Nyland, Jessica Ryan, Kahina, Antoine Guigue, Arnaud Vaccani, Victor, Kristina Fabian, Nico, Sofianne, Keita, Lisa Vuolerma, Leila Aswabani, Caoimhe McWeeney, Shivon, Cormac O'Sullivan, Charlène Boeiro, Nasa, Touchi, Marius Frederick Fletcher, Josh Kacimawai, Alex, Osh, Damien Turet, Eddyjay, Phil Sersour and all the others that I may have forgotten. And regards to the companions of the *B'Corner*: Ban Tell, Olivier, Sandrine, Sama Altaher, Kellie Lawrence, Adam O'Callaghan, Finbarr Quinlan, Alexandra Scott, Christina Carey, Simone Lastrapes, Svetlana Rampon, Charlotte Gaud, Florian Emaury, Jean Lautier, Audrey Baudry, Raquel Marie Diaz, Ellie Sarmadi, Elektra, Filip Zafirovski, etc.

Je souhaite aussi faire un clin d'œil et remercier Hani Ajaj, Rana Fakih, Charles Hajj Moussa, Juliano Naoufal, Guillemette, Riad Rizk, Marwan Hussein, Rabih Karam, Hanna, Ellie, Jean, Gabi, Yane Bou Nassar, Chema, Juliette, Laura, Isabella, Laure, Jasmine, Megan, Marion, Dragana, Marie, Clotilde, Samia, Francesca, Antonine, Shana, Missy et Sandra.

Je remercie mes sœurs et mon frère : Dima, Wafa, et Ihab, de leur amour, tendresse, attention, générosité, dévotion, et pour tout ce qu'ils sont. Hicham et Fidaa je vous remercie également pour tout, et surtout parce que grâce à vous sont nés ces êtres extraordinaires que sont Rafic, Ihab, Jad et Ali, que je remercie également pour la joie que procurent leurs sourires exquis.

Enfin, je reviens au commencement, à la source, « aux auteurs de l'auteur ». Aucun mot ni formulation ne pourrait exprimer l'étendue de la gratitude que j'ai envers mes parents Rafic et Haïfa. Rien ne me permettra de vous rendre tout ce que vous m'avez donné. J'espère uniquement vous procurer un peu de satisfaction et de fierté. Merci d'avoir imprégné en moi l'importance de l'éducation et du savoir. Tout ce que j'accomplis est grâce à, pour, et à vous éternellement.

كلمات الشكر عاجزة و كل العبارات اوهن من ان تستطيع ان تعبر عن مدى امتناني لوالدي, رفيق و هيفاء. يستحيل علي اي فائكم ما تستحقونه, ولكن املي الوحيد ان احظى ببعض رضاكم و ان امنحكم القليل من الفخر. اني مدين لكم فوق كل شيء لأنكم نفختم في حب المعرفة و العلم. كل ما اصنع و اي انجاز اتوصل اليه هو بفضلكم, من اجلكم و لكم طالما حييت.

Table des matières

REMERCIEMENTS	VIII
TABLE DES MATIERES	XII
I INTRODUCTION	1
I.1. DYNAMIQUE DES PHONONS ET INFLUENCE SUR LA DYNAMIQUE DES PORTEURS	4
I.2. TRANSPORT DE LA CHALEUR.....	7
I.3. DYNAMIQUE MOLECULAIRE	9
I.4. ÉQUATION DE TRANSPORT DE BOLTZMANN	10
I.5. RESOLUTION NUMERIQUE DE L'EQUATION DE TRANSPORT DE BOLTZMANN POUR LES PHONONS.....	12
I.6. LA METHODE MONTE CARLO POUR LE TRANSPORT DES PHONONS.....	13
I.7. PLAN DE LA THESE	16
II THEORIE DES PHONONS : RAPPEL	19
II.1.a. Modes Normaux de vibrations des réseaux cristallins	19
II.1.b. Chaîne linéaire diatomique	21
II.1.c. Réseau tridimensionnel	23
II.2. QUANTIFICATION DE L'ENERGIE : PHONON.....	25
II.3. ANHARMONICITE	26
II.4. RELATIONS DE DISPERSION	27
III INTERACTIONS PHONON—PHONON.....	31
III.1. ETABLISSEMENT DE LA THEORIE GENERALISEE DE RIDLEY	31
III.1.a. Règles de sélection.....	35
III.1.b. Expressions générales des taux d'interaction	37
III.2. TEMPS DE VIE.....	38
III.2.a. Relation entre temps de vie et largeur de raie Raman	42
III.3. CALCUL ANALYTIQUE	42
III.3.a. Interaction $LO \rightarrow LA + LA$	42
III.3.b. Interaction $LA \rightarrow TA + TA$	47
III.3.c. Interaction $LO \rightarrow TO + LA$	52
III.3.d. D'autres calculs analytiques	53
III.4. CALCUL NUMERIQUE	58
III.4.a. Routine de Calcul des interactions phonon–phonon.....	58
III.4.b. Traitement des processus Umklapp.....	60
III.4.c. Difficultés numériques et discrétisations	62
IV METHODE MONTE CARLO POUR LA RESOLUTION DE L'ETB DES PHONONS.....	65
IV.1. DISCRETISATION	66
IV.2. DEFINITION DU SYSTEME PHYSIQUE	68
IV.2.a. Paramètres d'entrée de la simulation.....	68
IV.2.b. Dimensions de la cellule élémentaire et de la structure	68
IV.2.c. Pas de temps	69
IV.3. CONDITIONS INITIALES.....	70
IV.3.a. Nombre de phonons.....	70
IV.3.b. Initialisation des super–particules	73
IV.3.b.i. Position.....	73
IV.3.b.ii. Vecteur d'onde, mode de polarisation et fréquence	74
IV.3.b.iii. Direction.....	74
IV.4. TRAITEMENT DES SUPER–PARTICULES DANS LA SIMULATION	75
IV.4.a. Déplacement des super–particules	77
IV.4.a.i. Collisions avec les bords	77
IV.4.b. Interactions intrinsèques des phonons.....	79
IV.4.b.i. Procédure de traitement	80

IV.4.b.ii. Participations des états phononiques fils.....	82
IV.4.b.iii. Statistiques directionnelles des vecteurs d'onde fils	83
IV.5. CONDITIONS AUX LIMITES.....	85
IV.6. FLUX DE CHALEUR, CONDUCTIVITE THERMIQUE, ET TEMPERATURE	87
IV.6.a. Calcul du flux.....	87
IV.6.b. Calcul de la conductivité thermique	88
IV.6.c. Calcul de la température	89
IV.7. PARTICULE DE DEVIATION NEGATIVE OU « <i>NONON</i> »	89
V DYNAMIQUE DES PHONONS.....	93
V.1. COEFFICIENTS DE COUPLAGE ANHARMONIQUE.....	94
V.2. LA CONFIGURATION DES SIMULATIONS	98
V.3. RESULTATS ET DISCUSSIONS.....	100
V.3.a. Validation du Code et diverses simulations.....	100
V.3.a.i. GaAs.....	100
V.3.a.ii. Simulations dans InP, InAs, InSb, Ge et Si	107
V.3.b. Analyse des canaux de décomposition dans les matériaux III–V.....	110
V.3.b.i. GaAs.....	111
V.3.b.ii. InP.....	113
V.3.b.iii. InAs et GaSb	115
V.3.c. Comparaison et discussion général pour les binaires III–V.....	115
V.3.d. Analyse des canaux de relaxation dans Si et Ge.....	119
VI DYNAMIQUE COUPLEE PHONON—ELECTRON	123
VI.1. PHONONS CHAUDS ET EFFET 'BOTTLENECK'	124
VI.2. COUPLAGE MC PORTEURS/PHONONS	126
VI.2.a. MC porteurs	126
VI.2.b. MC phonons	132
VI.2.c. Couplage du MC phonons avec le MC porteurs de charges	134
VI.2.d. Modélisation d'une expérience « pompe–sonde » : principes	135
VI.3. RESULTATS.....	136
VI.3.a. Densités de paires électron—trou faibles	136
VI.3.b. Densités de paires électron—trou grandes.....	141
VII TRANSPORT DES PHONONS	147
VII.1. RESOLUTION DE L'ETB POUR MODELISER LE TRANSPORT	148
VII.2. MONTE CARLO TRANSPORT DES PHONONS : POPULATIONS TOTALES.....	150
VII.3. MONTE CARLO TRANSPORT DES PHONONS : SUPER–PARTICULES DE DEVIATION, POSITIVES ET NEGATIVES : CONCEPT DE 'NONON'	153
VII.4. MONTE CARLO TRANSPORT DES PHONONS: SUPER–PARTICULES DE DEVIATION.....	157
VII.4.a. Résultats	159
VII.4.a.i. Conductivité thermique en fonction de la température et coefficients de couplage anharmonique.....	159
VII.4.a.ii. Transport à température ambiante et en régime de diffusion	161
VII.4.a.iii. Transport à basses températures et en régime balistique.....	164
VIII CONCLUSION.....	169
BIBLIOGRAPHIE	175

I Introduction

Les phonons sont les quanta d'énergie des modes de vibration du réseau cristallin. Ils constituent les principaux vecteurs de la chaleur dans les semi-conducteurs. Dans le contexte technologique actuel où la miniaturisation, de plus en plus agressive des dimensions des dispositifs électroniques, induit des problèmes d'échauffement majeurs, la modélisation du transport thermique revêt une importance primordiale. A l'échelle microscopique et dans des conditions de transport stationnaire, l'équation de conduction de la chaleur permet d'accéder à la température et de bien décrire le transport. Mais, cette équation n'est plus valable à une échelle de grandeur plus petite.

D'autre part, de nouveaux dispositifs mettent à profit la physique des phonons et il convient de se doter d'outils de modélisation plus sophistiqués. A titre d'exemple on peut évoquer les cellules solaires à porteurs chauds qui représentent une voie novatrice pour la réalisation de dispositifs photovoltaïques, avec des perspectives de rendements de conversion bien supérieurs à ceux des dispositifs classiques.

Approximativement 90 % de l'énergie, incluant l'électricité, dans le monde est généré par des moteurs thermiques qui utilisent la combustion de carburant fossile comme source de chaleur et opèrent typiquement à 30–40 % d'efficacité, induisant ainsi une perte d'approximativement 15 térawatts de chaleur à l'environnement.¹ Des modules thermoélectriques pourront potentiellement convertir une partie de ce gâchis en électricité. L'efficacité de tels dispositifs dépend du facteur de mérite thermoélectrique ZT des matériaux constitutifs. ZT est fonction ZT du coefficient de Seebeck, de la résistivité électrique, de la température absolue et de la conductivité thermique. Les contributions à sont interdépendantes. Des outils de modélisation permettant l'étude de la conductivité thermique et, simultanément, des propriétés électroniques deviennent indispensables.

D'autres applications qui sont en cours de développement, comme par exemple des dispositifs permettant la *Sound Amplification by Stimulated Emission of Radiation* (SASERs), analogue du LASER pour la lumière et qui sont aussi appelés laser sonore. Le SASER permet l'émission d'ondes acoustiques cohérentes. Le champ d'application prévue est assez large, et

s'étale du domaine de l'imagerie médicale non destructive jusqu'à les applications militaires. La modélisation de la physique des phonons est primordiale pour l'émergence et l'optimisation de tels dispositifs.

L'équation de transport de Boltzmann (ETB) permet de décrire le transport des phonons dans l'espace réel, et leur dynamique dans l'espace réciproque. Il s'agit d'une équation intégro-différentielle dont la résolution déterministe est complexe. Une approche numérique alternative, la plus utilisée et la plus perfectionnée pour résoudre l'ETB des porteurs de charges, est la méthode stochastique appelée approche Monte Carlo (MC). Depuis une dizaine d'année des « solveurs » MC dédiés à l'ETB des phonons ont commencé à être développés et publiés.

Néanmoins, jusqu'à ce jour, les solveurs proposés traitent uniquement le transport des phonons sans se soucier des interactions avec les porteurs de charges ou de la dynamique de relaxation des phonons. La quasi-totalité des codes proposés antérieurement à ce travail, utilisent l'approximation du temps de relaxation, qui occulte toute la physique des interactions phonon-phonon ; ces codes s'appuient sur une implémentation très approximative sinon absente des lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, sur des modèles de dispersion linéaires, non réalistes, et négligent le plus souvent les phonons optiques.

La dynamique des réseaux cristallins, est prétendument la plus vieille branche de la physique de l'état solide.² *Planck's Theory of Radiation and the Theory of Specific Heat* a été publiée par Einstein en 1907.³ *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.⁴ D'autres articles précurseurs sur la dynamique des réseaux cristallins incluent ceux de Debye et de Waller sur l'effet de la température sur les diffusions des rayons X par un cristal. Dans les années 1920 Peierls^{5, 6} 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 contribua aussi aux premières publications sur les effets anharmoniques dans l'absorption de radiation infra-rouge par des cristaux ioniques.⁷⁻¹⁰ Le travail mentionné utilise la théorie formelle de dynamique du réseau cristallin pour prendre en compte toutes les propriétés, dont thermiques, des réseaux cristallins.

Ce n'est qu'en 1940 que Kellermann^{11, 12} 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,¹³⁻¹⁵ a probablement constitué la principale impulsion de l'activité florissante sur le sujet de la dynamique des réseaux cristallins dans les années qui suivront.

La théorie formelle de la dynamique des réseaux cristallins dans le cadre de l'approximation harmonique repose désormais sur une fondation solide, largement grâce au travail de Born et de ses collaborateurs, et elle a été formalisée par Maradudin, Montroll et Weiss dans un livre synthétique.¹⁶ L'intérêt de la communauté scientifique s'est accru jusqu'aux années 1990 autour de la physique des réseaux cristallins, comme en atteste l'abondance de travaux pointus, théoriques et expérimentaux, sur les spectres de vibrations cristallines, la théorie des phonons, le transport thermique, et etc. Les méthodes *ab initio* sont devenues le « gagne-pain » de beaucoup pour l'étude théorique des interactions phononiques et de la dispersion des phonons. Mais jusqu'à nos jours, au début de la deuxième décennie du vingt et unième siècle, les approximations de Debye et Einstein pour les spectres de dispersions des phonons, et des approximations éclipsant toutes les propriétés physiques inhérente à l'anharmonicité, sont utilisés pour la résolution de l'ETB. Même les lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, sont encore approximée d'une manière assez grossière.

Le travail de recherche effectué dans le cadre de cette thèse vise à étudier la dynamique ainsi que le transport des phonons en proposant un solveur Monte Carlo dédié à la résolution de l'ETB des phonons, avec des relations de dispersion réalistes prenant en compte tous les modes de polarisations. Une méthode de calcul des taux d'interactions de tous les processus normaux et Umklapp d'interaction à trois phonons, et une mise en oeuvre rigoureuse des lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement.

Les calculs ont été menés en utilisant une approche théorique due à Ridley ne nécessitant qu'un unique paramètre semi-ajustable pour chaque mode de polarisation,

nommément : le coefficient de couplage anharmonique représenté par les constantes de Grüneisen. Les taux d'interactions ainsi calculés ne servent pas uniquement à la résolution de l'ETB pour les phonons, mais permettent aussi une analyse complète des canaux de relaxation des phonons longitudinaux optiques de centre de zone. Ce code qui permet de modéliser le transport de chaleurs et la dynamique des phonons sera couplé à un Monte Carlo dédié aux porteurs, ce qui nous permettra d'étudier la dynamique couplée des phonons et des porteurs de charges au cours d'impulsion laser ultra brèves par exemple.

Notons que tous nos programmes numériques sont codés avec le langage de programmation scientifique « *Fortran 95* », avec une parallélisation de certaines parties des codes grâce à « *Open MP* ». Les codes sont lancés sur des machines sous le système d'exploitation « *Linux* » (« *CentOS* » au début, puis « *openSUSE* »), ou sous « *Windows* » (« *XP* » et « *Windows 7* ») grâce à « *Cygwin* » qui est un simulateur d'environnement « *Linux* ». Le compilateur utilisé dans tous les cas est « *gfortran* ».

I.1. Dynamique des phonons et influence sur la dynamique des porteurs

L'avènement de l'ingénierie phononique, en plus des problèmes d'échauffement thermique dans les composants électroniques qui sont devenues le principal obstacle à la miniaturisation électronique, suscite un intérêt croissant de la part de la communauté depuis dix ans afin de comprendre la dynamique et le transport des phonons.

L'émergence de nouveau dispositif basés sur le contrôle du comportement des phonons s'appuie sur la modification des spectres de dispersion des phonons pour ajuster les interactions phononiques et les propriétés du transport.¹⁷ Cela inclut, par exemple, l'inhibition ou le renforcement de certains types d'interactions des phonons, que ce soit avec d'autres (pseudo-) particules ou d'autres phonons, et l'augmentation ou la diminution de la conductivité thermique du réseau cristallin. Cependant, des lacunes dans notre compréhension et dans une connaissance étendue et approfondie des interactions phonon-phonon, entravent l'efficacité de toute ingénierie phononique.

Tournons-nous maintenant vers le cas spécifique des phonons optiques longitudinaux (LO), qui sont traités extensivement dans la littérature à cause de leur importance dans les interactions porteurs de charges – phonons. Une bibliographie très riche sur les temps de vie expérimentaux des phonons LO¹⁸⁻²⁰ est disponible. Cependant les canaux de relaxation précis de ces phonons LO ne peuvent pas être déterminés expérimentalement, ce qui nous empêche d'accéder à des informations très importantes sur les mécanismes de relaxation anharmonique des phonons LO.

Néanmoins, il existe dans la littérature de nombreuses études théoriques sur les interactions phonon – phonon et les mécanismes de relaxation détaillés des phonons LO.²¹⁻²⁶ Ces travaux réussissent à reproduire remarquablement les propriétés physiques observées expérimentalement ; toutefois, ils considèrent un nombre limité d'interactions possibles et s'appuient sur des approximations contraignantes en utilisant fréquemment l'approximation de temps de relaxation. Cette lourde approximation, éclipse les détails physiques intéressants qui contrôlent les interactions phonon – phonon individuels,^{26, 27} dont la connaissance et la compréhension sont cruciales pour fournir un meilleur aperçu du comportement des phonons.

L'étude de la dynamique couplée des systèmes de porteurs de charges et de phonons suscite un intérêt majeur pour la compréhension théorique mais également pour des applications pratiques ;²⁸ notamment depuis l'avènement de la spectroscopie laser picoseconde et sub-picoseconde. Pour les semi-conducteurs excités par des impulsions lasers de haute intensité, la compréhension de la dynamique hors-équilibre du système de phonons LO est d'une importance cruciale pour la compréhension des dynamiques de relaxation des plasmas d'électrons et de trous chauds.^{29, 30}

Il est bien connu que le processus d'émission de phonons par les porteurs de charges est la principale cause de relaxation des porteurs de charges dans les semi-conducteurs III-V.²⁴ L'évolution du plasma de porteurs de charges vers l'équilibre peut être séparé en deux phases principales : une phase athermique où les porteurs de charges ont des distributions hors-équilibre; et une phase hydrodynamique où les porteurs de charges peuvent être décrits par des températures de quasi-équilibre (différentes pour chaque population). En parallèle de la dynamique des porteurs de charges, on observe aussi un

système de phonons mis hors-équilibre associé à l'émission massive de phonons par les porteurs de charges au cours de leur propre relaxation.

Durant la première centaine de femto-secondes après l'excitation optique, le plasma de porteurs de charges hors-équilibre perd une large partie de son énergie en excès par l'émission de phonons LO. Ce processus favorise les phonons avec des vecteurs d'onde \mathbf{q} de petites valeurs (quelques 10^8 m^{-1}), à cause de la dépendance en $1/q$ de l'élément de matrice du couplage de Fröhlich.³¹ Les processus d'émission peuvent être très rapides, et dans cette phase les canaux de relaxation pour ces phonons générés sont faibles et peu nombreux, en comparaison de leurs processus d'émission ; c'est pourquoi, une distribution fortement non-homogène, appelée « phonons chauds », avec un maximum imposant dans la région $q \approx 0$ apparaît.

L'appellation *phonons chauds* relie métaphoriquement l'augmentation du nombre de phonons à la température.²⁵ Des observations réalisées grâce à la technique de diffusion Raman transitoire (« Transient Raman scattering ») de populations de phonons hors-équilibres ont fournies des preuves de ce phénomène.³²⁻³⁴ Dans la phase ultérieure, quand une distribution de porteurs de charges en quasi-équilibre s'est établie, deux canaux de relaxation pour les phonons LO chauds accumulés devient importants : (i) la réabsorption des phonons LO hors-équilibre par le plasma de porteurs de charges en quasi-équilibre ; (ii) et la relaxation anharmonique des phonons LO chauds vers principalement des phonons acoustiques.³⁵

Il a été suggéré que le premier processus (i) ralentit le refroidissement des températures de quasi-équilibres des porteurs de charges,^{29, 36, 37} expliquant la forte réduction du taux de perte d'énergie des porteurs de charges observée expérimentalement.³⁸⁻⁴⁰ Van Driel⁴¹ a été le premier à suggérer le phénomène de « bottleneck effect » des phonons chauds, *i.e.* la possibilité pour les phonons chauds d'être réabsorbé par les porteurs de charges, réduisant éventuellement ainsi le taux de perte d'énergie des porteurs de charges et influant, de facto, sur les propriétés électroniques. Pötz et Kocevar²⁹ ont suggérés ultérieurement que le taux de ré-absorption des phonons LO par les porteurs de charges peut être plus rapide que le taux de relaxation anharmonique des phonons LO, et c'est ce premier processus qui cause la relaxation rapide de la population de phonons LO chauds vers l'équilibre. On a vu ainsi que la dynamique des phonons influe fortement sur celle des systèmes de porteurs de

charges, et l'importance primordiale de meilleurs outils de modélisation de l'évolution des populations de phonons hors-équilibre pour diverses applications physiques.^{42, 43}

I.2. Transport de la chaleur

L'agressive miniaturisation des dimensions des composants électroniques, couplée à des vitesses de traitement des processeurs de plus en plus rapide, entraîne la génération d'une très grande quantité de chaleur par unité de volume dans ces systèmes électroniques. Les processeurs, de très haute performance, contiennent de nos jours des milliards de transistors intégrés. Ils imposent une dissipation de puissance de l'ordre de la centaine de Wcm^{-1} . La logique CMOS est remarquable car le pic de consommation de tels interrupteurs survient en cours de commutation. Chaque inverseur consomme peu dans l'état « 1 » ou dans l'état « 0 ». Néanmoins la consommation sous le seuil devient problématiques en égard au nombre gigantesque de cellules CMOS utilisées. Le nombre de transistors intégrés à un seul micro-processeur ne cesse d'augmenter drastiquement,⁴⁴ et les taux de dissipation de puissance s'approchent de ceux d'un réacteur nucléaire.^{45, 46} Les problèmes thermiques deviennent ainsi le facteur principal pour la détermination de la performance, fiabilité, et le coût de circuit intégré de haute performance.

La gestion de ces problèmes thermiques sera un des éléments clés pour le développement de micro-processeurs de nouvelle génération, des réseaux intégrés, et d'autres systèmes de grande intégration.⁴⁷ L'impossibilité d'évacuer efficacement la chaleur est actuellement un des obstacles majeurs qui se posent en face de la miniaturisation et le progrès des dispositifs électroniques, optoélectroniques, et des systèmes micro-électromécaniques (MEMS « MicroElectroMechanical Systems »). L'évacuation efficace de la chaleur de tels composants est une tâche dantesque, et le sur-échauffement est une des raisons les plus communes de défaillance des dispositifs.⁴⁸

Le développement de techniques et de stratégies d'évacuation de la chaleur plus efficaces, passe inéluctablement par une meilleure compréhension fondamentale des mécanismes de transport de la chaleur dans les semi-conducteurs. C'est ce point qui suscite un intérêt croissant dans la modélisation du transport de la chaleur dans les semi-conducteurs. Alors que la modélisation du transport des porteurs de charges a subi une

évolution et un progrès très important, ce n'est pas le cas pour le moment pour le transport de la chaleur.

Il existe de nombreux outils de simulation commerciaux pour appréhender le transport thermique. Ils s'appuient sur l'équation de conduction de la chaleur et la loi de Fourier pour modéliser la conduction thermique, et les valeurs de conductivité thermique des matériaux massifs quelle que soit la structure simulée.⁴⁸

La conduction de la chaleur dans les matériaux solides diélectriques cristallins se fait par les vibrations du réseau cristallin. Ces vibrations du réseau cristallin génèrent des ondes progressives de fréquences et vitesses différentes dont le mouvement entraîne la propagation de l'énergie à travers le solide. Du point de vue de la mécanique quantique ces ondes peuvent être interprétées comme des paquets discrets d'énergie appelés phonons.

Le libre parcours moyen des phonons dans les semi-conducteurs à température ambiante dépasse souvent les tailles caractéristiques des dispositifs électroniques modernes. Quand cela arrive, le cas échéant, l'équilibre thermodynamique n'existe plus et ainsi nous avons deux conséquences notables : (i) la loi de Fourier ainsi que l'équation de conduction de la chaleur ne sont plus valables, et (ii) les valeurs de conductivité thermiques des matériaux massifs ne peuvent plus être utilisées pour caractériser les propriétés thermiques du matériau en question. D'où apparaît l'importance du développement de nouveaux outils de simulation du transport thermique prenant en compte ces effets de non-équilibre thermodynamique et permettant une modélisation valide, d'un point de vue physique, des phénomènes et propriétés qui modulent le transport thermique dans les solides.

Deux approches ont été adoptées depuis quelques années pour modéliser le transport hors-équilibre de la chaleur. D'une part les simulations à base de dynamique moléculaire, ou « Molecular Dynamics » (MD) en anglais, et les méthodes se basant sur l'équation de transport de Boltzmann.

I.3. Dynamique Moléculaire

L'état microscopique d'un système peut être spécifié à travers les positions et les quantités de mouvement d'un ensemble de particules, molécules ou atomes. La Dynamique Moléculaire (DM) consiste en l'intégration sur le temps des équations classiques du mouvement de Newton pour ces particules. Dans le cadre de cette méthode, les particules sont traitées comme des sphères dures, interagissant les unes avec les autres à travers une force qui est déterminée par un potentiel interatomique prescrit. Ainsi il est possible de résoudre le problème dynamique des particules sans faire d'approximations.^{48, 49}

Considérons un système de N particules de masse M et de position \mathbf{r}_i . Les lois du mouvement de Newton sont écrites pour chacune des particules selon⁵⁰

$$M \frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2} = \sum_{j, j \neq i}^N \mathbf{F}_{i,j}, \quad (\text{I.3.1})$$

où $\mathbf{F}_{i,j}$ est la force interatomique entre les atomes i et j . En général, l'énergie potentielle dans un tel système peut impliquer des interactions multi-corps. Mais, usuellement on considère uniquement les interactions entre les plus proches voisins. La force est calculée à partir du gradient de l'énergie potentiel interatomique $\phi_{i,j}$, qui est en fonction de la position des atomes, comme suit

$$\mathbf{F}_{i,j} = -\frac{\partial \phi_{i,j}}{\partial \mathbf{r}_i}. \quad (\text{I.3.2})$$

L'approche DM nécessite un potentiel interatomique qui décrit de manière assez pertinente les interactions de forces sous-jacentes. La fidélité du schème dépend de la précision du potentiel interatomique. La nature des potentiels interatomique dépend des propriétés électroniques du matériau et sont usuellement déterminés par des calculs *ab initio* (DM quantique) ou obtenue en supposant une forme fonctionnelle du potentiel et puis en ajustant selon les courbes les paramètres en se basant sur une comparaison entre les propriétés calculées et celles obtenues expérimentalement (DM classique).^{48, 51}

La DM est un outil puissant pour obtenir des informations sur la nature des interactions phononiques dans des situations de non-équilibre assez fort. Elle a aussi été utilisée pour calculé les taux de relaxations pour les interactions phonon – phonon.⁵² Les taux

de relaxation obtenue par les méthodes de DM combinent les processus anharmoniques d'interactions des phonons du troisième, quatrième et d'ordre supérieurs. Cependant, les calculs issues de la DM ne peuvent pas faire la distinction entre les contributions des processus d'interactions Normaux ou Umklapp ou d'autres types d'interactions et ne peuvent donner le détail de quels modes de polarisations sont en train d'interagir.⁵³ Cela occulte également beaucoup d'informations et des propriétés physiques intéressantes liées aux interactions phononiques individuelles.

Pour le Silicium, des potentiels à trois-corps ont été utilisés pour faire des prédictions sur la conductivité thermiques.⁵⁴⁻⁵⁶ Une discussion détaillée sur l'utilisation des calculs de DM pour modéliser le transport des phonons peut être trouvée dans les références 52, 57-59.

La DM est une technique puissante pour modéliser le transport hors-équilibre, elle souffre cependant du fait qu'elle requiert des ressources numériques très importantes que ce soit vis-à-vis des quantités de mémoire ou des temps de calculs. Ces difficultés rendent les simulations DM peu pratiques pour la simulation de dispositifs électroniques. Surtout que le couplage avec des codes MC porteurs de charge serait plus difficile à mettre en œuvre.

I.4. Équation de transport de Boltzmann

L'équation de conduction de la chaleur et la loi de Fourier deviennent déficiente quand le libre parcours moyen des porteurs de la chaleur est de l'ordre de grandeur (ou plus petit) que la taille caractéristique du domaine étudié ou, bien encore, quand les ordres de grandeurs temporelles du problème considéré sont plus petits que les temps de vie des porteurs.^{60, 61} Dans de telles situations, comme l'équilibre thermodynamique local ne peut pas être atteint, l'hypothèse selon laquelle le flux de chaleur est proportionnel au gradient de température devient erronée. L'énergie thermique est véhiculée par les paquets d'onde de phonons, et pour cela la modélisation du transport thermique microscopique est équivalente à la modélisation des paquets d'onde de phonons en déplacement.⁶²

Pour des échelles de grandeur de l'ordre ou supérieures à la longueur d'onde dominante des phonons, les effets ondulatoires peuvent être négligés et la modélisation du

transport thermique peut être mené à partir de paquets d'ondes phononiques. Tant que ces effets ondulatoires peuvent être négligés la modélisation du déplacement des ondes phononiques peut être fait grâce à l'Equation de Transport de Boltzmann (ETB).^{27, 62}

L'ETB a été initialement établie pour décrire le comportement de gaz dilués. Cependant, il a été démontré qu'elle peut être appliquée à un grand nombre de types de particules, comme les électrons, les ions, les phonons, et etc. qui interagissent les unes avec les autres par des forces à courte portée et qui suivent une certaine distribution statistique. L'ETB est fondamentale car elle est valide même à l'échelle microscopique, quand l'équilibre thermodynamique dans l'espace et le temps ne peut pas être défini proprement. Les équations macroscopiques comme la loi de Fourier, la loi d'Ohm, la loi de Fick, et l'équation de conduction de la chaleur peuvent être dérivées de l'ETB dans la limite macroscopique.

Cette équation permet de décrire le transport des phonons dans l'espace réel et la dynamique de ceux-ci dans l'espace réciproque. Elle décrit l'évolution temporelle de la fonction de distribution $f(t, \mathbf{r}, \mathbf{q})$ d'un ensemble de phonons dont le vecteur d'onde est aux alentours de \mathbf{q} et dont la position est dans le voisinage de \mathbf{r} à l'instant t . Cette équation prédit que la variation temporelle de la fonction de distribution des phonons est égale à la somme de toutes les variations induites par les mécanismes faisant varier cette fonction.

L'ETB est aussi une équation fondamentale parce qu'elle est valide même à l'échelle microscopique alors que l'équilibre thermodynamique local dans l'espace et le temps ne peut pas être défini d'une manière appropriée. La forme générale de l'ETB pour les phonons est la suivante

$$\frac{\partial f(t, \mathbf{r}, \mathbf{q})}{\partial t} + \mathbf{v}_g \cdot \nabla_{\mathbf{r}} f(t, \mathbf{r}, \mathbf{q}) = \left. \frac{\partial f(t, \mathbf{r}, \mathbf{q})}{\partial t} \right|_{\text{collisions}}, \quad (\text{I.4.1})$$

où \mathbf{v}_g est la vitesse de groupe des phonons. Le membre de droite de l'équation (I.4.1) est un terme de collision qui représente tous les processus susceptible d'affecter et faire varier la fonction de distribution. Ces collisions sont avec les impuretés, les barrières, les interactions électron-phonon, et tous les autres types d'interactions impliquant un phonon, notamment les interactions phonon–phonon. Ce dernier type de processus est largement reconnu pour être le mécanisme de collision dominant dans les semi-conducteurs III-V à températures ambiantes.⁶³

I.5. Résolution numérique de l'équation de transport de Boltzmann pour les phonons

Dans la littérature deux familles de méthodes numériques sont utilisées pour la résolution de l'ETB : les techniques stochastiques, et les techniques déterministes. L'ETB est une équation intégró-différentielle dont la résolution déterministe est très complexe, surtout si on veut éviter une longue liste d'approximations contraignantes.⁶⁰ La difficulté majeure dans la résolution de l'ETB se situe dans l'expression du terme de collision, dont la forme actuelle est une intégrale dont le calcul est lourd. Cette équation intégró-différentielle possède une solution analytique pour un nombre de cas très limité : un spectre de phonon isotrope et des mécanismes de diffusion qui ne dépendent que de l'orientation relative des phonons qui entrent en collision.^{27, 62}

Les techniques déterministes itératives donnent une solution de l'ETB à travers une procédure récursive et traitent la totalité de la fonction de distribution à chaque pas de la procédure. C'est pour cela qu'elles peuvent être d'une grande utilité quand on traite des phénomènes physiques qui dépendent des détails de la fonction de distribution.

Les méthodes déterministes permettent de résoudre l'ETB comme une équation différentielle partielle. Les résolutions basées sur la méthode des ordonnées discontinues (*Discrete Ordinates Method*) ou la méthode des volumes finies (*Finite Volume Method*) convergent numériquement très rapidement mais possèdent un grand désavantage : elles sont gouvernées par un seul temps de relaxation qui prend en compte tous les types de collisions que peut subir un phonon (interactions anharmoniques, avec les impuretés, et etc.). La règle de Matthiesen, qui assure que l'inverse du terme total de relaxation est la somme des inverses de tous les temps de relaxations associés aux différents mécanismes d'interactions, est utilisée usuellement. Dans le cas de l'ETB et quand on prend l'approximation de temps de relaxation, cela veut dire que tous les différents processus d'interactions tendent à rétablir l'équilibre thermodynamique.

Une méthode alternative pour résoudre l'ETB est la méthode Monte Carlo. Cette dernière est une méthode stochastique et elle est la plus populaire des méthodes numériques pour résoudre l'ETB, du moins pour les porteurs de charges. Elle est, cependant, assez gourmande en temps de calcul parce qu'elle nécessite de suivre un grand nombre de

porteurs d'énergie, mais elle devient très compétitive lorsque la complexité du problème augmente, particulièrement avec des géométries non triviales. La méthode MC est ainsi utile pour calculer le transfert de chaleur dans les dispositifs électroniques de toute forme. De plus, dans cette méthode, les différents mécanismes d'interaction (interactions avec les impuretés, les barrières et les interactions inélastiques) peuvent être traités séparément.⁶⁴

La méthode MC consistant en une simulation directe de la dynamique des porteurs dans le cristal, nous permet d'extraire toutes les informations physiques requises (l'évolution des populations, l'énergie locale, le flux, la conductivité thermique, etc.) alors que la solution de l'équation de transport est en cours de résolution. De plus, elle nous permet de simuler des situations (problèmes, configurations) physiques particulières que nous ne pourrions pas avoir par l'expérience, et même d'étudier des matériaux qui n'existent pas. Cette utilisation de la méthode MC la rapproche d'une approche expérimentale : on parle d'expérience 'simulée' (*computer experiment*).⁶⁵

I.6. La Méthode Monte Carlo pour le transport des Phonons

A aucun endroit de ce manuscrit nous reviendrons sur les concepts de base ou la procédure numérique de la méthode Monte Carlo (MC) qui ont été étudiés et présentés extensivement dans la littérature. Le lecteur est invité à consulter le livre de Jacoboni & Lugli⁶⁵ pour plus de détails. Une connaissance de base de la méthode MC est un préalable à la lecture de la présente synthèse.

Après le développement de la « Direct MC method » par Bird⁶⁶ pour le traitement des gaz dilués dans les années 1960, une méthode MC pour le transport des phonons a été initialement introduite par Klitsner *et al.*⁶⁷ pour modéliser le transport balistique.

Plus tard, en 1994, Peterson⁶⁸ a étendu la procédure MC en utilisant l'approximation de Debye. Le diagramme de dispersion des phonons est supposé isotrope et un seul mode de polarisation de phonon le représente. L'approximation de temps de relaxation (ATR) est utilisée, et un seul temps de vie constant pour tous les phonons est adopté. L'ATR sera utilisée dans la grande majorité des approches MC qui suivront.

Mazumder & Majumdar⁶⁰ en 2001, ont amélioré et complété la technique MC. Pour la première fois la dispersion des phonons est prise en compte, en conservant, toutefois, l'hypothèse de son caractère isotrope. Des temps de vie dépendant du mode de polarisation et de la fréquence sont introduits en utilisant les expressions de Holland.⁶⁹ Seuls les phonons acoustiques sont considérés. De plus, dans ce modèle, les règles de conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie ne sont pas respectées durant les processus d'interaction. Des phonons de simulation (virtuels) sont injectés pour atteindre les densités d'énergies locales qui ne sont pas conservés au cours des mécanismes d'interaction. La procédure d'injection est conçue de sorte à retrouver des distributions de Bose-Einstein pour les phonons. Néanmoins, l'approche de Mazumder & Majumdar⁶⁰ constitue la brique de base de la majorité des approches MC pour les phonons qui ont suivi.

Tout au long de la dernière décennie, des améliorations importantes à l'approche précédente ont été apportées. Chen *et al.*⁶³ ont introduits un algorithme « génétique » pour assurer la conservation de l'énergie au cours des processus d'interaction. Cependant, la conservation de la quantité de mouvement n'est assurée que pour les processus normaux.

En 2005, Lacroix *et al.*⁶⁴ ont introduits une méthode pour le traitement des parcours libres moyens dépendant de la fréquence. Ils ont aussi amélioré la procédure pour la conservation de l'énergie des cellules élémentaires de l'espace réel après la phase d'interaction pour assurer, qu'à l'équilibre thermodynamique, la probabilité de créer un phonon soit égale à la probabilité de l'éliminer, et ainsi garantir des fonctions de distribution d'équilibre en l'absence d'un gradient de température. Les auteurs ont aussi essayé de modélisé la différence entre les processus Normaux et Umklapp.

Jeng *et al.*⁷⁰ ont introduit une méthode pour le traitement efficace de la transmission et de la réflexion des phonons aux interfaces des matériaux et ils ont utilisé cette méthode pour modéliser la conductivité thermique de matériaux composites à base de nano-particules. Hao *et al.*⁷¹ ont développé une formulation des conditions limites périodiques afin d'étudier la conductivité thermique de matériaux périodique nano-poreux en simulant qu'une seule cellule de contrôle.⁷²

Récemment, en 2010, Mittal & Mazumder⁷³ ont publié une version améliorée du modèle initial de Mazumder & Majumdar⁶⁰. Ils ont inclus les phonons optiques, et ils utilisent des expressions plus sophistiqués pour les temps de vie des phonons.

Un des défauts principaux des méthodes MC existantes pour la résolution de l'ETB des phonons, est l'utilisation de l'ATR en lieu et place des taux d'interactions permettant de faire interagir les particules de simulations les unes avec les autres. Aucune garantie des règles de sélection n'est assurée lors des mécanismes d'interaction, et la conservation de l'énergie est approchée (et uniquement approchée !) par des procédures numériques. La conservation de la quantité de mouvement n'est pas assurée d'une manière rigoureuse mais via des approximations. Enfin, les phonons optiques ont été négligés dans la majorité des travaux mentionnés.

Très récemment (août 2011), à la faveur d'une communication privée avec Pascual-Gutiérrez nous avons appris qu'existait dorénavant une méthode MC utilisant la règle d'or de Fermi pour calculer les taux d'interaction des phonons et utilisant ces taux d'interaction pour les mécanismes d'interaction durant la simulation au lieu d'utiliser l'ATR.⁶² Cela autorise une implémentation rigoureuse de la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement. L'auteur utilise cette méthode pour étudier la conductivité thermique dans le Silicium. Cependant, cette approche MC n'a toujours pas été le sujet d'une publication dans la littérature, à notre connaissance.

Notons, que toutes les approches MC mentionnées précédemment portent uniquement sur le transport des phonons et se soucient uniquement des applications thermiques (transport de chaleur). Aucune étude de la dynamique des phonons dans l'espace réciproque n'a été effectuée au préalable à travers la résolution de l'ETB par les techniques MC, pas davantage que la dynamique couplée des phonons et des porteurs de charge.

I.7. Plan de la thèse

Ce manuscrit se divise en huit chapitres. Le premier chapitre est la présente introduction générale dans laquelle nous décrivons le contexte du travail.

Dans le deuxième chapitre (II) un rappel sur la théorie des phonons est donné, en dérivant les équations de mouvement des modes normaux de vibrations dans un cristal harmonique. La quantification de l'énergie de ces modes de vibration en phonons, l'effet de la prise en compte des termes anharmoniques du potentiel cristallin, et enfin le modèle et les relations de dispersion des phonons utilisés dans ce travail de recherche sont abordés.

Le troisième chapitre (III), porte sur les interactions phonon–phonon, avec une explicitation de la théorie généralisée de Ridley qui est retenue pour ce travail, suivie par des exemples de calculs analytiques de temps de relaxation et de taux d'interaction. Le schéma de calcul numérique utilisé pour le calcul des taux d'interaction est présenté ensuite.

Le quatrième chapitre (IV), décrit la méthode Monte Carlo développée dans le cadre de ce travail, avec, notamment le traitement original des super-particules de simulation. Dans ce code les phonons interagissent individuellement les uns avec les autres grâce aux taux d'interactions calculés directement en appliquant la règle d'Or de Fermi. La conservation rigoureuse de l'énergie et les procédures entreprises pour respecter la règle de conservation de la quantité de mouvement sont mises en exergues. Les conditions aux limites, et le calcul du flux, de pseudo-température, et de la conductivité thermique sont ensuite présentés. Le concept de particules de déviation négatives appelées « *nonons* » est développé à la fin.

Le cinquième chapitre (V) voit aborder l'étude de la dynamique des phonons dans l'espace réciproque. Une méthodologie pour ajuster les coefficients de couplage anharmonique, dans le cadre de la théorie de Ridley, est explicitée. La validation des simulations Monte Carlo dans différents matériaux III–V est présentée. Ensuite, une analyse des contributions relatives des canaux de relaxation pour les phonons LO de centre de zone dans les matériaux binaires III–V est entreprise. Enfin une analyse des canaux de relaxation dans les matériaux de la colonne IV (Si et Ge) termine ce chapitre.

Le sixième chapitre (VI) porte sur la dynamique couplée phonon – électron. Tout d'abord il y a un rappel du couplage qui existe entre la dynamique des phonons et celle des électrons avec en exemple : l'effet *bottleneck* des phonons chauds. Le code MC porteurs de charge et le couplage de ce code avec le code MC phonons est présenté. Des exemples d'applications de ce couplage dans l'Arséniure de Gallium sont illustrés.

Le septième chapitre (VII) constitue une synthèse du travail sur le transport des phonons dans l'espace réel. Trois versions différentes de solveurs MC de l'ETB dans l'espace réel et l'espace réciproque simultanément sont présentées. Des résultats préliminaires issus de la version de solveurs MC avec simulation de particules de déviation, sont ensuite donnés à travers des calculs de conductivité thermique, et de profils de températures en régime de diffusion, et des profils d'énergies en régime balistique.

Dans le chapitre VIII, qui constitue la conclusion de ce manuscrit, une synthèse des différentes facettes de ce travail est proposée. Les améliorations envisagées ainsi que les perspectives sont abordées.

II Théorie des phonons : Rappel



ans ce chapitre nous faisons un rappel théorique sur les modes de vibrations des réseaux cristallins, et les quanta d'énergie de ces vibrations qui sont les phonons. Nous commençons par établir les équations du mouvement des atomes d'un réseau unidimensionnel, puis d'un réseau tridimensionnel qui s'apparente au réseau cristallin. La quantification de l'énergie des vibrations cristallines est ensuite introduite. Nous abordons enfin l'anharmonicité du potentiel cristallin et le couplage anharmonique entre les modes propres de vibrations harmoniques menant aux interactions phonon–phonon.

Nous terminons par une présentation des relations de dispersion des modes de vibrations, et du modèle de dispersion que nous avons adopté dans ce travail. Nous illustrons à l'aide des relations de dispersion de chacun des matériaux envisagés dans le cadre de cette thèse.

II.1.a. Modes Normaux de vibrations des réseaux cristallins

Dans un modèle parfait du réseau cristallin, on suppose que les atomes (ou les ions) sont fixes sur les sites du réseau cristallin. Cette approximation de la configuration réelle peut être considérée comme valide à température nulle. A température non nulle, chaque ion possède une certaine énergie thermique et par conséquent présente un certain mouvement autour de sa position d'équilibre. Même à température nulle, les ions ne peuvent être immobiles (relation d'incertitude d'Heisenberg). Intéressons-nous maintenant aux vibrations du réseau cristallin.

Considérons l'énergie potentielle totale d'un cristal en fonction des potentiels interatomiques. Alors que pour les métaux simples et les gaz nobles, les potentiels interatomiques peuvent être raisonnablement bien décrits à partir d'interaction à deux corps (entre paires d'atomes). Pour les cristaux fortement covalents, la prise en compte d'interactions à trois-corps (au moins) devient nécessaire. Néanmoins les interactions multi-corps peuvent être simplifiées à des contributions impliquant des sommes d'interactions à

deux corps.⁷⁴ Pour la discussion présente, on se limitera alors aux interactions à deux corps. Nous supposons qu'une paire d'atomes séparés par \mathbf{r} ajoute une contribution $\phi(\mathbf{r})$ à l'énergie potentielle du cristal. L'énergie potentielle totale du cristal est égale simplement à la somme des contributions de toutes les paires distinctes d'atome. Si nous tenons compte du fait que l'atome dont la position moyenne est \mathbf{R} se trouve, de manière générale, dans une position

$$\mathbf{r}(\mathbf{R}) = \mathbf{R} + \mathbf{u}(\mathbf{R}), \quad (\text{II.1.1})$$

où $\mathbf{u}(\mathbf{R})$ est la déviation par rapport à l'équilibre de l'ion dont le site est \mathbf{R} , nous pouvons alors écrire l'énergie potentielle totale du cristal comme

$$U = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{R}, \mathbf{R}'} \phi(\mathbf{R} - \mathbf{R}' + \mathbf{u}(\mathbf{R}) - \mathbf{u}(\mathbf{R}')). \quad (\text{II.1.2})$$

Supposant que les atomes ne dévient pas de manière importante de leurs positions d'équilibres, ce qui est fondé, car les amplitudes des vibrations restent petites comparées à la distance moyenne séparant les ions, même à des températures approchant la température de liquéfaction,⁷⁵ nous pouvons faire un développement en série de Taylor de l'énergie potentielle autour de sa valeur d'équilibre en fonction des petits déplacements

$$\begin{aligned} U = & \frac{N}{2} \sum \phi(\mathbf{R}) + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{R}, \mathbf{R}'} (\mathbf{u}(\mathbf{R}) - \mathbf{u}(\mathbf{R}')) \cdot \nabla \phi(\mathbf{R} - \mathbf{R}') + \\ & \frac{1}{4} \sum_{\mathbf{R}, \mathbf{R}'} [(\mathbf{u}(\mathbf{R}) - \mathbf{u}(\mathbf{R}')) \cdot \nabla]^2 \phi(\mathbf{R} - \mathbf{R}') + O(u^3). \end{aligned} \quad (\text{II.1.3})$$

Le terme linéaire dans (II.1.3) est nulle, puisque l'énergie potentielle est minimale à l'équilibre. La dérivée première par rapport aux déplacements s'annule. La première correction non nulle à l'énergie potentielle est donnée par le terme quadratique. Dans le cadre de l'approximation harmonique, seul ce terme quadratique est retenu. Cette hypothèse revient à considérer que la force, s'appliquant sur un atome, est linéairement proportionnelle au déplacement par rapport à sa position d'équilibre. Le premier terme de la partie droite de l'équation (II.1.3) est une constante donnant l'énergie potentielle d'équilibre et il n'est pas important pour des problèmes d'aspect dynamique.

II.1.b. Chaîne linéaire diatomique

Pour décrire simplement les vibrations du réseau cristallin (recherche des modes normaux de vibrations) dans le cadre de l'approximation harmonique, nous nous limitons, dans un premier temps, au cas d'une chaîne linéaire diatomique.

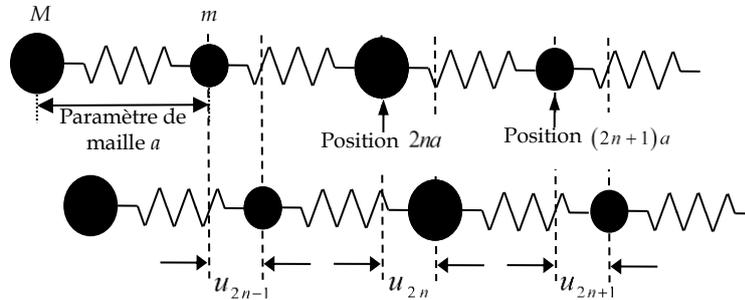


Figure 1. Chaîne linéaire diatomique.

Considérons une chaîne linéaire d'ions de masses M et m , avec $m < M$ séparés par une distance a , comme on peut voir sur la Figure 1. Les deux ions M et m forment une maille primitive avec un paramètre de maille égale à a . Pour simplifier, nous supposons que seuls les ions voisins interagissent. K désigne la constante de force qu'exerce le plus proche voisin de l'ion considéré, et supposons que la force entre deux ions séparés par plus qu'un paramètre de maille a est nulle. Si la chaîne d'ions est infiniment longue, n'importe lequel des ions peut être considéré comme l'origine. Ainsi nous pouvons supposer, par simplicité, que les positions d'équilibre des ions de masse M sont $2na$ et ceux des ions de masse m sont $(2n+1)a$. Les déplacements des ions par rapport à leurs positions d'équilibres sont exprimés respectivement comme u_{2n} et u_{2n+1} . Ainsi en utilisant la relation fondamentale de la dynamique et la loi de Hooke, les équations de mouvement peuvent s'écrire :

$$M \frac{d^2 u_{2n}}{dt^2} = K [u_{2n+1} - 2u_{2n} + u_{2n-1}], \quad (\text{II.1.4})$$

$$m \frac{d^2 u_{2n+1}}{dt^2} = K [u_{2n+2} - 2u_{2n+1} + u_{2n}]. \quad (\text{II.1.5})$$

Ce sont spécifiquement les équations qu'il faudrait résoudre si chaque ion était lié à ses voisins par un ressort de masse nulle et de raideur K . Ainsi un réseau cristallin peut être considéré comme un arrangement tridimensionnel de masses reliées entre elles par des

ressorts et vibrant autour de leurs positions d'équilibres. Les masses représentent alors les atomes et les ressorts représentent les forces interatomiques reliant les atomes du réseau cristallin.

Revenons à notre chaîne linéaire (unidimensionnelle). Nous recherchons des solutions sous forme d'ondes planes de la forme :

$$u_{2n} = A \exp[i(2n\mathbf{q}a + \omega t)], \quad (\text{II.1.6})$$

$$u_{2n+1} = B \exp[i((2n+1)\mathbf{q}a + \omega t)], \quad (\text{II.1.7})$$

avec A et B les amplitudes, \mathbf{q} est le vecteur d'onde relié à la longueur d'onde par $|\mathbf{q}| = q = 2\pi / \lambda$.

Si on considère une chaîne contenant un nombre fini N d'ions, alors on doit spécifier comment traiter les ions localisés aux extrémités. La condition aux limites périodiques de Born-von Karman constitue le choix le plus pratique et le plus utilisé. Elle consiste à relier les deux extrémités de la chaîne par un ressort supplémentaire de raideur K identique à celles des autres ressorts. Cela se traduit par $u_0 = u_N$, et donc la condition aux limites exige que

$$e^{iqNa} = 1, \quad (\text{II.1.8})$$

ce qui impose que q soit de la forme :

$$q = \frac{2\pi n}{a N}, \quad (\text{II.1.9})$$

avec n un nombre entier. Ainsi il y a exactement N valeurs distinctes de q .

En remplaçant (II.1.6) et (II.1.7) dans (II.1.4) et (II.1.5) respectivement, nous obtenons

$$\begin{cases} (M\omega^2 - 2K)A + (2K \cos(qa))B = 0 \\ (2K \cos(qa))A + (m\omega^2 - 2K)B = 0 \end{cases} \quad (\text{II.1.10})$$

Une solution non triviale du système d'équations homogènes (II.1.10) existe si et seulement si le déterminant est nul, *i.e.*,

$$\begin{vmatrix} M\omega^2 - 2K & 2K \cos(qa) \\ 2K \cos(qa) & m\omega^2 - 2K \end{vmatrix} = 0. \quad (\text{II.1.11})$$

Ainsi on peut trouver deux solutions non nulles de (II.1.11) comme

$$\omega_{\pm}^2 = K \left[\left(\frac{1}{m} + \frac{1}{M} \right) \pm \sqrt{\left(\frac{1}{m} + \frac{1}{M} \right)^2 - \frac{4}{mM} \sin^2(qa)} \right]. \quad (\text{II.1.12})$$

Les deux valeurs possibles de l'élément de droite de l'équation (II.1.12) sont toujours positives, et si seules des solutions positives de ω^2 sont permises, il existe deux valeurs de ω pour chaque vecteurs d'onde \mathbf{q} , donc on a un total de $2N$ modes normaux, correspondant aux $2N$ degrés de liberté.

Si la fréquence angulaire ω est tracée en fonction du vecteur d'onde \mathbf{q} , on obtient deux branches de courbe $\omega(\mathbf{q})$, qui sont usuellement appelées branche acoustique et branche optique (nous verrons plus loin pourquoi) et elles sont tracées en Figure 2.

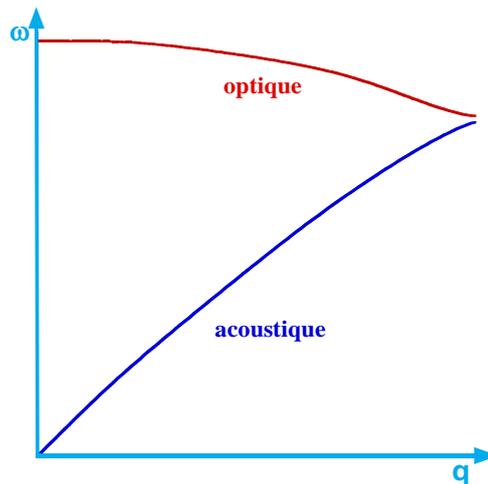


Figure 2. Diagramme de dispersion unidimensionnel

La vitesse de groupe est définie comme le gradient de la fréquence angulaire par rapport au vecteur d'onde. C'est la vitesse de propagation de l'énergie dans le milieu, qui s'exprime alors comme

$$\mathbf{v}_g = \nabla_{\mathbf{q}} \omega. \quad (\text{II.1.13})$$

II.1.c. Réseau tridimensionnel

Dans le cas tridimensionnel, le traitement relève d'une approche matricielle en exprimant la partie harmonique du potentiel cristallin comme

$$U^{harm} = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{R}, \mathbf{R}'} \mathbf{u}(\mathbf{R}) \mathbf{D}(\mathbf{R} - \mathbf{R}') \mathbf{u}(\mathbf{R}'), \quad (\text{II.1.14})$$

où $\mathbf{D}(\mathbf{R} - \mathbf{R}')$ est une matrice constituée par les potentiels interatomiques. Nous avons $3N$ équations du mouvement (une pour chacune des trois composantes des déplacements des N ions de masse M) qui s'exprimeront de manière similaire au cas de la chaîne diatomique présenté ci-avant. Comme dans le cas unidimensionnel nous recherchons des solutions des équations du mouvement sous la forme d'ondes planes simples

$$\mathbf{u}(\mathbf{R}, t) = \boldsymbol{\varepsilon} \exp(i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{R} - \omega t)), \quad (\text{II.1.15})$$

avec $\boldsymbol{\varepsilon}$ un vecteur à déterminer qui décrit la direction dans laquelle les ions se déplacent. Il est appelé vecteur de polarisation du mode normal.

En remplaçant (II.1.15) dans les $3N$ équations de mouvement nous trouvons une solution chaque fois que $\boldsymbol{\varepsilon}$ est un vecteur propre du problème aux valeurs propres à trois-dimension :

$$M\omega^2 \boldsymbol{\varepsilon} = \mathbf{D}(\mathbf{q}) \boldsymbol{\varepsilon}, \quad (\text{II.1.16})$$

avec $\mathbf{D}(\mathbf{q}) = \sum_{\mathbf{R}} \mathbf{D}(\mathbf{R}) \exp(-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R})$ et appelée matrice dynamique.

Il existe trois solutions de (II.1.16) pour chacune des N valeurs permises de \mathbf{q} , ce qui nous donnent $3N$ modes normaux de vibrations. Nous avons vu dans le cas unidimensionnel avec une chaîne diatomique que nous avons obtenus deux types de branche de vibrations. L'introduction d'un motif dans le cas tridimensionnel aura pour effet de généré $3p$ branches de vibrations, p étant le nombre d'ions par maille primitive. Ainsi il y a $3p - 3$ modes de vibrations qui s'ajoutent aux 3 modes de vibrations acoustiques correspondant à chacune des valeurs permises de \mathbf{q} que nous trouvons dans le cas monoatomique. Nous retrouvons ainsi les deux types de branches de vibrations, acoustique et optique, rencontrés dans le cas unidimensionnel diatomique.

Dans la région des petits vecteurs d'onde pour les branches de faible énergie de vibration, les atomes d'une même maille se déplacent en phase, et cela est caractéristique des ondes sonores, d'où l'appellation branche acoustique. Alors que, dans la région des petits vecteurs d'onde pour les branches de grande énergie, si un cristal a deux atomes par maille primitive, ils bougent en opposition de phase, et si ces deux atomes ont des charges

opposées, ce mode de vibration peut être excité par un champ électromagnétique. Notamment, dans le cas des cristaux ioniques cela correspond au champ électromagnétique associé aux longueurs d'onde infrarouge, d'où l'appellation branche optique.

II.2. Quantification de l'énergie : Phonon

Dans le cadre de la théorie quantique du cristal harmonique, un cristal avec N ions est considéré comme $3N$ oscillateurs harmoniques indépendants, dont les fréquences sont celles des $3N$ modes normaux classiques que nous trouvons dans le cadre de la théorie classique. Cela facilite la prise en compte de la quantification car le traitement de l'oscillateur harmonique relève des bases de la physique quantique. Par analogie, nous pouvons dire que l'énergie totale du cristal est quantifiée. L'énergie totale du cristal s'écrit alors comme

$$E = \sum_{\mathbf{q},p} \left(n_p(\mathbf{q}) + \frac{1}{2} \right) \hbar \omega_p(\mathbf{q}) \quad (\text{II.2.1})$$

avec E étant définie comme la somme de toutes les énergies des modes normaux individuels. Avec $\left(n_p(\mathbf{q}) + \frac{1}{2} \right) \hbar \omega_p(\mathbf{q})$ la contribution à l'énergie totale d'un mode normal particulier \mathbf{q}, p dont la fréquence angulaire (ou pulsation) est $\omega_p(\mathbf{q})$ avec p un entier définissant le mode de polarisation, et $n_p(\mathbf{q})$ le nombre d'excitations du mode normal restreint à des valeurs entières positives.

Le quantum d'énergie $\hbar \omega_p(\mathbf{q})$ est associé à une particule élémentaire appelée *phonon*, cette appellation a été proposée en premier par J. Frenkel en 1932.²⁷ Cela par analogie avec les photons qui sont les quanta d'énergie du champ électromagnétique. Ainsi au lieu de dire que le mode normal de la branche de polarisation p de vecteur d'onde \mathbf{q} est dans son $n_{\mathbf{q},p}^e$ état excité, on dit qu'il y a $n_{\mathbf{q},p}$ phonons de type p et de vecteur d'onde \mathbf{q} présents dans le cristal. Notons que, dans le cadre de l'approximation harmonique nous avons l'image physique de phonons qui n'interagissent pas entre eux dans un cristal.

D'autre part, comme le concept de phonon vient du mouvement relatif des atomes plutôt que du mouvement de leur centre de masse, un phonon n'a pas de quantité de mouvement. Néanmoins, pour des raisons pragmatiques on attribue une quantité de

mouvement $\hbar\mathbf{q}$ à un phonon dont le vecteur d'onde est \mathbf{q} . Ainsi un phonon est assimilé à une « quasi-particule », ou « pseudo-particule ».

II.3. Anharmonicité

Dans un cristal parfait et dans le cadre de l'approximation harmonique, les phonons sont considérés comme des particules indépendantes qui n'interagissent pas les unes avec les autres. Cependant, les forces interatomiques ne sont pas purement harmoniques et quand nous prenons en compte les termes d'ordre supérieur à deux dans le potentiel du cristal, l'anharmonicité se révèle. Celle-ci induit des couplages entre les phonons du cristal harmonique, qui augmentent avec la température.

L'anharmonicité est uniquement une petite proportion de l'Hamiltonien total du cristal. Le point de vue généralement adopté dans l'étude de l'anharmonicité est de considérer les corrections anharmoniques à l'Hamiltonien harmonique, comme des petites perturbations induisant des transitions entre les états propres stationnaires de l'Hamiltonien harmonique, ce qui conduit à la création, l'annihilation ou à la diffusion de phonons. Usuellement, on considère uniquement le plus faible ordre d'anharmonicité, *i.e.*, la partie anharmonique cubique, en négligeant tous les termes d'ordres supérieurs du potentiel cristallin.^{24, 25, 73, 76} Ainsi en appliquant la théorie des perturbations dépendantes du temps, on peut exprimer l'Hamiltonien du cristal comme la somme d'un Hamiltonien H_0 non perturbé, et d'une petite perturbation H_p comme

$$H = H_0 + H_p. \quad (\text{II.3.1})$$

Ensuite, on peut obtenir les taux d'interactions entre états stationnaires en utilisant la Règle d'Or de Fermi qui donne ainsi

$$W = \frac{2\pi}{\hbar} \int |\langle f | H_p | i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i) dN_f, \quad (\text{II.3.2})$$

où \hbar est la constante de Planck réduite, $|i\rangle$ ($|f\rangle$) est l'état initial (final) du système à trois-phonons, E_i (E_f) est l'énergie initiale (finale), et N_f est le nombre d'états finaux.

Cependant, la principale difficulté théorique réside dans la manière de traiter l'effet de couplage anharmonique pour obtenir l'Hamiltonien de perturbation. Nous avons choisi d'utiliser ce que nous appelons la théorie généralisée de Ridley qui nous donne une méthode simple et fiable pour exprimer l'effet du couplage anharmonique. La théorie généralisée de Ridley pour le calcul des taux d'interaction phonon-phonon sera développée dans le chapitre III de cette thèse, nous donnons aussi le schéma adopté pour le calcul numérique des taux d'interaction.

II.4. Relations de dispersion

Les matériaux que nous étudions dans le cadre de ce travail de recherche sont des matériaux semi-conducteurs appartenant à la colonne IV ou des composés des colonnes III et V. Notons que nous utilisons l'approximation d'un cristal isotrope dans tous les cas.

Les matériaux III-V sont tous des semi-conducteurs polaires avec une structure cristalline zinc-blende (*i.e.* le réseau est cubique à face centrée (CFC)), et ils possèdent deux atomes différents par maille élémentaire. Ainsi il y a six modes de polarisation différents des phonons : deux transverses acoustiques (TA), un longitudinal acoustique (LA), deux transverses optiques (TO) et un longitudinal optique (LO). Ces matériaux polaires ayant une structure zinc-blende n'ont pas de centre d'inversion, et donc les branches optiques ne sont pas dégénérées en centre de zone.

Les relations de dispersion des phonons sont ajustées grâce à des fonctions polynomiales, à partir de mesures expérimentales le long de la direction de haute symétrie $[\zeta 00]$ entre les points critiques Γ et X , dans GaAs,⁷⁷ InAs,⁷⁸ GaSb^{79, 80} et InP.⁸¹ Les diagrammes de dispersion de ces matériaux sont montrés sur la Figure 3.

Les relations de dispersion ont été ajustées avec des fonctions polynomiales dont l'ordre peut arriver jusqu'à neuf. Cela rajoute de la complexité après dans le traitement de ces relations, mais cela émane de notre volonté d'approcher le plus possible les vraies relations de dispersions expérimentales. A cette fin, nous avons utilisés le module *Curve Fitting Toolbox 1.1* © 2001-2002 *The Mathworks, Inc.* Nous sommes aussi reconnaissants à N. Zerounian de nous avoir fourni une routine pour extraction de points à partir de figure sous

MATLAB®. Celle-là a été utilisée pour extraire des données des diagrammes de dispersion donnés par les auteurs mentionnés précédemment quand ils ne fournissaient pas une liste exhaustive de points de mesures.

La même procédure décrite précédemment est utilisée pour ajuster les relations de dispersion à partir de mesures expérimentales dans le Si⁸² et le Ge,⁸³ leurs relations de dispersion sont tracées en Figure 3. Ce sont deux matériaux de la colonne IV possédant une structure cristalline de type diamant (réseau CFC avec centre d'inversion), avec deux atomes identiques par maille élémentaire. Ainsi, tout comme pour les matériaux de structure zinc-blende il y a six modes de polarisation différents des phonons : deux TA, un LA, deux TO et un LO. Ces matériaux qui ont la structure diamant et deux atomes identiques par maille élémentaire possèdent un centre d'inversion, et donc les branches optiques sont dégénérées en centre de zone.

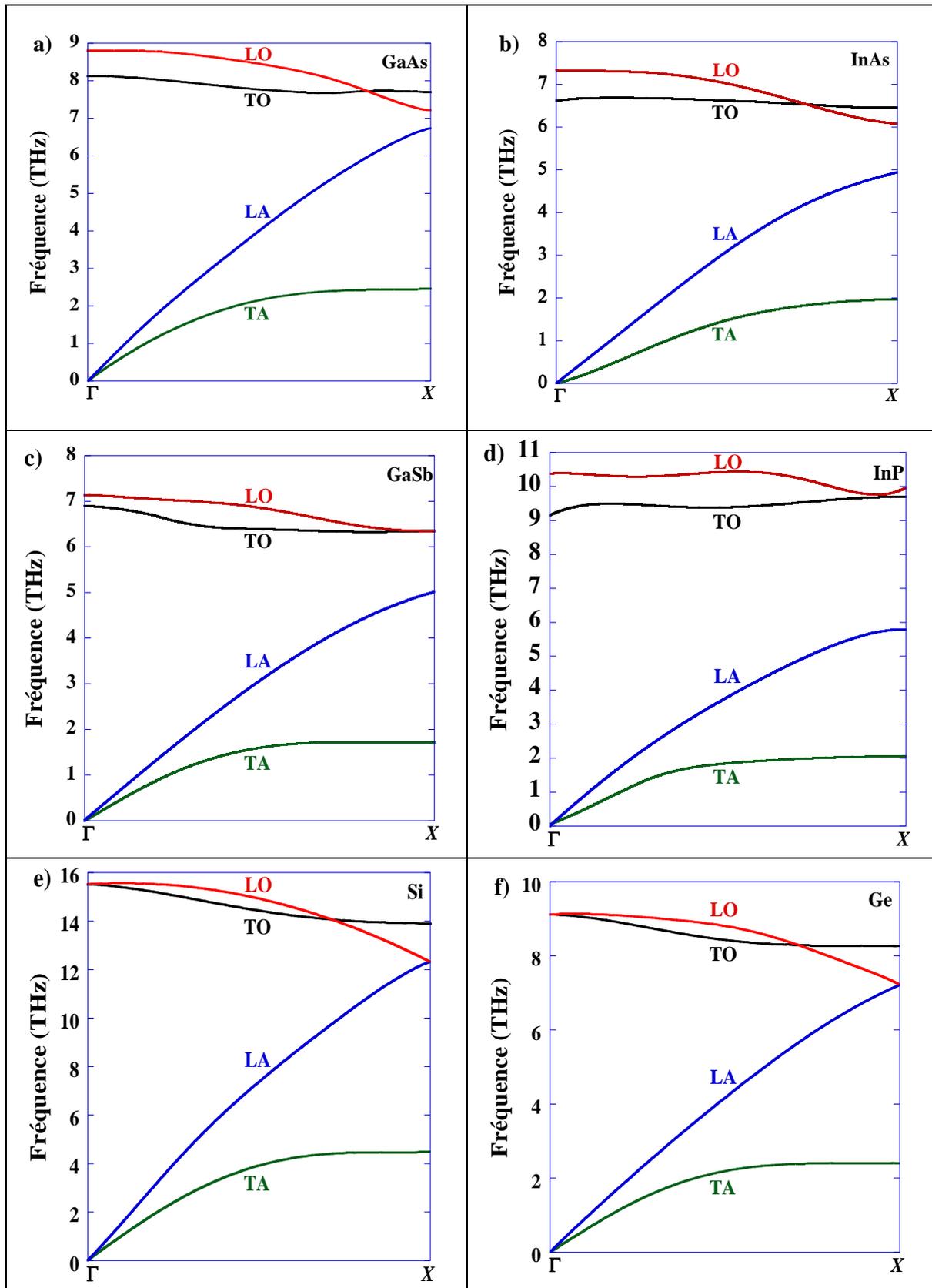
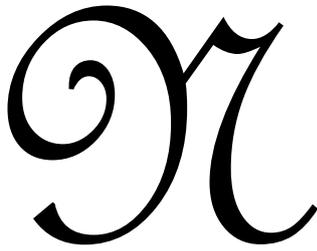


Figure 3. Diagrammes de dispersion des phonons dans : a) GaAs, b) InAs, c) GaSb, d) InP, e) Si, et f) Ge. Relations de dispersions ajustées à partir de mesures expérimentales de : a) Strauch & Dorner,⁷⁷ b) Orlova,⁷⁸ c) Farr *et al.* et Hass & Hennis,^{79, 80} et d) Borchers *et al.*⁸¹, e) Dolling,⁸² et f) Weber.⁸³

III Interactions phonon—phonon



ous présentons ici la théorie généralisée de Ridley pour le calcul des taux d'interaction phonon—phonon. Ridley,²³ en s'inspirant de Klemens²¹ qui lui-même avait repris les travaux de Peierls,⁸⁴ utilise une approche simplifiée pour établir l'Hamiltonien de perturbation dans le cadre de la théorie des perturbations dépendantes du temps et pour exprimer l'effet du couplage anharmonique. Un unique paramètre ajustable est utilisé : les constantes de Grüneisen ou plus officiellement les coefficients de couplages anharmoniques.

Nous commençons par l'établissement de la théorie généralisée de Ridley, en précisant les règles de sélections et donnons les expressions généralisées des taux d'interaction à trois-phonons. Puis, nous présentons le concept de temps de vie. Ensuite, des calculs analytiques sont explicités pour aider le lecteur à y voir plus clair dans le détail du calcul des taux d'interaction et du temps de vie, et nous achevons en soulignant le caractère indispensable du calcul numérique. La procédure utilisée pour effectuer les calculs numériques est présentée dans la dernière section de ce chapitre.

III.1. Etablissement de la théorie généralisée de Ridley

Il est nécessaire de disposer d'un modèle pour le couplage anharmonique afin d'explicitier un Hamiltonien de perturbation utilisé dans le cadre de la règle d'or de Fermi. Un modèle des effets anharmoniques suppose une connaissance de la variation de la force de rappel sur un atome du solide avec le déplacement de l'atome hors de sa position d'équilibre. La principale contribution à cette force est harmonique et est directement proportionnelle au déplacement. Les contributions anharmoniques sont beaucoup plus faibles, mais il est nécessaire de les connaître avec une grande précision, car elles donnent lieu aux interactions phonon—phonon.

Ces contributions peuvent être obtenues théoriquement à partir de calculs de type *ab initio* qui sont assez complexes à mettre en œuvre et ne relèvent pas du cadre de cette

thèse. On peut également essayer d'obtenir ces contributions anharmoniques à partir de mesures.

La plus appropriée des démarches physiques pour décrire le couplage anharmonique est de revenir aux relations reliant les composantes du tenseur de contraintes (*stress*) appliqué au cristal et les composantes du tenseur de déformation (*strain*) en résultant. Ces relations impliquent les constantes élastiques du cristal. Si on interroge leur signification physique à une échelle atomique, il est clair que si les forces de rappel sur un atome étaient proportionnelles à la déformation, *i.e.*, si les forces étaient harmoniques, alors les constantes élastiques seraient vraiment des constantes et seraient indépendantes de la contrainte.⁷⁵

Cela est effectivement le cas jusqu'à une précision suffisante pour beaucoup d'applications, quand la déformation est petite. Cependant, dans les cristaux réels, pour des déformations plus grandes, les contributions anharmoniques deviennent appréciables et on s'éloigne d'un comportement élastique représenté par la loi de Hooke, qui lie linéairement la contrainte et la déformation. Ainsi, pour de grandes déformations, les « constantes » élastiques du cristal ne sont plus des constantes, mais elles varient avec la déformation.

Les paramètres qui décrivent cette variation sont appelés les constantes élastiques du troisième ordre. Puisque les propriétés élastiques des solides peuvent être mesurées assez précisément, il paraît possible en principe de déterminer les constantes élastiques de troisième ordre avec une assez grande précision afin de permettre l'obtention des contributions anharmoniques aux forces interatomiques.

Une telle procédure mènerait à l'obtention d'une théorie des vibrations cristallines satisfaisantes. Malheureusement, on ne dispose que d'estimations des constantes élastiques du troisième ordre pour quelques matériaux, et les mesures nécessaires ne sont pas faites avec la précision requise pour la vaste majorité des solides.⁷⁵

En absence de telles informations directes, on peut relier les effets anharmoniques à la variation de la dilatation thermique du solide avec la température. En effet, cette dernière propriété dépend des contributions anharmoniques aux forces interatomiques, puisqu'une partie de l'énergie prise en chauffant un solide (avec l'augmentation de la température) est

emmagasinée sous forme d'une augmentation de l'énergie potentielle qui résulte du changement de la distance entre les atomes du réseau cristallin.

Après de lourdes simplifications théoriques, l'effet des forces anharmoniques peut être décrit en fonction d'un seul paramètre appelé constante de Grüneisen.⁷⁵ Il faut garder à l'esprit pour ce qui suit, que les théories développés en utilisant uniquement le paramètre de Grüneisen pour estimer l'effet des forces anharmoniques ne sont pas très fiables sur le plan quantitatif. Nous considérons ce niveau d'approximation satisfaisant car nous visons des modélisations numériques. Une modélisation constitue une représentation simplifiée de la réalité physique.

Les constantes de Grüneisen γ_i peuvent être obtenues à partir de la dilatation thermique du cristal.^{25, 85} Elles sont définies comme l'opposé de la dérivée logarithmique de la fréquence du mode normal i par rapport au volume du cristal. Une constante de Grüneisen global peut être définie comme la moyenne pondérée γ_G du paramètre γ_i , dans laquelle la contribution de chaque mode normal est pondérée par sa participation à la chaleur spécifique,⁸⁵ on a en fait

$$\gamma_i = -\frac{\partial(\ln \omega_i(q))}{\partial(\ln V)}, \quad (\text{III.1.1})$$

et ainsi

$$\gamma_G = \frac{\sum_{q,i} \gamma_i c_{vi}(q)}{\sum_{q,i} c_{vi}(q)}, \quad (\text{III.1.2})$$

avec c_{vi} la contribution du mode normal i à la chaleur spécifique, définie comme suit

$$c_{vi}(q) = \frac{\hbar \omega_i(q)}{V} \frac{\partial}{\partial T} \bar{n}_i(q), \quad (\text{III.1.3})$$

où \bar{n}_i est la distribution de Bose-Einstein.

Ridley,^{23, 25} suivant Klemens,^{21, 22} a proposé une manière simple pour exprimer l'effet de l'anharmonicité, en la reliant uniquement aux changements des fréquences de vibrations, *via* les constantes de Grüneisen. Ainsi, Ridley exprime le changement fractionnel de fréquence avec l'anharmonicité comme suit, pour les modes acoustiques :

$$\left(\frac{\delta\omega}{\omega} \right)_{ac} = i\gamma qu, \quad (\text{III.1.4})$$

où γ est la constante de Grüneisen du mode acoustique en question, q l'amplitude du vecteur d'onde et u l'amplitude du vecteur déplacement.

Pour les modes optiques :

$$\left(\frac{\delta\omega}{\omega} \right)_{op} = \Gamma u, \quad (\text{III.1.5})$$

où Γ est l'équivalent optique du facteur de Grüneisen, et les deux constantes peuvent être reliés, d'après Ridley, par

$$\begin{cases} \Gamma \sim \gamma q \\ q \sim 2\pi / a_0 \end{cases}, \quad (\text{III.1.6})$$

avec a_0 comme le paramètre de maille du cristal.

Notons, qu'en pratique, les constantes de Grüneisen des modes acoustiques et optiques, sont considérées comme des paramètres phénoménologiques à ajuster sur l'expérience.²⁵ Un modèle numérique n'est jamais parfait, et il est fréquent de devoir ajuster un paramètre du modèle pour confronter notre représentation aux mesures expérimentales.

Ces constantes de Grüneisen représentant les paramètres de couplages anharmoniques constituent les seules paramètres ajustables de notre approche. Nous développerons dans les sections V.1 et VII.4.a.i les méthodologies adoptées dans le cadre de ce travail de recherche pour ajuster ces coefficients.

Ayant ainsi exprimé l'effet de l'anharmonicité, l'Hamiltonien de perturbation du troisième ordre des vibrations du cristal est pris, d'après Klemens²² et Ridley & Gupta,²³ comme étant égal à

$$H_p = \sum_{\mathbf{r},i,j} M_i^{1/2} \omega_i M_j^{1/2} \omega_j \left(\frac{\delta\omega_i}{\omega_i} + \frac{\delta\omega_j}{\omega_j} \right) \mathbf{u}_i \cdot \mathbf{u}_j, \quad (\text{III.1.7})$$

où la somme porte sur tous les sites du réseau cristallin (les vecteurs de déplacements dans la somme dépendent de \mathbf{r}) et sur tous les modes de vibrations i et j participant au processus d'interaction du mode promoteur k , et les \mathbf{u} sont les vecteurs de déplacements qui s'écrivent comme

$$\mathbf{u}_{k,i,j} = \sum \sqrt{\frac{\hbar}{2NM_{k,i,j}\omega_{k,i,j}}} \left(\boldsymbol{\varepsilon}_{k,i,j} a_{q_{k,i,j}} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} + \boldsymbol{\varepsilon}_{k,i,j}^* a_{q_{k,i,j}}^\dagger e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \right), \quad (\text{III.1.8})$$

où N est le nombre de mailles primitives, M la masse de l'oscillateur, ω la fréquence angulaire, \mathbf{q} le vecteur d'onde, $\boldsymbol{\varepsilon}$ un vecteur de polarisation unitaire, et a, a^\dagger les opérateurs bosoniques usuels d'annihilation et de création.

Enfin, si nous prenons $M_i = M_j = M$ et nous utilisons (III.1.5), (III.1.7) devient

$$H_p = 2\Gamma \sum_{r,i,j} M \omega_i \omega_j \mathbf{u}_i \cdot \mathbf{u}_j u_k. \quad (\text{III.1.9})$$

III.1.a. Règles de sélection

Nous abordons dans cette sous-section les règles de sélection des processus à trois-phonons, *i.e.*, les interactions provoquées par les termes anharmoniques cubiques.

Tout d'abord, précisons que pour un processus à trois phonons la règle de conservation de la quantité de mouvement impose une condition triviale sur les trois vecteurs d'onde des trois phonons impliqués dans l'interaction. Cette condition est que les trois vecteurs d'onde soient coplanaires (c.à.d. ils appartiennent à un même plan).

Il existe deux types de phonons transverses, ceux qui ont une polarisation perpendiculaire au plan contenant les trois vecteurs d'onde des phonons, et qu'on appelle les modes ou phonon « s ». D'autre part on a les phonons avec une polarisation parallèle au plan contenant les vecteurs d'onde des phonons impliqués dans l'interaction, qu'on appelle les modes ou phonons « p ».²⁵

Dans les processus à trois-phonons, le phonon peut être impliqué dans deux types d'interactions en assurant la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement :

- Les processus de « classe 1 » ou processus de relaxation : un phonon q_{p_k} de la branche de polarisation p_k et de vecteur d'onde q_k se désintègre en s'annihilant et crée ainsi deux phonons q_{p_i} et q_{p_j} de plus faibles énergies.

- Les processus de « classe 2 » ou processus de recombinaison (fusion) : un phonon q_{p_k} se recombine (fusionne) avec un autre phonon q_{p_i} s'annihilant mutuellement et génèrent un phonon q_{p_j} de plus grande énergie.

Les deux autres processus cubiques qui viennent à l'esprit, *i.e.*, trois phonons qui s'annihilent mutuellement ou trois phonons générés, sont interdits parce qu'ils ne peuvent pas satisfaire à la règle de conservation de l'énergie.

La règle de conservation de l'énergie pour les processus de classe 1 s'écrit comme

$$\hbar\omega_k = \hbar\omega_i + \hbar\omega_j, \quad (\text{III.1.10})$$

et la règle de conservation de la quantité de mouvement est telle que

$$\mathbf{q}_k + \mathbf{G} = \mathbf{q}_i + \mathbf{q}_j, \quad (\text{III.1.11})$$

avec \mathbf{G} vecteur du réseau réciproque qui est non-nul uniquement pour les processus Umklapp ; sinon on est en présence d'un processus Normal.

Pour les processus de classe 2, la règle de conservation de l'énergie donne

$$\hbar\omega_k + \hbar\omega_i = \hbar\omega_j, \quad (\text{III.1.12})$$

et celle de la conservation de la quantité de mouvement s'écrit comme

$$\mathbf{q}_k + \mathbf{q}_i = \mathbf{q}_j + \mathbf{G}, \quad (\text{III.1.13})$$

avec \mathbf{G} vecteur du réseau réciproque qui est non-nul uniquement pour les processus Umklapp ; sinon on est en présence d'un processus Normal.

De plus, les processus de type $ac + op \rightleftharpoons ac$ et $op + op \rightleftharpoons ac$ (où ac et op indiquent acoustique et optique, respectivement), sont interdits à cause de la conservation de l'énergie, puisque les modes optiques ont généralement toujours des énergies supérieures à celles des modes acoustiques (du moins dans les semi-conducteurs conventionnels).^{26, 27}

Quand, ni l'anisotropie, ni la dispersion ne sont ignorés, établir les règles de sélection d'une manière analytique est une tâche compliquée. Le lecteur peut approfondir le sujet en consultant les livres de Ziman et celui de Srivastava.^{26, 27} Mais on peut, néanmoins, établir des règles de sélection triviales en regardant les diagrammes de dispersion. Par exemple pour le Arséniure de Gallium (AsGa ou GaAs), nous pouvons voir clairement que

les phonons LO et TO ne peuvent pas se relaxer en deux phonons TA, parce que le maximum d'énergie des branches TA est inférieur à la moitié du minimum d'énergie des branches optiques, et donc il est impossible de respecter la conservation d'énergie.

III.1.b. Expressions générales des taux d'interaction

Après avoir remplacé les vecteurs de déplacement dans l'équation (III.1.9) par leurs expressions données dans (III.1.8) puis appliqué la règle d'or de Fermi (II.3.2), les taux d'interactions s'écrivent comme suit si le phonon promoteur est un phonon optique:

- pour un processus de classe 1

$$W_{op}(\mathbf{q}_k) = \frac{\Gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} n_k (n_i + 1)(n_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, -\mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k - \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j, \quad (\text{III.1.14})$$

- pour un processus de classe 2

$$W_{op}(\mathbf{q}_k) = \frac{\Gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} n_k n_i (n_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k + \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, \mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k + \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j, \quad (\text{III.1.15})$$

où ρ est la masse volumique ($\rho = NM/V$), n est le nombre d'occupation moyen des phonons, et \mathbf{G} présent en indice du delta de Kronecker de la conservation de la quantité de mouvement est un vecteur du réseau réciproque qui est nul dans le cas des processus Normaux, et non nul pour les processus Umklapp. Nous remarquons que la différence entre les taux d'interaction des deux types de processus, de classe 1 et 2, se voit dans l'effet des opérateurs d'annihilation et de création sur les nombres d'occupation moyens, et bien entendu, dans les expressions de la conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie.

De la même manière, on peut obtenir les taux d'interactions des processus dans lesquels le phonon promoteur est un phonon acoustique. La seule différence est l'utilisation de l'équation (III.1.4) au lieu de (III.1.5) pour exprimer le changement fractionnel de fréquence. Ainsi les taux d'interaction s'écrivent comme suit pour un phonon promoteur acoustique :

pour un processus de classe 1

$$W_{ac}(\mathbf{q}_k) = \frac{\gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} q_k^2 \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} n_k (n_i + 1)(n_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, -\mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k - \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j, \quad (\text{III.1.16})$$

pour un processus de classe 2

$$W_{ac}(\mathbf{q}_k) = \frac{\gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} q_k^2 \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} n_k n_i (n_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k + \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, \mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k + \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j. \quad (\text{III.1.17})$$

Pour plus de détail sur le calcul, et sur la dérivation des expressions des taux d'interaction, le lecteur est prié de se référer aux sections III.2 et III.3 où il trouvera la dérivation détaillée des expressions et des calculs analytiques.

L'approche théorique que nous avons suivie, rend la dérivation d'expressions générales des taux d'interaction relativement aisée. Cependant, le calcul des taux d'interactions est d'une toute autre difficulté.

III.2. Temps de vie

Avant de passer au détail des calculs analytiques, nous présentons le concept de temps de vie utilisé usuellement dans la littérature.

Nous avons déjà précisé que pour les processus anharmonique à trois phonons, il existe deux classes de processus d'interaction. Les processus de classe 1 où un phonon k s'annihile créant ainsi deux phonons i et j : $k \rightleftharpoons i + j$. Les processus de classe 2 où un phonon k s'annihilent mutuellement avec un phonon i pour créer un phonon j : $k + i \rightleftharpoons j$.

Considérons un phonon isolé. Il peut être (ou pas) le mode normal qui cause la variation de la fréquence due à l'anharmonicité, *i.e.* le mode promoteur de l'interaction. Cependant pour le calcul des temps de vie et pour les taux d'interaction on considère en général que le phonon k est bel et bien le mode promoteur, dans les relations ci-dessous.

Le temps de vie associé à une déviation de l'équilibre des phonons, selon les processus de classe 1 n'est pas uniquement relié au taux auquel ce phonon peut se décomposer en deux autres phonons d'énergies inférieures, mais aussi au taux auquel ce phonon est généré par recombinaison d'autres modes. Ainsi on peut écrire une équation de conservation pour ce type de phonons comme suit⁸⁶

$$\frac{dn_k}{dt} = -(D - G), \quad (\text{III.2.1})$$

où D est le taux de décomposition, et G le taux de recombinaison, dans le cadre des processus à trois phonons, *i.e.* D est le taux de sortie et G le taux d'entrée.

Les éléments de matrices sont identiques dans D et G parce que les interactions sont les mêmes, et seuls les opérateurs d'annihilation et de création diffèrent entre les deux. La différence entre les deux taux s'exprime alors dans le facteur impliquant les nombres d'occupations des phonons.

On a ainsi $n_k(n_i+1)(n_j+1)$ comme facteur des nombres moyen d'occupation des phonons pour le taux de décomposition D , et $(n_k+1)n_in_j$ pour le taux de recombinaison G .

Pour un phonon optique le taux de décomposition s'écrit comme

$$D = \frac{\Gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} n_k (n_i + 1)(n_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, -\mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k - \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j, \quad (\text{III.2.2})$$

et le taux de recombinaison s'écrit comme

$$G = \frac{\Gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} (n_k + 1) n_i n_j \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, -\mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k - \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j. \quad (\text{III.2.3})$$

Pour un phonon acoustique le taux de décomposition s'écrit comme

$$D = \frac{\gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} q_k^2 \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} n_k (n_i + 1)(n_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, -\mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k - \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j, \quad (\text{III.2.4})$$

et le taux de recombinaison est donné par

$$G = \frac{\gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} q_k^2 \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} (n_k + 1) n_i n_j \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, -\mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k - \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j. \quad (\text{III.2.5})$$

L'équation de conservation qui implique la différence entre D et G , pour un phonon optique ou acoustique, va donner dans son membre de droite le facteur suivant pour les nombres d'occupation moyens

$$n_k (n_i + 1)(n_j + 1) - (n_k + 1) n_i n_j = n_k (n_i + n_j + 1) - n_i n_j. \quad (\text{III.2.6})$$

Pour étudier les populations de phonons k hors équilibre on écrit le nombre d'occupation moyen du phonon k à un instant donné comme

$$n_k = \bar{n}_k + \Delta n_k, \quad (\text{III.2.7})$$

où \bar{n}_k est le nombre d'occupation moyen à l'équilibre thermodynamique donné par la distribution de Bose-Einstein, et Δn_k est la déviation du nombre d'occupation par rapport à l'équilibre. On suppose d'autre part que les populations des tous les autres phonons i et j sont à l'équilibre thermodynamique. C'est l'approche dite du *single mode relaxation time*.

Ainsi l'équation de conservation (III.2.1), pour un phonon optique et les processus de classe 1, devient

$$\frac{dn_k}{dt} = \frac{d(\Delta n_k)}{dt} = -\frac{\Gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} \Delta n_k (n_i + n_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, -\mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k - \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j, \quad (\text{III.2.8})$$

et celle pour un phonon acoustique peut être trivialement déduite de la même manière.

Le temps de vie selon les processus de classe 1 d'une déviation de l'équilibre des phonons est défini comme suit^{22, 43, 86}

$$\frac{1}{\tau_p^{(1)}} = -\frac{1}{\Delta n_k} \frac{dn_k}{dt}. \quad (\text{III.2.9})$$

Donc le temps de vie selon les processus de classe 1 pour un phonon optique s'écrit comme

$$\frac{1}{\tau_{p-op}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} (n_i + n_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, -\mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k - \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j, \quad (\text{III.2.10})$$

et pour un phonon acoustique

$$\frac{1}{\tau_{p-ac}^{(1)}} = \frac{\gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} q_k^2 \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} (n_i + n_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, -\mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k - \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j. \quad (\text{III.2.11})$$

On peut remarquer que les nombres d'occupation moyens du phonon en question, ou même du terme de déviation n'interviennent pas dans ces expressions des temps de vie.

Quand plus d'un processus d'interaction est possible pour un phonon donné, (pour les phonons LO de centre de zone, par exemple, il y a les interactions avec deux phonons LA, deux phonons TA, un phonon LA et un TA, un acoustique et un optique, etc.), chacune des contributions de ces processus de la forme (III.2.10) ou (III.2.11) est rajoutée selon la règle de Matthiessen pour obtenir le temps de vie total du phonon considéré. Il ne faut pas oublier les contributions des processus de classe 2 au temps de vie total.

Une déviation de l'équilibre des phonons, peut aussi se relaxer via les processus de classe 2. Le temps de vie dans ce cas n'est pas uniquement relié au taux auquel ce phonon peut se recombiner avec un autre pour donner un phonon de plus grande énergie, mais aussi au taux auquel ce phonon est généré par la décomposition d'un phonon de plus grande énergie. L'équation de conservation selon les processus de classe 2 s'écrit alors comme

$$\frac{dn_k}{dt} = -(R - G), \quad (\text{III.2.12})$$

avec R le taux de recombinaison, et G est le taux de génération.

Les éléments de matrices sont aussi identiques dans R et G , comme pour les processus de classe 1. La seule différence intervient dans le facteur impliquant les nombres d'occupation moyens des phonons. On a $n_k n_i (n_j + 1)$ comme facteur des nombres d'occupation moyens des phonons pour le taux de recombinaison R , et $(n_k + 1)(n_i + 1)n_j$ pour le taux de génération G .

En suivant la même démarche utilisée pour les processus de classe 1 on peut arriver à l'équation de conservation suivante pour les processus de classe 2 pour un phonon optique

$$\frac{dn_k}{dt} = \frac{d(\Delta n_k)}{dt} = -\frac{\Gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} (n_i - n_j) \delta_{\mathbf{q}_k + \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, \mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k + \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j, \quad (\text{III.2.13})$$

et celle pour un phonon acoustique peut en être déduite directement.

Le temps de vie d'une déviation de l'équilibre de phonons s'écrit d'une manière identique à (III.2.9). Ainsi la contribution d'un processus de classe 2 au temps de vie totale d'une déviation de l'équilibre d'un phonon optique s'écrit comme

$$\frac{1}{\tau_{p-op}^{(2)}} = \frac{\Gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} (n_i - n_j) \delta_{\mathbf{q}_k + \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, \mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k + \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j, \quad (\text{III.2.14})$$

et pour un phonon acoustique

$$\frac{1}{\tau_{p-ac}^{(2)}} = \frac{\gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} q_k^2 \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} (n_i - n_j) \delta_{\mathbf{q}_k + \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, \mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k + \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j. \quad (\text{III.2.15})$$

III.2.a. Relation entre temps de vie et largeur de raie Raman

Le temps de vie expérimental d'un phonon peut être dérivé à partir du spectre Raman via la relation d'incertitude temps – énergie⁸⁷

$$\frac{1}{\tau} = \frac{\Delta E}{\hbar} = 2\pi c\Gamma_0, \quad (\text{III.2.16})$$

où ΔE est l'incertitude sur l'énergie du phonon, c la célérité de la lumière, et Γ_0 la largeur maximum à mi-hauteur du pic Raman, ou ce qui est appelé usuellement la largeur de raie Raman. Γ_0 est exprimé par convention en cm^{-1} mais contrairement à ce qu'indique Cusco *et al.*⁸⁷ pour obtenir les bons temps de vie en unités SI il faut convertir Γ_0 en m^{-1} dans l'équation précédente.

III.3. Calcul analytique

Nous allons procéder à l'établissement et au développement de calculs analytiques de temps de vie de phonons, ce qui permettra au lecteur de mieux comprendre la méthodologie utilisée pour le calcul numérique des taux d'interaction. Nous tentons d'explicitier les subtilités de ce type de calcul.

III.3.a. Interaction LO \rightarrow LA + LA

Considérons tout d'abord le cas d'un processus normal de classe 1, avec un phonon LO de centre de zone promoteur de l'interaction, dont l'indice est défini comme k , qui se désintègre en deux phonons LA, dont les indices sont i et j . Nous explicitons en fait le calcul synthétisé par Ridley dans son livre référence.²⁵

Pour ce type de calcul analytique, il convient d'opérer quelques approximations. On les utilise même parfois dans certaines approches numériques. Nous considérons tout d'abord des relations de dispersion isotropes. On peut donc réduire la représentation des vecteurs d'onde à leur seule norme sans se soucier de leur direction.

Les plus lourdes de ces approximations concernent la prise en compte de relations de dispersion linéaires pour les phonons. C'est le modèle d'Einstein pour les phonons LO, et le modèle de Debye pour les phonons acoustiques. Ces approximations conviennent pour faire des calculs analytiques, mais ne sont pas satisfaisantes quand on fait des calculs numériques. Avec le modèle d'Einstein pour les phonons optiques, nous avons :

$$\omega_{LO}(q) = \omega_0, \forall q, \quad (III.3.1)$$

et avec le modèle de Debye pour les phonons acoustiques, nous avons :

$$\omega_{LA} = v_s q \quad (III.3.2)$$

où v_s est la vitesse du son dans le matériau en question.

En remplaçant (III.1.8) dans (III.1.9) pour chacun des différents modes intervenant dans l'interaction, l'Hamiltonien de perturbation devient

$$H_p = 2\Gamma M \sum_{r,i,j} \left(\frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} \right)^{1/2} \left(\frac{\hbar}{2NM} \right)^{3/2} \times \quad (III.3.3)$$

$$\left(\boldsymbol{\varepsilon}_i a_{\mathbf{q}_i} e^{i\mathbf{q}_i \mathbf{r}} + \boldsymbol{\varepsilon}_i^* a_{\mathbf{q}_i}^\dagger e^{-i\mathbf{q}_i \mathbf{r}} \right) \left(\boldsymbol{\varepsilon}_j a_{\mathbf{q}_j} e^{i\mathbf{q}_j \mathbf{r}} + \boldsymbol{\varepsilon}_j^* a_{\mathbf{q}_j}^\dagger e^{-i\mathbf{q}_j \mathbf{r}} \right) \left(a_{\mathbf{q}_k} e^{i\mathbf{q}_k \mathbf{r}} + a_{\mathbf{q}_k}^\dagger e^{-i\mathbf{q}_k \mathbf{r}} \right)$$

Pour le processus considéré dans l'équation (III.3.3), $a_{\mathbf{q}_k}^\dagger = a_{\mathbf{q}_i} = a_{\mathbf{q}_j} = 0$, donc l'Hamiltonien de perturbation se simplifie sous la forme :

$$H_p = \Gamma \left(\frac{\hbar}{N} \right)^{3/2} \frac{1}{\sqrt{2M}} \sum_{r,i,j} \left(\frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} \right)^{1/2} a_{\mathbf{q}_k} a_{\mathbf{q}_i}^\dagger a_{\mathbf{q}_j}^\dagger \boldsymbol{\varepsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_j^* e^{i(\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j) \mathbf{r}}, \quad (III.3.4)$$

ce qui est équivalent à

$$H_p = \Gamma \left(\frac{\hbar}{N} \right)^{3/2} \frac{1}{\sqrt{2M}} \sum_{i,j} \left(\frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} \right)^{1/2} a_{\mathbf{q}_k} a_{\mathbf{q}_i}^\dagger a_{\mathbf{q}_j}^\dagger \boldsymbol{\varepsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_j^* \sum_{\mathbf{r}} e^{i(\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j) \mathbf{r}}. \quad (III.3.5)$$

Dans l'équation (III.3.5), la somme sur les sites du réseau cristallin est nulle sauf s'il y a conservation de la quantité de mouvement, et dans ce cas la somme est égale à N . Elle est remplacée alors par un delta de Kronecker qui est la manifestation de la règle de conservation de la quantité de mouvement. L'Hamiltonien de perturbation devient :

$$H_p = \Gamma \hbar^{3/2} \frac{1}{\sqrt{2NM}} \sum_{i,j} \sqrt{\frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k}} \boldsymbol{\varepsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_j^* a_{\mathbf{q}_i}^\dagger a_{\mathbf{q}_j}^\dagger a_{\mathbf{q}_k} \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, \mathbf{0}}. \quad (III.3.6)$$

Ici on ne considère que les processus normaux avec une conservation stricte de la quantité de mouvement, *i.e.* tous les vecteurs d'onde des phonons (d'état initial et final) intervenants dans l'interaction sont dans la première zone de Brillouin, contrairement aux cas des processus *Umklapp*.

On peut d'ailleurs omettre le terme de somme sur les modes de polarisation car ici nous considérons le cas d'une interaction spécifique où les modes de polarisations des phonons fils sont prédéfinis.

La norme au carré de l'élément de matrice, dans le taux d'interactions déduit à partir de la règle d'or de Fermi (équation (II.3.2)), est égale à :

$$\left| \langle f | H_p | i \rangle \right|^2 = \Gamma^2 \hbar^3 \frac{1}{2NM} \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} \left| \boldsymbol{\epsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_j \right|^2 \left| a_{q_k} a_{q_i}^\dagger a_{q_j}^\dagger \right|^2 \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, \mathbf{0}}. \quad (\text{III.3.7})$$

D'autre part les opérateurs habituels d'annihilation et de création sont tels que, pour l'opérateur d'annihilation agissant sur un état $|n\rangle$ d'un oscillateur harmonique de nombre d'occupation n , on a :

$$a |n\rangle = n^{1/2} |n-1\rangle, \quad (\text{III.3.8})$$

et pour l'opérateur de création agissant sur un état $|n\rangle$ d'un oscillateur harmonique de nombre d'occupation n , on a :

$$a^\dagger |n\rangle = (n+1)^{1/2} |n+1\rangle. \quad (\text{III.3.9})$$

Donc en prenant pour chacun des opérateurs d'annihilation et de création de l'équation (III.3.7) sa valeur correspondante selon les équations (III.3.8) et (III.3.9) on obtient

$$\left| \langle f | H_p | i \rangle \right|^2 = \Gamma^2 \hbar^3 \frac{1}{2NM} \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} \left| \boldsymbol{\epsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_j \right|^2 n_k (n_i + 1) (n_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, \mathbf{0}}. \quad (\text{III.3.10})$$

En utilisant (III.3.10) pour l'application de la règle d'or de Fermi (II.3.2), et en reprenant les opérations effectués sur le facteur impliquant les nombres moyens d'occupation pour obtenir le temps de vie selon les processus de classe 1 d'un phonon optique (voir sec. III.2) on obtient :

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{2\pi}{\hbar} \int \Gamma^2 \hbar^3 \frac{1}{2NM} \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} |\boldsymbol{\varepsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_j^*|^2 (n_i + n_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, \mathbf{0}} \delta(E_f - E_i) dNf. \quad (\text{III.3.11})$$

Faisons intervenir maintenant les règles de sélection, des états finaux par rapport à l'état initial, de telle sorte que les règles de conservation d'énergie et de la quantité de mouvement soient respectées.

Nous considérons des phonons LO de centre de zone, et nous savons que dans les applications les plus étudiées, où on s'intéresse à la relaxation de phonons LO de centre de zone générés par la relaxation des porteurs de charges, les vecteurs d'onde des phonons LO émis sont assez petit. La conservation de la quantité de mouvement pour un processus de classe 1 peut être écrite comme suit :

$$\mathbf{q}_k \simeq \mathbf{0} = \mathbf{q}_i + \mathbf{q}_j, \quad (\text{III.3.12})$$

ce qui mène à :

$$\mathbf{q}_i = -\mathbf{q}_j. \quad (\text{III.3.13})$$

D'après l'équation précédente, on sait que les vecteurs d'onde des phonons LA fils sont opposés mais ils peuvent être n'importe où dans la première zone de Brillouin. Grâce à la règle de conservation de l'énergie qui suit :

$$\hbar \omega_k = \hbar \omega_i + \hbar \omega_j, \quad (\text{III.3.14})$$

on va pouvoir déterminer leurs positions.

Ayant (III.3.2) et compte tenu du résultat (III.3.13) de la conservation de la quantité de mouvement on peut déduire que :

$$\omega_i = \omega_j \quad (\text{III.3.15})$$

et en remplaçant (III.3.1) et (III.3.15) dans (III.3.14) on obtient :

$$\omega_i = \omega_j = \frac{\omega_0}{2}. \quad (\text{III.3.16})$$

D'autre part, on considère un milieu isotrope 3D, et les modes longitudinaux sont polarisés le long de la direction de propagation, *i.e.* $\boldsymbol{\varepsilon}_i^* \parallel \mathbf{q}$ et $\boldsymbol{\varepsilon}_j^* \parallel \mathbf{q}$, donc ayant (III.3.13) on peut déduire que :

$$\boldsymbol{\varepsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_j^* = -1 \text{ et } \left| \boldsymbol{\varepsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_j^* \right|^2 = 1. \quad (\text{III.3.17})$$

Les phonons suivent la statistique de Bose-Einstein. Le nombre d'occupation dépend de l'énergie. Les deux phonons ont la même énergie (III.3.15), donc les nombres d'occupation des phonons des modes i et j sont égaux : $n_i = n_j$. Alors, étant donnée (III.3.1), (III.3.2), (III.3.15) et (III.3.17) le temps de vie (III.3.11) devient :

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2 \hbar^2 \pi}{NM} \int \frac{v_s^2 q_i^2}{\omega_0} (2n_i + 1) \delta(E_f - E_i) dN_f. \quad (\text{III.3.18})$$

Par ailleurs, on a d'après Ridley :²⁵

$$dN_f = q_i^2 dq_i \frac{V}{(2\pi)^3} d(-\cos \theta) d\phi, \quad (\text{III.3.19})$$

et en remplaçant alors (III.3.19) dans (III.3.18) on obtient

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2 \hbar^2 v_s^2 V}{8\pi^2 NM \omega_0} \int q_i^4 (2n_i + 1) \delta(E_f - E_i) dq_i d(-\cos \theta) d\phi, \quad (\text{III.3.20})$$

et en prenant :

$$\frac{NM}{V} = \rho, \quad (\text{III.3.21})$$

l'équation (III.3.20) devient :

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2 \hbar^2 v_s^2}{8\pi^2 \omega_0 \rho} \int q_i^4 (2n_i + 1) \delta(E_f - E_i) dq_i d(-\cos \theta) d\phi. \quad (\text{III.3.22})$$

L'intégrale sur θ , entre 0 et π , et de ϕ , entre 0 et 2π , est égale à 4π , donc (III.3.22) devient égale à :

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2 \hbar^2 v_s^2}{2\pi \omega_0 \rho} \int q_i^4 (2n_i + 1) (E_f - E_i) dq_i. \quad (\text{III.3.23})$$

Faisons maintenant un changement de variable dans l'intégrale pour passer du vecteur d'onde des phonons à leur énergie, en fait on a :

$$q_i = \frac{\omega_i}{v_s} = \frac{\hbar \omega_i}{\hbar v_s} = \frac{E_f}{\hbar v_s}, \quad (\text{III.3.24})$$

et donc :

$$\frac{dE_f}{dq_i} = \hbar v_s \Leftrightarrow dq_i = \frac{dE_f}{\hbar v_s}. \quad (\text{III.3.25})$$

En remplaçant (III.3.24) et (III.3.25) dans (III.3.23) le temps de vie devient

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} &= \frac{\Gamma^2 \hbar^2 v_s^2}{2\pi\omega_0\rho} \int \left(\frac{E_f}{\hbar v_s} \right)^4 (2n_i + 1) \delta(E_f - E_i) \frac{dE_f}{\hbar v_s} \\ &\Rightarrow \frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2}{2\pi\omega_0 \hbar^3 v_s^3 \rho} \int (E_f)^4 (2n_i + 1) \delta(E_f - E_i) dE_f. \end{aligned} \quad (\text{III.3.26})$$

Le Dirac de conservation d'énergie présent dans l'intégrale nous donne la valeur de $(E_f)^4 (n_i + 1)$ en $\omega_0/2$, donc (III.3.26) devient :

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2}{2\pi\omega_0 \hbar^3 v_s^3 \rho} \left(2n \left(\frac{\omega_0}{2} \right) + 1 \right) \left(\frac{\hbar\omega_0}{2} \right)^4, \quad (\text{III.3.27})$$

et enfin, le contribution du processus $LO \rightarrow LA + LA$ au temps de vie est égale à

$$\frac{1}{\tau_{LO \rightarrow LA+LA}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2 \hbar\omega_0^3}{32\pi v_s^3 \rho} \left(2n \left(\frac{\omega_0}{2} \right) + 1 \right). \quad (\text{III.3.28})$$

Ainsi en conduisant en détail les opérations de calcul nous retrouvons le résultat annoncé par Ridley.²⁵

III.3.b. Interaction LA \rightarrow TA + TA

Considérons maintenant le cas d'une interaction où un phonon LA se relaxe en deux phonons transverses acoustiques TA. Le résultat final avec les grandes lignes du calcul ont été donnés par Ridley.²⁵ Nous développons ici le calcul dans le détail.

On considère comme précédemment des équations de dispersion isotropes avec le modèle de Debye pour le phonon LA (équation (III.3.2)). De même pour les phonons TA mais avec une vitesse du son différente de celle utilisée pour les LA, telle qu'on a :

$$\omega_{TA} = v_T q \quad (\text{III.3.29})$$

avec v_T la vitesse du son associé aux modes TA.

En prenant $M_i = M_j$ et en remplaçant (III.1.4) dans (III.1.7) nous obtenons

$$H_p = \sum_{r,i,j} M \omega_i \omega_j [i\gamma q_k u_k + i\gamma q_k u_k] \mathbf{u}_i \cdot \mathbf{u}_j. \quad (\text{III.3.30})$$

et en remplaçant (III.1.8) dans (III.3.30) l'Hamiltonien de perturbation devient

$$H_p = i2\gamma q_k M \sum_{r,i,j} \left(\frac{\omega_i \omega_k}{\omega_k} \right)^{1/2} \left(\frac{\hbar}{2NM} \right)^{3/2} \left(\boldsymbol{\varepsilon}_i a_{q_i} e^{i\mathbf{q}_i \cdot \mathbf{r}} + \boldsymbol{\varepsilon}_i^* a_{q_i}^\dagger e^{-i\mathbf{q}_i \cdot \mathbf{r}} \right) \times \quad (\text{III.3.31})$$

$$\left(\boldsymbol{\varepsilon}_j a_{q_j} e^{i\mathbf{q}_j \cdot \mathbf{r}} + \boldsymbol{\varepsilon}_j^* a_{q_j}^\dagger e^{-i\mathbf{q}_j \cdot \mathbf{r}} \right) \left(a_{q_k} e^{i\mathbf{q}_k \cdot \mathbf{r}} + a_{q_k}^\dagger e^{-i\mathbf{q}_k \cdot \mathbf{r}} \right).$$

La nature du processus considéré impose $a_{q_k}^\dagger = a_{q_i} = a_{q_j} = 0$, d'où :

$$H_p = i\gamma \left(\frac{\hbar}{N} \right)^{3/2} \frac{1}{\sqrt{2M\omega_k}} \sum_{r,i,j} q_k (\omega_i \omega_k)^{1/2} a_{q_k} a_{q_i}^\dagger a_{q_j}^\dagger \boldsymbol{\varepsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_j^* e^{i(\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j) \cdot \mathbf{r}}, \quad (\text{III.3.32})$$

qui est équivalent à :

$$H_p = i\gamma \left(\frac{\hbar}{N} \right)^{3/2} \frac{1}{\sqrt{2M\omega_k}} \sum_{i,j} q_k (\omega_i \omega_k)^{1/2} a_{q_k} a_{q_i}^\dagger a_{q_j}^\dagger \boldsymbol{\varepsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_j^* \sum_{\mathbf{r}} e^{i(\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j) \cdot \mathbf{r}}. \quad (\text{III.3.33})$$

Comme précédemment, la somme sur les sites du réseau cristallin est nulle sauf s'il y a conservation de la quantité de mouvement, et dans ce cas la somme est égale à N. D'autre part, on peut omettre la somme sur les modes de polarisation finaux possibles, puisque nous considérons un seul type d'interaction avec un triplet de modes de polarisation prédéfini. Donc l'Hamiltonien de perturbation s'écrit :

$$H_p = i\gamma \hbar^{3/2} \frac{1}{\sqrt{2NM\omega_k}} q_k (\omega_i \omega_k)^{1/2} a_{q_k} a_{q_i}^\dagger a_{q_j}^\dagger \boldsymbol{\varepsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_j^* \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, 0}. \quad (\text{III.3.34})$$

Disposant de l'Hamiltonien de perturbation, nous pouvons déduire la norme au carré de l'élément de matrice, du taux d'interaction qui est alors égale à

$$\langle f | H_p | i \rangle^2 = \hbar^3 \frac{\gamma^2 q_k^2 \omega_i \omega_j}{2NM \omega_k} \left| a_{q_i}^\dagger a_{q_j}^\dagger \right|^2 \left| \boldsymbol{\varepsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_j^* \right|^2. \quad (\text{III.3.35})$$

Après avoir explicité avec les équations (III.3.8) et (III.3.9) les effets des opérateurs d'annihilation et de création dans (III.3.35), nous obtenons :

$$\langle f | H_p | i \rangle^2 = \hbar^3 \frac{\gamma^2 q_k^2 \omega_i \omega_j}{2NM \omega_k} (n_i + 1)(n_j + 1) \left| \boldsymbol{\varepsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_j^* \right|^2, \quad (\text{III.3.36})$$

et enfin en remplaçant l'élément de matrice par sa valeur quand nous appliquons la règle d'or de Fermi (II.3.2), et en faisant le même traitement que celui de la sec. III.2, le temps de vie selon les processus de classe 1 pour un phonon acoustique devient

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{2\pi}{\hbar} \int \hbar^3 \frac{\gamma^2 q_k^2 \omega_i \omega_j}{2NM\omega_k} (n_i + n_j + 1) |\boldsymbol{\varepsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_j^*|^2 \delta(E_f - E_i) dN_f. \quad (\text{III.3.37})$$

Nous considérons comme Ridley que les deux phonons fils TA ont une polarisation s , *i.e.*, perpendiculaire au plan des vecteurs d'onde, donc on a

$$|\boldsymbol{\varepsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_j^*|^2 = 1, \quad (\text{III.3.38})$$

alors (III.3.37) devient

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{\hbar^2 \pi \gamma}{NM} \int \frac{q_k^2 \omega_i \omega_j}{\omega_k} (n_i + n_j + 1) \delta(E_f - E_i) dN_f. \quad (\text{III.3.39})$$

On suppose que n_i et n_j sont à l'équilibre thermodynamique, et on utilise le théorème d'équipartition²⁵ qui nous permet d'écrire

$$\bar{n}_{i,j} \approx \frac{k_B T}{\hbar \omega_{i,j}}, \quad (\text{III.3.40})$$

et on peut dire que $\bar{n}_i + \bar{n}_j \gg 1$. Ainsi on prenant en compte (III.3.29) le temps de vie devient

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{\pi \gamma^2 \hbar k_B T \omega_k}{NM v_s^2} \int (\omega_i + \omega_j) \delta(E_f - E_i) dN_f. \quad (\text{III.3.41})$$

En utilisant (III.3.2), (III.3.29) et la règle de conservation de la quantité de mouvement, nous obtenons

$$v_s q_k = v_T q_i + v_T q_j, \quad (\text{III.3.42})$$

donc

$$q_i = \frac{v_s q_k - v_T q_j}{v_T}, \quad (\text{III.3.43})$$

or

$$q_i^2 = q_k^2 + q_j^2 - 2q_k q_j \cos \theta_{kj}, \quad (\text{III.3.44})$$

avec θ_{kj} l'angle entre les vecteurs d'onde des particules k et j . Donc en insérant (III.3.43) dans (III.3.44) nous avons

$$\left(\frac{v_s q_k - v_T q_j}{v_T} \right)^2 = q_k^2 + q_j^2 - 2q_k q_j \cos \theta_{kj}, \quad (\text{III.3.45})$$

ce qui nous donne

$$q_j = \frac{q_k \left(1 - (v_s / v_T)^2 \right)}{2 \left(\cos \theta_{kj} - v_s / v_T \right)}. \quad (\text{III.3.46})$$

et

$$q_i = \frac{v_s q_k - v_T q_j}{v_T}. \quad (\text{III.3.47})$$

Cela nous donne accès à tous les couples de vecteurs d'onde finaux possibles pour le processus considéré. Cependant, notons que les équations donnant les vecteurs d'onde sont des équations transcendantes, car θ_{kj} dépend lui-même de q_i et q_j , mais ce problème peut être résolu numériquement.

D'autre part, nous pouvons transformer la fonction delta pour éliminer par exemple le terme ω_i , et donc intégrer uniquement sur le mode j :

$$dN_f = \frac{V}{8\pi^3} q_j^2 dq_j d(-\cos \theta_{kj}) d\phi. \quad (\text{III.3.48})$$

En prenant (III.3.48) le temps de vie s'écrit :

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{\pi \gamma^2 \hbar k_B T \omega_k}{NM v_s^2} \int (\omega_i + \omega_j) \frac{V}{8\pi^3} q_j^2 dq_j d(-\cos \theta_{kj}) d\phi \delta(E_f - E_i), \quad (\text{III.3.49})$$

et en faisant l'intégrale sur ϕ entre 0 et 2π on obtient

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{V \gamma^2 \hbar k_B T \omega_k}{4\pi N M v_s^2} \int (\omega_i + \omega_j) q_j^2 dq_j d(-\cos \theta_{kj}) \delta(E_f - E_i). \quad (\text{III.3.50})$$

Faisons maintenant un changement de variable dans l'intégrale pour passer du vecteur d'onde des phonons à leurs énergies :

$$q_j = \frac{\omega_j}{v_T} = \frac{\hbar \omega_j}{\hbar v_T} = \frac{E_f}{\hbar v_T}, \quad (\text{III.3.51})$$

et

$$\frac{dE_f}{dq_j} = \hbar v_T, \quad (\text{III.3.52})$$

et donc :

$$dq_j = \frac{dE_f}{\hbar v_T}. \quad (\text{III.3.53})$$

En prenant avec le changement de variable des équations (III.3.51) et (III.3.53) la valeur de la masse volumique comme dans (III.3.21), le temps de vie devient

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{\gamma^2 \hbar k_B T \omega_k}{4 \rho \pi v_s^2} \int (\omega_i + \omega_j) \frac{E_f^2}{\hbar^2 v_T^2} \frac{dE_f}{\hbar v_T} d(-\cos \theta_{kj}) \delta(E_f - E_i). \quad (\text{III.3.54})$$

L'application de la conservation de l'énergie mène alors à :

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{\gamma^2 k_B T \omega_k^2}{4 \hbar^2 \rho \pi v_s^2 v_T^3} \int \left(v_T \hbar \frac{\left(1 - \left(\frac{v_s}{v_T} \right)^2 \right)}{2 \left(\cos \theta_{kj} - \frac{v_s}{v_T} \right)} q_k \right)^2 d(-\cos \theta_{kj}), \quad (\text{III.3.55})$$

qui est équivalent à :

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{\gamma^2 k_B T \omega_k^2 \left(1 - \left(\frac{v_s}{v_T} \right)^2 \right)^2 q_k^2}{16 \rho \pi v_s^2 v_T} \int \frac{\sin \theta_{kj} d\theta_{kj}}{\left(\cos \theta_{kj} - \frac{v_s}{v_T} \right)^2}. \quad (\text{III.3.56})$$

Faisons alors l'intégration par rapport à l'angle :

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{\gamma^2 k_B T \omega_k^4 \left(1 - \left(\frac{v_s}{v_T} \right)^2 \right)^2}{16 \rho \pi v_s^4 v_T} \left[\frac{1}{\left(\cos \theta_{kj} - \frac{v_s}{v_T} \right)} \right]_0^\pi, \quad (\text{III.3.57})$$

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{\gamma^2 k_B T \omega_k^4 \left(1 - \left(\frac{v_s}{v_T} \right)^2 \right)^2}{16 \rho \pi v_s^4 v_T} \left[\frac{1}{\left(-1 - \frac{v_s}{v_T} \right)} - \frac{1}{\left(1 - \frac{v_s}{v_T} \right)} \right], \quad (\text{III.3.58})$$

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{\gamma^2 k_B T \omega_k^4 \left(1 - \left(\frac{v_s}{v_T}\right)^2\right)^2}{16 \rho \pi v_s^4 v_T} \left[\frac{1 - \frac{v_s}{v_T} + 1 + \frac{v_s}{v_T}}{v_T} \right], \quad (III.3.59)$$

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{\gamma^2 k_B T \omega_k^4 \left(1 - \left(\frac{v_s}{v_T}\right)^2\right)^2}{16 \rho \pi v_s^4 v_T} \frac{2}{-\left(1 - \frac{v_s^2}{v_T^2}\right)}, \quad (III.3.60)$$

pour obtenir au final :

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{\gamma^2 k_B T \omega_k^4 \left(\frac{v_s^2}{v_T^2} - 1\right)}{8 \rho \pi v_s^4 v_T}, \quad (III.3.61)$$

qui est équivalent à :

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{\gamma^2 k_B T \omega_k^4 \left(1 - \frac{v_T^2}{v_s^2}\right)}{8 \rho \pi v_s^2 v_T^3}. \quad (III.3.62)$$

Ce résultat est bien identique au temps de vie selon les processus de classe 1 donné par Ridley.²⁵

III.3.c. Interaction LO → TO + LA

Nous attribuons les indices k, i et j aux phonons LO, TO et LA respectivement.

Suivant la même démarche entreprise dans III.3.a nous arrivons à un temps de vie de la forme

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{2\pi}{\hbar} \int \Gamma^2 \hbar^3 \frac{1}{2NM} \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} \left| \boldsymbol{\epsilon}_i^* \cdot \boldsymbol{\epsilon}_j^* \right|^2 (n_i + n_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, 0} \delta(E_f - E_i) dN_f. \quad (III.3.63)$$

En prenant la norme du produit des vecteurs de polarisation égale à l'unité nous obtenons

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{2\pi}{\hbar} \int \Gamma^2 \hbar^3 \frac{1}{2NM} \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} (n_i + n_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, 0} dN_f. \quad (III.3.64)$$

Si nous utilisons la même expression de dN_f donnée précédemment dans (III.3.48), en appliquant la conservation de l'énergie et intégrant uniquement sur le mode LA (indice j) nous obtenons

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2 \hbar^2}{2\pi\rho} \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} (n_i + n_j + 1) \delta(E_f - E_i) q_j^2 dq_j, \quad (\text{III.3.65})$$

qui donne après intégration et application de la conservation de l'énergie

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2 \hbar \omega_i (\omega_k - \omega_i)^3 [n(\omega_i) + n(\omega_k - \omega_i) + 1]}{2\pi\rho\omega_0 v_s^3}, \quad (\text{III.3.66})$$

avec $(\omega_k - \omega_i)$ la fréquence du mode j pour laquelle il y a conservation de l'énergie. Ce taux est à celui donné par Ridley.⁸⁸

Dans ce cas, la fréquence du phonon j peut être donnée en fonction de celle du phonon i , parce que le phonon i est un phonon TO, dont la fréquence est fixe et connue sur toute la zone de Brillouin dans le cadre du modèle d'Einstein.

III.3.d. D'autres calculs analytiques

Après avoir explicité les détails des calculs menés par Ridley pour trouver les temps de vie des processus précisés ci-dessus, nous allons maintenant donner quelques résultats de calculs de temps de vie analytique pour des processus différents que ceux donnés précédemment, mais en prenant les mêmes hypothèses et en utilisant les mêmes méthodes que Ridley.

En adoptant la méthode de la sous-section III.3.b, et en prenant les mêmes hypothèses, d'équilibre thermodynamique des phonons et de l'équipartition, nous trouvons, pour le processus LA→LA+TA, le temps de vie suivant :

$$\frac{1}{\tau_{LA}^{(1)}} = \frac{\gamma^2 k_B T \omega_k^4 \left(\frac{2}{3} + \frac{2v_T^2}{v_s^2} \right)}{\rho v_T \pi v_s^4 \left(1 - \frac{v_T^2}{v_s^2} \right)}, \quad (\text{III.3.67})$$

avec les vecteurs d'ondes finaux possibles, égaux à :

$$q_i = \frac{v_s q_k - v_T q_j}{v_s}, \quad (\text{III.3.68})$$

et

$$q_j = \frac{2q_k \left(\cos \theta_{kj} - \frac{v_T}{v_s} \right)}{\left(1 - \frac{v_T^2}{v_s^2} \right)}. \quad (\text{III.3.69})$$

Conformément à l'approche de Ridley, dans III.3.c pour trouver le temps de vie, nous trouvons pour le processus LO→TO+TA le taux d'interactions suivant :

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2 \hbar \omega_T (\omega_0 - \omega_T)^3 [n(\omega_T) + n(\omega_0 - \omega_T) + 1]}{2\pi \rho \omega_0 v_T^3}. \quad (\text{III.3.70})$$

Dans ce cas les états finaux sont donnés tels que suit :

$$\begin{cases} q_i = \frac{\omega_T}{v_T} \\ \omega_j = \omega_0 - \omega_T. \\ q_j = \frac{\omega_0 - \omega_T}{v_T} \end{cases} \quad (\text{III.3.71})$$

Cette méthode n'est utilisable que lorsqu'un des phonons fils est un phonon optique, et donc, dans le cadre du modèle d'Einstein sa fréquence est constante sur toute la zone de Brillouin.

Intéressons-nous désormais au temps de vie du processus LO→LA+LA, en généralisant le calcul avec un phonons LO quelconque, *i.e.* situé n'importe où dans la zone de Brillouin. Nous allons aussi essayer d'affiner les hypothèses prises précédemment pour que le calcul convienne au problème. Donc nous n'utilisons pas les hypothèses, d'équilibre thermodynamique des populations des phonons fils ni de l'équipartition, parce que nous voulons étudier avec la méthode Monte Carlo des populations de phonons hors équilibres et qui évoluent au cour du temps.

En suivant la démarche entreprise dans III.3.a nous arrivons à un taux d'interactions de la forme :

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{2\pi}{\hbar} \int \Gamma^2 \hbar^3 \frac{1}{2NM} \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} \left| e_i^* \cdot e_j \right|^2 (n_i + n_j + 1) \delta_{q_k - q_i - q_j, 0} \delta(E_f - E_i) dN_f. \quad (\text{III.3.72})$$

La relation de conservation de l'énergie peut s'écrire comme suit :

$$\omega_0 = v_s q_i + v_s q_j, \quad (\text{III.3.73})$$

donc :

$$q_i = \frac{\omega_0 - v_s q_j}{v_s}, \quad (\text{III.3.74})$$

or la relation de conservation de la quantité de mouvement nous donne :

$$q_i^2 = q_k^2 + q_j^2 - 2q_k q_j \cos \theta_{kj}, \quad (\text{III.3.75})$$

donc en remplaçant (III.3.74) dans (III.3.75) nous arrivons à :

$$q_j = \frac{q_k \left(1 - \left(\frac{\omega_0}{v_s} \right)^2 \right)}{2 \left(q_k \cos \theta_{kj} - \frac{\omega_0}{v_s} \right)}. \quad (\text{III.3.76})$$

Utilisons l'expression (III.3.48) de la densité d'états finaux, appliquons la conservation de l'énergie, et intégrons uniquement par rapport au phonon j :

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2 \hbar^2}{4\pi\rho\omega_0} \int \omega_i \omega_j (n_i + n_j + 1) q_j^2 dq_j d(-\cos \theta_{kj}) \delta(E_f - E_i). \quad (\text{III.3.77})$$

Si nous remplaçons (III.3.74) dans (III.3.77) nous obtenons :

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2 \hbar^2}{4\pi\rho\omega_0} \int (\omega_0 - v_s q_j) \omega_j (n_i + n_j + 1) q_j^2 dq_j d(-\cos \theta_{kj}) \delta(E_f - E_i), \quad (\text{III.3.78})$$

et en faisant le changement de variable suivant :

$$\begin{cases} q_j = \frac{E_f}{\hbar v_s} \\ dq_j = \frac{dE_f}{\hbar v_s} \end{cases}, \quad (\text{III.3.79})$$

nous arrivons à :

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2 \hbar^2}{4\pi\rho\omega_0} \left[\int \omega_0 \frac{E_f^3}{\hbar^3 v_s^2} \frac{dE_f}{\hbar v_s} (n_i + n_j + 1) \delta(E_f - E_i) d(-\cos \theta_{kj}) - \int \frac{E_f^4}{\hbar^4 v_s^2} \frac{dE_f}{\hbar v_s} (n_i + n_j + 1) \delta(E_f - E_i) d(-\cos \theta_{kj}) \right]. \quad (\text{III.3.80})$$

En appliquant la conservation de l'énergie, puis remplaçant q_j par la valeur pour laquelle la conservation d'énergie est assurée, nous obtenons :

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \left[\frac{\Gamma^2(n(\omega_i) + n(\omega_k - \omega_i) + 1)}{4\pi\rho\hbar^2v_s^3} \int \left(\frac{\hbar v_s \left(q_k^2 - \frac{\omega_0^2}{v_s^2} \right)}{2 \left(q_k \cos \theta_{kj} - \frac{\omega_0}{v_s} \right)} \right)^3 d(-\cos \theta_{kj}) - \right. \\ \left. \frac{\Gamma^2(n(\omega_i) + n(\omega_k - \omega_i) + 1)}{4\pi\rho\hbar^3v_s^3\omega_0} \int \left(\frac{\hbar v_s \left(q_k^2 - \frac{\omega_0^2}{v_s^2} \right)}{2 \left(q_k \cos \theta_{kj} - \frac{\omega_0}{v_s} \right)} \right)^4 d(-\cos \theta_{kj}) \right]. \quad (\text{III.3.81})$$

Dans cette équation les nombres d'occupation des phonons sont exprimé en fonction des énergies pour lesquelles il y a conservation de l'énergie.

Faisons maintenant l'intégration par rapport à l'angle

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \left[\frac{\Gamma^2\hbar(n(\omega_i) + n(\omega_k - \omega_i) + 1) \left(q_k^2 - \frac{\omega_0^2}{v_s^2} \right)^3}{4\pi\rho} \int \left(\frac{1}{2 \left(q_k \cos \theta_{kj} - \frac{\omega_0}{v_s} \right)} \right)^3 d(-\cos \theta_{kj}) - \right. \\ \left. \frac{\Gamma^2(n(\omega_i) + n(\omega_k - \omega_i) + 1) \hbar v_s \left(q_k^2 - \frac{\omega_0^2}{v_s^2} \right)^4}{4\pi\rho\omega_0} \int \left(\frac{1}{2 \left(q_k \cos \theta_{kj} - \frac{\omega_0}{v_s} \right)} \right)^4 d(-\cos \theta_{kj}) \right], \quad (\text{III.3.82})$$

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \left[\frac{\Gamma^2\hbar(n(\omega_i) + n(\omega_k - \omega_i) + 1) \left(q_k^2 - \frac{\omega_0^2}{v_s^2} \right)^3}{32\pi\rho} \left[\frac{1}{2q_k \left(q_k \cos \theta_{kj} - \frac{\omega_0}{v_s} \right)^2} \right]_0^\pi - \right. \\ \left. \frac{\Gamma^2(n(\omega_i) + n(\omega_k - \omega_i) + 1) \hbar v_s \left(q_k^2 - \frac{\omega_0^2}{v_s^2} \right)^4}{64\pi\rho\omega_0} \left[\frac{1}{3q_k \left(q_k \cos \theta_{kj} - \frac{\omega_0}{v_s} \right)^3} \right]_0^\pi \right], \quad (\text{III.3.83})$$

$$\frac{1}{\tau_{LO}^{(1)}} = \left[\frac{\Gamma^2 \hbar (n(\omega_i) + n(\omega_k - \omega_i) + 1) \left(q_k^2 - \frac{\omega_0^2}{v_s^2} \right)^3}{64\pi\rho q_k} \left[\frac{-4q_k \frac{\omega_0}{v_s}}{\left(q_k^2 - \frac{\omega_0^2}{v_s^2} \right)^2} \right] - \frac{\Gamma^2 (n(\omega_i) + n(\omega_k - \omega_i) + 1) \hbar v_s \left(q_k^2 - \frac{\omega_0^2}{v_s^2} \right)^4}{192\pi\rho\omega_0 q_k} \left[\frac{+6q_k^2 \frac{\omega_0}{v_s} + \frac{\omega_0^3}{v_s^3}}{\left(q_k^2 - \frac{\omega_0^2}{v_s^2} \right)^3} \right] \right] \quad (\text{III.3.84})$$

enfin le temps de vie s'écrit comme

$$\frac{1}{\tau_{LO \rightarrow LA+LA}^{(1)}(q_k)} = \frac{\Gamma^2 \hbar \omega_0 (n(\omega_i) + n(\omega_0 - \omega_i) + 1) \left(\frac{\omega_0^2}{v_s^2} - q_k^2 \right)}{16\pi\rho v_s} - \frac{\Gamma^2 (n(\omega_i) + n(\omega_0 - \omega_i) + 1) \hbar v_s \left(q_k^2 - \frac{\omega_0^2}{v_s^2} \right) \left(+6q_k^2 \frac{\omega_0}{v_s} + \frac{\omega_0^3}{v_s^3} \right)}{192\pi\rho\omega_0 q_k} \quad (\text{III.3.85})$$

Dans cette équation nous avons réussi à éliminer la dépendance en fonction des états finaux, et à première vue le temps de vie peut être calculé en fonction des données initiales connues, comme v_s , q_k , etc. Or les nombres d'occupation des phonons i et j dans le taux d'interaction, sont exprimés en fonction de la fréquence du phonon i . Mais ce phonon est un phonon acoustique, qui n'a pas une fréquence fixe, et cela s'applique aussi au phonon j qui est aussi un phonon acoustique. Donc la seule manière de déterminer les fréquences des phonons fils, qui respectent les règles de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, consiste à les exprimer en fonction des vecteurs d'ondes des phonons fils. Or les vecteurs d'ondes, des phonons fils, qui respectent la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement et qui sont exprimés dans (III.3.74) et (III.3.76), dépendent clairement de l'angle θ_{kj} qui dépend lui-même des vecteurs d'ondes q_i et q_j . Donc nous avons des équations transcendantes, difficiles à résoudre analytiquement, cela aussi à condition qu'une solution existe.

En conclusion, sans les lourdes hypothèses considérées plus haut le calcul analytique des temps de vie ou des taux d'interactions devient très difficile, voire impossible (et cela n'est possible que pour des cas particulier). Devant une telle impasse, le calcul

numérique s'impose. Nous abordons le calcul numérique des taux d'interactions dans la section suivante.

III.4. Calcul numérique

III.4.a. Routine de Calcul des interactions phonon-phonon

Nous cherchons à calculer les taux d'interaction des phonons pour qu'ils soient utilisés dans nos solveurs Monte Carlo (MC) pour la résolution de l'Equation de Transport de Boltzmann (ETB). Les résultats des calculs de taux d'interaction nous donnent en plus accès aux participations des processus d'interaction au temps de vie de phonons LO de centre de zone.

Nous partons des expressions générales des taux d'interaction données dans la section III.1.b par les équations (III.1.14), (III.1.15), (III.1.16) et (III.1.17) pour les quatre types de processus d'interaction. Ces expressions vont nous permettre de calculer tous les taux d'interaction des tous les processus individuels à trois-phonons. Ce calcul permettra aussi de déterminer quelles interactions sont permises par les règles de sélection et les règles de conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie.

Sachant que nous prenons l'hypothèse d'un cristal isotrope nous travaillons avec la norme des vecteurs d'onde des phonons et comptabilisons la participation de toutes les directions possibles.

Un processus d'interaction est défini numériquement par cinq données. Dans une interaction où le phonon k est le phonon promoteur, qui interagit avec les deux phonons i et j , les quatre paramètres définissant une interaction individuelle numériquement sont : le mode de polarisation du phonon promoteur k , la norme de son vecteur d'onde (et par là son énergie également), le mode de polarisation du deuxième phonon i participant à l'interaction, et enfin le mode de polarisation du troisième phonon j participant à l'interaction. Comptabiliser les interactions en fonction en plus de chacun des vecteurs d'onde des phonons i et j augmentera substantiellement l'encombrement nécessaire en mémoire de stockage et le temps de traitement par la suite dans les solveurs MC que cela soit

pour le dénombrement des processus d'interaction et leurs taux ou pour le traitement des états finaux des interactions.

La routine de calcul numérique des taux d'interaction boucle sur tous les paramètres définissant l'interaction numériquement et procède au calcul du taux d'interaction.

Le calcul des taux d'interaction est effectué en trois dimensions pour chacun des vecteurs d'onde des trois phonons intervenant dans l'interaction, *i.e.* nous considérons les trois composantes de chaque vecteur d'onde selon un repère sphérique même si nous adoptons une approche de relations de dispersion isotropes. Cela est dû à la nature vectorielle de la règle de la conservation de la quantité de mouvement qui implique les vecteurs d'onde des trois phonons d'une interaction anharmonique du troisième ordre sous forme vectorielle et non en terme directement de leurs normes. Cela engendre effectivement une plus large combinaison de normes de vecteurs d'onde des trois phonons qui peuvent interagirent entre eux, même quand nous travaillons avec une approche basée sur les normes de vecteurs (hypothèse d'isotropie) dans les solveurs Monte Carlo.

On boucle sur les trois composantes des vecteurs d'onde du phonon promoteur k et du deuxième phonon i impliqué dans l'interaction et nous tirons profit de la nécessité de satisfaire à la règle de conservation de la quantité de mouvement pour déduire le vecteur d'onde du troisième phonon j impliqué dans l'interaction. Cela nous évite de boucler sur trois variables supplémentaires, sachant que toutes ces boucles sont imbriquées ce qui augmente la complexité du calcul et évidemment le temps de traitement nécessaire. On vérifie ensuite que le vecteur d'onde du phonon j est bien dans la première zone de Brillouin.

Si on dispose des trois vecteurs d'onde des phonons impliqués dans l'interaction, on peut déduire leurs énergies grâce aux relations de dispersion. Comme nous prenons que des triplets de vecteurs d'onde satisfaisant la conservation de la quantité de mouvement, il ne nous reste qu'à vérifier la conservation de l'énergie pour comptabiliser la participation, calculée selon les expressions générales données dans la sec. III.1.b, au taux d'interaction totale d'une interaction spécifiée numériquement.

Ainsi nous calculons le taux d'interaction pour le phonon k en comptabilisant la participation des taux calculés pour tous les vecteurs d'onde dont la norme correspond à celle du vecteur d'onde de la particule en question. Mais cela nécessite la normalisation pour obtenir le bon taux d'interaction. Les taux d'interaction sont normalisés en utilisant la densité d'états (*Density Of States* DOS, en anglais). La DOS peut être calculée de deux manières, en utilisant une expression analytique, ou en procédant à son calcul numérique direct. L'expression analytique de la DOS est

$$DOS = \frac{V}{8\pi^3} \frac{4\pi q^2}{dE/dq}, \quad (\text{III.4.1})$$

or

$$\frac{dE}{dq} = \hbar \frac{d\omega}{dq} = \hbar v_g, \quad (\text{III.4.2})$$

donc la densité d'états s'exprime comme

$$DOS = \frac{V}{8\pi^3} \frac{4\pi q^2}{\hbar v_g}. \quad (\text{III.4.3})$$

La normalisation par la DOS analytique ou numérique modifie légèrement les résultats des taux d'interaction et ainsi des simulations MC comme on le verra dans le chapitre V.

III.4.b. Traitement des processus *Umklapp*

Pour une interaction anharmonique à trois-phonons la conservation de la quantité de mouvement n'est pas toujours stricte et un vecteur non nul du réseau réciproque peut intervenir. Ces processus ont été appelé *Umklappprozess* par Peierls,⁵ cela indiquant en allemand le repliement du vecteur d'onde du phonon quand il est ramené dans la première zone de Brillouin par le vecteur du réseau réciproque. Conventionnellement, nous utilisons l'appellation processus *Umklapp*.

Théoriquement il existe une infinité de vecteurs du réseau réciproque. Cependant, nous pouvons tirer profit de la nature vectorielle des expressions de conservation de la quantité de mouvement. Les équations (III.1.11) et (III.1.13) induisent l'inégalité suivante

$$q_k + q_i + q_j \geq G, \quad (\text{III.4.4})$$

or

$$q_{\max} = \frac{2\pi}{a_0}, \quad (\text{III.4.5})$$

avec a_0 le paramètre de maille du matériau en question. Cela nous donne la borne supérieure suivante sur les valeurs possibles du vecteur du réseau réciproque

$$G_{\max} = 3 \frac{2\pi}{a_0}. \quad (\text{III.4.6})$$

$-m_1 + m_2 + m_3$	$m_1 - m_2 + m_3$	$m_1 + m_2 - m_3$
0	-2	-2
-2	0	-2
-2	-2	0
-1	-1	-1
0	0	-2
0	-2	0
1	-1	-1
2	0	-2
2	-2	0
-2	0	0
-1	1	-1
0	2	-2
-1	-1	1
1	1	-1
0	-2	2
1	-1	1
2	0	0
-2	2	0
-2	0	2
-1	1	1
0	2	0
0	0	2
1	1	1
2	2	0
2	0	2
0	2	2

Tableau 1. Liste des triplets définissant les vecteurs du réseau réciproque d'un réseau CFC.

Les applications dans ce travail de recherche portent sur des matériaux semi-conducteurs qui ont tous des structures cristallines avec un réseau périodique cubique à face centrée (CFC). Cela est le cas pour les matériaux III-V étudiés (GaAs, InP, InAs et GaSb) qui ont une structure cristalline blende de Zinc ou les matériaux de la colonne IV (Si et Ge) qui

ont des structures diamant. Or pour les structures cristallines avec un réseau CFC un vecteur quelconque du réseau réciproque s'écrit comme²⁶

$$\mathbf{G} = \frac{2\pi}{a_0}(-m_1 + m_2 + m_3, m_1 - m_2 + m_3, m_1 + m_2 - m_3), \quad (\text{III.4.7})$$

avec m_i des entiers relatifs.

Ayant l'expression générale du vecteur du réseau réciproque (III.4.7) et la condition (III.4.6) sur la norme du vecteur du réseau réciproque, nous obtenons une série de 26 vecteurs non-nuls possibles dont nous explicitons les triplets les définissant dans le Tableau 1. Ces vecteurs-là sont utilisés lors du calcul des taux d'interaction pour les processus Umklapp.

III.4.c. Difficultés numériques et discrétisations

Le calcul des taux d'interactions est un calcul complexe et difficile à faire converger. Cela vient des balayage imbriqués de l'espace réciproque qui présente trois dimensions. Comme nous l'avons déjà mentionné, en appliquant directement la règle de conservation de la quantité de mouvement nous pouvons réduire le nombre de boucle imbriquées à 5, ceci pour plus de 320 types d'interactions possibles pour chaque vecteur d'onde d'un phonon promoteur.

Les pas de discrétisations utilisés sont de 15 pour les angles sphériques du phonon promoteur, et de 25 pour les angles sphériques du premier phonon fils, ainsi que 1001 pas de discrétisation sur le module ce dernier phonon. Avec les pas de discrétisations choisis pour la norme du phonon promoteur, cet ensemble de discrétisation assure la convergence du calcul des taux d'interactions.

Nous prenons 100 pas de discrétisation pour la norme du phonon promoteur quand nous résolvons l'ETB dans l'espace réciproque uniquement. Cela correspond à des temps de calcul des taux d'interaction qui vont de 60 h jusqu'à 130 h sur avec un microprocesseur récent, selon la classe d'interaction considérée (classe 1, classe 2, processus Normaux, ou Umklapp). En fait, sachant que nous avons considérés 320 types d'interaction possibles après avoir appliqué les règles de sélection triviales, pour une discrétisation de 100 sur la norme du

phonon promoteur, cela fait 32000 taux d'interaction à calculer, soit au final près de 117 téra-itérations à parcourir.

Pour la résolution de l'ETB dans les espaces réciproque et réel simultanément, nous prenons 30 pas de discrétisation pour la norme du phonon promoteur. Un degré de précision supérieure engendrerait des simulations MC trop lourde avec des temps de calcul inenvisageables pour des raisons pratiques. La discrétisation choisie nous donne des temps de calcul des taux d'interaction qui varient entre 7 h et 43 h selon la classe d'interaction.

IV Méthode Monte Carlo pour la résolution de l'ETB des phonons

Pour la résolution de l'Equation de Transport de Boltzmann (ETB), les méthodes Monte Carlo (MC) substituent au traitement direct de la fonction de distribution par une approche particulière. En utilisant un grand nombre d'échantillons stochastiques, il est possible de reconstruire la fonction de distribution à chaque instant de la simulation. Comme le nombre réel de particules dans un solide est immense, il serait illusoire d'aspirer à simuler toutes les particules. Pour cela les méthodes MC introduisent le concept d'échantillon stochastique pour représenter un ensemble de particules réelles. Dans la suite de la discussion ces échantillons stochastiques seront appelés super-particules. L'ETB constitue une représentation semi-classique et l'approche MC se prête bien à sa résolution. Les super-particules sont supposées obéir à la mécanique classique entre deux collisions. Chaque échantillon stochastique peut subir une interaction dû au membre de droite de l'ETB. Le calcul de ces taux d'interaction s'effectue en utilisant la mécanique quantique et plus spécifiquement la règle d'or de Fermi.

Dans ce chapitre nous présentons les différentes procédures qui constituent le code MC utilisé pour la résolution de l'ETB des phonons. Nous commençons par la phase d'initialisation et le calcul du nombre de super-particules à simuler. Puis nous abordons la diffusion des particules au cours du temps, suivie des interactions que les super-particules peuvent subir entre deux vols libres, avec d'autres phonons, en spécifiant le traitement de ces interactions et la détermination des états finaux des super-particules impliquées dans l'interaction. Nous explicitons ensuite les conditions aux limites, telles que les faces iso-thermiques, cellules iso-thermiques et les parois adiabatiques. Nous terminons par l'explication des procédures d'évaluation de la pseudo-température locale et de calcul du flux de chaleur et de la conductivité thermique.

IV.1. Discrétisation

La définition de la discrétisation dans l'espace réel et dans l'espace réciproque est primordiale. Nous avons déjà abordé la discrétisation dans l'espace réciproque quand nous avons évoqué le calcul numérique des taux d'interactions. Mais ici nous allons spécifier les discrétisations de l'espace réciproque et de l'espace réel utilisées dans nos codes MC.

Nous utilisons une discrétisation en vecteur d'onde de l'espace réciproque, au lieu de la plus classique discrétisation en pulsation ou énergie. Cela a l'avantage de demander moins d'échantillons de discrétisation. Par exemple, pour les phonons TA de petite longueur d'onde, la pente de la courbe de dispersion est très plate (horizontale). Une discrétisation en fréquence aurait nécessité un très grand nombre de segment d'échantillon pour représenter d'une manière satisfaisante cette zone.

Les courbes de dispersion, des phonons optiques ayant des faibles vitesses de groupes, sont aussi très « gourmandes » en discrétisation fréquentielle, alors qu'avec la discrétisation en vecteurs d'onde le nombre d'échantillons est beaucoup plus aisé à manipuler et moins encombrant.

L'espace réciproque est discrétisé par des sphères avec un pas radial dq . Grâce à notre hypothèse d'un cristal isotrope, le nombre moyen d'occupation des états de phonon est isotrope et dépend uniquement de la norme du vecteur d'onde. $n_p(q_i)$ est défini comme le nombre d'occupation moyen des états de phonons du mode de polarisation p entre q_i et $q_{i+1} = q_i + dq$. Il couvre le volume de l'espace réciproque $\Omega(q_i) = (4\pi/3)(q_{i+1}^3 - q_i^3)$.

La longueur de la direction de haute symétrie $\Gamma-X$, que nous prenons comme le rayon de la sphère représentant la zone de Brillouin dans le cadre de notre approche isotrope, est divisée en 100 segments. Chaque segment d'amplitudes de vecteurs d'onde est représenté par sa valeur médiane, par exemple dans le GaAs le premier segment qui comprend des amplitudes de vecteurs d'onde allant de 0 jusqu'à $\sim 1.1 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$ est représenté par le vecteur d'onde d'amplitude $q \sim 5.6 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$. Les phonons actifs Raman qui peuvent être sondés par la spectroscopie Raman anti-stokes, ont des vecteurs d'onde avec des amplitudes proches^{32, 89} de $8 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ et sont ainsi compris dans le premier

segment de notre discrétisation de l'espace des vecteurs d'onde. Cette mesure spectroscopique constitue un moyen expérimental pour mesurer le temps de vie des phonons LO.

Pour les simulations dans l'espace réel, nous utilisons pour le moment une discrétisation de l'espace des vecteurs d'onde en 30 segments. Les codes MC pour le transport sont plus complexes que ceux pour la dynamique des phonons uniquement, et nous avons besoin de sacrifier un peu de précision sur la discrétisation dans l'espace réciproque pour réduire l'encombrement en mémoire et les temps de calcul.

Notre domaine de simulation dans l'espace réel est divisé en cellules élémentaires (volumes de contrôles), voir Figure 4. La forme de ces cellules relève du choix de l'utilisateur et dépend du champ d'application du code. Pour les applications considérées dans le cadre du présent travail nous avons choisis de considérer des cellules rectangulaires en trois dimensions. Ces cellules s'étendent latéralement sur tout le domaine de simulation, et leur alignement parallèle à l'axe de propagation définit l'étendue de notre domaine de simulation.

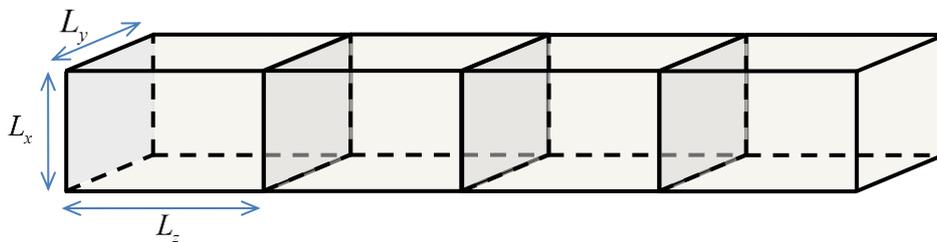


Figure 4. Structure géométrique du domaine de simulation. Ici composé de quatre cellules de contrôle élémentaires.

Ainsi la longueur du domaine de simulation est définie par la longueur d'une cellule élémentaire et par le nombre de volume de contrôle. Les dimensions de la cellule élémentaire sont données par le triplet (L_x, L_y, L_z) .

IV.2. Définition du système physique

La première étape pour l'initialisation de la simulation MC consiste dans la définition du système physique que l'on veut étudier. Cela passe par la définition des propriétés physiques telles que la température du réseau cristallin, le paramètre de maille du matériau, des constantes de Grüneisen, des types d'interactions phonon – phonon possibles, et la tabulation des diagrammes de dispersion des phonons et des vitesses de groupe. Pour les simulations où l'espace réel est considéré, on définit aussi les dimensions du domaine de simulation, et les dimensions des volumes de contrôle élémentaires, ainsi que le paramètre de diffusivité des parois (que nous abordons plus tard dans ce chapitre). Il faut enfin aussi définir le pas de temps de la simulation.

IV.2.a. Paramètres d'entrée de la simulation

Outre les constantes usuelles comme la constante de Planck, et celle de Boltzmann, nous avons besoin évidemment des paramètres de mailles et de la masse volumique de chacun des matériaux étudiés. Ces paramètres sont utilisés pour le calcul des taux d'interaction, et dans les solveurs MC, et sont listés dans le Tableau 2.

Matériau	Paramètre de maille (Å)	Masse volumique (g/cm ³)
GaAs	5.65 ^a	5.32 ^a
InAs	6.06 ^b	5.67 ^b
InP	5.87 ^b	4.79 ^b
GaSb	6.10 ^c	5.62
Si	5.43 ^a	2.33 ^a
Ge	5.66 ^a	5.32 ^a

Tableau 2. Paramètres d'entrées des simulations MC et du calcul des taux d'interaction. Les références sont a : La base de données électronique de l'IOFFE⁹⁰ ; b : Adachi⁹¹ ; c : Farr *et al.*⁷⁹.

IV.2.b. Dimensions de la cellule élémentaire et de la structure

La géométrie de la cellule élémentaire peut varier au gré des besoins de la simulation. Pour les études effectuées dans le cadre de ce travail de recherche, nous avons choisi la simplicité en prenant des cellules rectangulaires dont les dimensions latérales s'étalent sur toute la largeur et la hauteur du domaine de simulation et dont la longueur est un paramètre à définir au préalable.

Les dimensions de ces cellules doivent être choisies d'une manière astucieuse pour convenir au besoin de la simulation. Par exemple, quand nous faisons des calculs de conductivité thermique, à température ambiante, il faut s'assurer que la taille des cellules, et du domaine de simulation, soient supérieures au libre parcours moyen des phonons ; sinon, on risque de fausser la simulation avec des effets de phonons balistiques. Ensuite, nous avons aussi le fait que les interactions latérales qu'elles soient spéculaire ou diffusive (voir section IV.4.a.i) vont modifier le flux des phonons selon la direction du gradient.

D'autre part, quand nous faisons des simulations pour étudier le régime balistique, il faut s'assurer que les dimensions, de la structure et des cellules, soient adéquates pour faire apparaître les effets physiques que l'on souhaite observer. Quoiqu'il en soit, au final, il ne faut pas oublier le compromis à faire par rapport au temps de calcul et à l'encombrement en mémoire qui en résulte.

Notons aussi, que plusieurs auteurs ont essayé de donner des équations avec des conditions précises pour déterminer des limites supérieures ou inférieures des dimensions géométriques des cellules et de la structure. Néanmoins, souvent, les conditions et équations des uns sont contradictoires avec celles des autres. En conclusion, les dimensions géométriques restent des paramètres à définir au cas par cas, en prenant en compte toutes les conditions mentionnées précédemment.

IV.2.c. Pas de temps

Le choix du pas de temps de simulation dépend lui aussi de plusieurs paramètres à considérer. Le premier critère consiste à choisir un pas de temps soit inférieur au plus petit temps de vie des phonons. Ainsi la simulation prend en compte tous les états de phonons sans qu'aucun ne soit relaxé directement et ne se fasse pas « sentir » au cours de la simulation.

Il faut aussi que le plus rapide des phonons n'ait pas le temps de sortir d'une cellule pendant un unique pas de temps. Sinon, il est possible d'observer des artefacts numériques mimant des effets balistiques pour les phonons alors qu'on n'est pas en régime balistique. On constate que le pas de temps est relié aux dimensions géométriques, et réciproquement par

un lien « transcendant ». C'est aussi pour cela que les dimensions et le pas de temps restent des paramètres à ajuster en fonction des conditions du problème spécifique envisagé.

IV.3. Conditions initiales

IV.3.a. Nombre de phonons

Pour résoudre par la méthode MC l'ETB des phonons, il faut calculer le nombre de super-particules à simuler, et initialiser les échantillons stochastiques dans le domaine de simulation. Deux cas de figure peuvent se présenter selon le choix de l'utilisateur et la version de code MC utilisée. Par exemple, quand nous aborderons au chapitre VII le transport des phonons, nous présentons un code MC qui simule tous les états phononique possible selon la discrétisation adoptée, *i.e.* on modélise les populations totales pour tous les vecteurs d'onde de la première zone de Brillouin et la multitude des modes de polarisation possible. Une approche alternative plus pratique qui autorise un gain de temps de calcul et d'espace mémoire, et permet d'éviter quelques problèmes de variance, consiste à ne considérer que les super-particules représentant une certaine déviation par rapport à l'équilibre thermodynamique local, ou à une configuration de référence.

Le nombre de phonons dans chaque cellule dépend de la température locale de cette cellule. L'énergie vibrationnelle totale du cristal est donnée par l'éq. (II.2.1) où $\bar{n}_p(q)$ est la population locale à l'équilibre thermodynamique (distribution de Bose-Einstein) à la place de $n_p(\mathbf{q})$. E est l'énergie du matériau. Elle est obtenue en sommant tous les quanta d'énergie $\hbar\omega$ de tous les phonons sur tous les modes de polarisations et les vecteurs d'onde. Si nous supposons que les vecteurs d'onde des phonons sont assez denses dans l'espace réciproque, la somme discrete sur les \mathbf{q} peut être remplacée par une intégrale. Donc dans le cas d'un cristal isotrope tridimensionnel nous avons :

$$E = \sum_p \int \left(\bar{n}_p(\mathbf{q}) + \frac{1}{2} \right) \hbar\omega_p(\mathbf{q}) \frac{d^3\mathbf{q}}{(2\pi)^3/V}, \quad (\text{IV.3.1})$$

avec V le volume du domaine dans lequel on cherche à calculer l'énergie. Le terme $1/2$ correspond à l'énergie constante du point zéro, qui ne participe pas au transfert d'énergie dans le matériau. Nous pouvons le négliger. Cela nous mène à l'expression suivante de l'énergie :

$$E = \sum_p \int_{\mathbf{q}} \bar{n}_p(\mathbf{q}) \hbar \omega_p(\mathbf{q}) \frac{d^3 \mathbf{q}}{(2\pi)^3 / V}, \quad (\text{IV.3.2})$$

qui est équivalente à :

$$E = \sum_p \int_{\mathbf{q}} \frac{\hbar \omega_p(\mathbf{q})}{\exp\left(\frac{\hbar \omega_p(\mathbf{q})}{k_B T}\right) - 1} \frac{d^3 \mathbf{q}}{(2\pi)^3 / V}. \quad (\text{IV.3.3})$$

Avec cette formulation de E et comme l'énergie est égale au nombre d'occupation moyen de phonons multiplié par l'énergie de chacun de ces phonons, nous pouvons déduire une expression du nombre réel de phonons dans une cellule. Cette expression, en remplaçant directement $\bar{n}_p(\mathbf{q})$ par la distribution de Bose-Einstein, s'écrit comme :

$$N = V \sum_p \int_{\mathbf{q}} \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar \omega_p(\mathbf{q})}{k_B T}\right) - 1} \frac{d^3 \mathbf{q}}{(2\pi)^3}. \quad (\text{IV.3.4})$$

Dans le cadre de notre hypothèse d'un cristal isotrope, l'éq. (IV.3.4) est équivalente à :

$$N = V \sum_p \int_{q, \theta, \phi} \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar \omega_p(q)}{k_B T}\right) - 1} \frac{q^2 dq \sin \theta d\theta d\phi}{(2\pi)^3}, \quad (\text{IV.3.5})$$

et en intégrant par rapport à θ et ϕ , et en remplaçant l'intégrale sur les vecteurs d'onde par une somme, on obtient :

$$N = V \frac{1}{2\pi^2} \sum_p \sum_q \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar \omega_p(q)}{k_B T}\right) - 1} q^2 \Delta q, \quad (\text{IV.3.6})$$

où Δq est le volume infinitésimal d'intégration.

Pour garder une certaine généralité, on peut préciser que le nombre total de phonons dans un domaine donné, N , peut s'exprimer comme :

$$N = \sum_{\mathbf{q}, p} n_p(\mathbf{q}) D_p(\mathbf{q}) \Delta \mathbf{q}, \quad (\text{IV.3.7})$$

où la somme est sur toutes les branches de polarisation p des phonons et les vecteurs d'onde \mathbf{q} , $n_p(\mathbf{q})$ est le nombre d'occupation moyen des phonons, $D_p(\mathbf{q}) \Delta \mathbf{q}$ est le nombre de modes de vibration entre \mathbf{q} et $\mathbf{q} + d\mathbf{q}$.

Selon la version du solveur MC utilisé et le schéma de simulation choisi, on peut être amené à simuler des super-particules représentant ce nombre total de phonons, ou uniquement une certaine déviation par rapport à un équilibre donné, ou par rapport à l'équilibre thermodynamique donné par la distribution de Bose-Einstein. Pour ce dernier cas, le nombre de phonons à simuler s'écrit alors comme :

$$N = \sum_{\mathbf{q},p} (n_p(\mathbf{q}) - \bar{n}_p(\mathbf{q})) D_p(\mathbf{q}) \Delta \mathbf{q}, \quad (\text{IV.3.8})$$

avec $\bar{n}_p(\mathbf{q})$ le nombre moyen d'occupation des phonons à l'équilibre considéré. En revenant à notre cas spécifique, ce nombre de phonons à simuler s'écrit :

$$N = V \frac{1}{2\pi^2} \sum_p \sum_q (n_p(q) - \bar{n}_p(q)) q^2 \Delta q. \quad (\text{IV.3.9})$$

Quelle que soit l'approche utilisée, y compris si on ne considère que les particules de déviation, le nombre de phonons à initialiser est généralement extrêmement grand. Il est pratiquement impossible de simuler raisonnablement toutes ces particules. Comme c'est le cas usuellement, on a recourt à un facteur de d'échantillonnage pour réduire le nombre de phonons à simuler. Dans nos codes, le choix du nombre de particules à simuler est toujours laissé à la discrétion de l'utilisateur. En effet, selon l'approche, l'utilisateur peut être amené à définir le nombre exact de super-particules qu'il veut simuler, ou le facteur d'échantillonnage directement ce qui définira ensuite le nombre de super-particules. Le facteur d'échantillonnage S (*scaling*) est relié au nombre total de phonons à simuler N et au nombre effectif de super-particules de simulations N_{sim} par la formule suivante :

$$S = \frac{N}{N_{sim}}. \quad (\text{IV.3.10})$$

Ainsi chaque échantillon stochastique dans la simulation, ou super-particule, représente un ensemble de S phonons réels. Pendant la simulation, le nombre total de super-particules évolue constamment, en augmentant ou en diminuant, selon les interactions subies par les phonons et les conditions aux limites.

Quand on se limite aux particules de déviation, le nombre super-particules à initialiser est nettement plus petit. Nous aurons alors un facteur d'échantillonnage plus satisfaisant, et qui représentera mieux les phonons chauds, vis-à-vis du nombre de super-particules. Si tous les phonons sont considérés, la représentation des très grandes populations thermodynamiques des phonons acoustiques aurait nécessité la majorité des

super-particules. D'autre part, les phonons LO de centre de zone, que nous voulons étudier dans certaine application de ce travail, possèdent les plus grandes énergies du diagramme de dispersion et ont de très grandes longueurs d'onde et ainsi des densités d'états plus petites que celles des autres phonons y compris les phonons optiques de plus grands vecteurs d'onde.

IV.3.b. Initialisation des super-particules

Connaissant le nombre de super-particules à initialiser dans chaque cellule, ou dans la simulation (si nous ne considérons pas l'espace réel dans la résolution de l'ETB), comment déterminer à quelles branche et segment de vecteur d'onde appartiennent ces particules, et quelles sont les coordonnées de leurs positions dans la structure géométrique simulée ainsi que leurs directions de propagation? C'est la question à laquelle nous répondons dans cette sous-section.

IV.3.b.i. Position

Dans l'espace réel, les positions des super-particules initialisées dans un volume de contrôle donné sont déterminées d'une manière aléatoire mais homogène dans tout le volume de la cellule élémentaire. Notre espace géométrique est défini par rapport à un repère cartésien orthonormé direct, en trois dimensions, comme on peut le voir en Figure 5 avec un repère $(O, \mathbf{l}, \mathbf{m}, \mathbf{n})$ positionné dans une cellule élémentaire supposé être la première cellule à partir de la gauche.

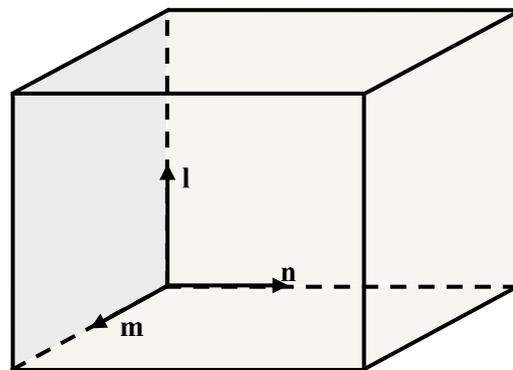


Figure 5. Cellule élémentaire (volume de contrôle) et le repère cartésien orthonormé direct utilisé pour repérer les super-particules dans l'espace réel.

Les super-particules peuvent ainsi être repérées grâce à leur vecteur position qui s'écrit comme suit :

$$\mathbf{r} = x\mathbf{l} + y\mathbf{m} + z\mathbf{n}, \quad (\text{IV.3.11})$$

avec (x, y, z) les coordonnées de la super-particule dans l'espace géométrique de simulation qui est limité par le triplet $(L_x, L_y, N_{\text{cellules}}L_z)$ avec N_{cellules} le nombre de cellules dans le domaine de simulation.

Ainsi pour initialiser la position d'une super-particule d'une manière homogène dans une cellule c on utilise un triplet de nombres aléatoires (b_1, b_2, b_3) compris entre 0 et 1 qui nous donne les coordonnées de la super-particules :

$$\begin{cases} x = b_1 L_x \\ y = b_2 L_y \\ z = b_3 L_z + (c-1)L_z \end{cases} . \quad (\text{IV.3.12})$$

IV.3.b.ii. Vecteur d'onde, mode de polarisation et fréquence

Le vecteur d'onde et le mode de polarisation sont définis, de facto, par la procédure d'initialisation des super-particules. En effet quand nous calculons le nombre de phonons à initialiser (IV.3.a), ce nombre est calculé pour chaque état phononique de notre discrétisation, donc pour chaque mode de polarisation et vecteur d'onde de notre discrétisation. La connaissance du vecteur d'onde et du mode de polarisation définit directement la fréquence.

IV.3.b.iii. Direction

Dans l'espace réel les super-particules se déplacent dans le domaine de simulation selon la direction de leur vecteur de vitesse de groupe qui est aussi celle de leur vecteur d'onde. Le vecteur direction \mathbf{d} peut être calculé en trois dimensions selon :

$$\mathbf{d} = \begin{pmatrix} \sin \theta \cos \phi \\ \sin \theta \sin \phi \\ \cos \theta \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \mathbf{l} \\ \mathbf{m} \\ \mathbf{n} \end{pmatrix}, \quad (\text{IV.3.13})$$

avec les angles θ et ϕ en coordonnées sphériques les angles polaire et azimutal, respectivement, comme nous pouvons le voir en Figure 6.

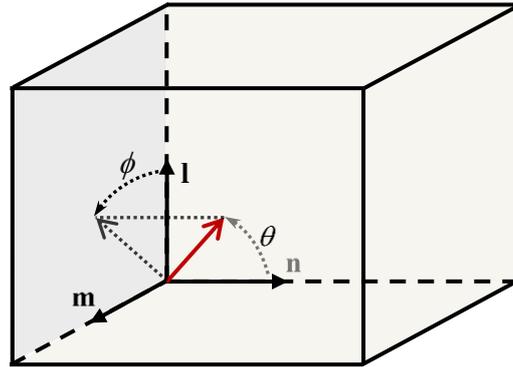


Figure 6. Cellule élémentaire avec le repère cartésien utilisé, et les coordonnées sphériques du vecteur direction dessiné ici en rouge.

Les angles polaire et azimutal du vecteur direction d'une super-particule sont tirés aléatoirement à l'initialisation. Puisqu'on est à l'équilibre thermodynamique, en général, il faut assurer une distribution homogène et uniforme des directions sur un angle solide 4π . Donc on peut calculer les angles en utilisant un couple de nombre aléatoire, a_1 et a_2 indépendants, compris entre 0 et 1, de la manière suivante :

$$\begin{cases} \theta = a_1\pi \\ \phi = a_2 2\pi \end{cases} \quad (\text{IV.3.14})$$

L'ensemble des directions initialisées est compris de manière uniforme dans un angle solide 4π .

IV.4. Traitement des super-particules dans la simulation

La structure du code MC s'articule autour de deux phases, qui peuvent être entrelacées ou complètement découplées, de traitement des super-particules présentes au court de la simulation. Ces deux phases sont le mouvement et les interactions des super-particules. Pour le MC espace réciproque, c'est uniquement la phase d'interaction qui intervient. Dans les méthodes MC, chaque échantillon stochastique (super-particule), a un temps de vol libre, t_l , après lequel la super-particule subit une interaction ; ce temps de vol libre est calculé pour chaque particule et à chaque pas de temps selon⁶⁵ :

$$t_l = -\frac{\ln(r)}{W_{\max}}, \quad (\text{IV.4.1})$$

où r est un nombre aléatoire compris entre 0 et 1, et W_{\max} est le taux d'interaction maximal de tous les phonons de la même branche de polarisation que celle de la super-particule considérée.

Le calcul de tous les taux d'interaction a toujours été considéré comme une tâche très complexe. C'est pourquoi il a, souvent, été contourné via l'utilisation de l'approximation du temps de vie.^{63, 64} L'utilisation de cette approximation, même si elle permet d'économiser du temps de calcul, éclipse des détails et des caractéristiques physiques émanant des processus phonon–phonon individuels.^{26, 27} Quand cette approximation est utilisée, on ne peut pas avoir une implémentation directe et rigoureuse des lois de conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie. En plus, l'interaction anharmonique des phonons est inélastique par nature et strictement parlant le concept de temps de relaxation ne peut pas en constituer une représentation réaliste.²⁶ Pour ces raisons déjà mentionnées, nous avons entrepris un calcul numérique direct (nécessairement très lourd) des taux d'interaction de tous les processus individuels d'interaction (voir chapitre III).

Ainsi sur chaque pas de temps le temps de vol libre de chaque super-particule est tiré aléatoirement, mais selon une distribution dépendant des taux d'interaction comme cela est expliqué dans l'article de Jacoboni & Reggiani⁹² et par la suite dans le livre de Jacoboni & Lugli.⁶⁵ Les super-particules se déplacent avec des trajectoires linéaires, séparés, éventuellement, par des interactions élastiques (avec les bords, avec des impuretés, etc.) jusqu'à la fin de leur temps de vol libre. Si celui-ci est plus grand que le pas de temps de la simulation ($t_l > \Delta t$), le déplacement de la super-particule se termine à la fin du pas de temps, et un autre temps de vol libre est tiré aléatoirement au pas de temps suivant. Si la super-particule est supposée subir une interaction pendant le pas de temps actuel ($t_l \leq \Delta t$) elle est déplacée jusqu'au moment de l'interaction. Si la particule subit un *self-scattering* et $t_l \leq \Delta t$ un deuxième temps t_2 est tiré au sort après l'interaction et ainsi de suite jusqu'au temps Δt .

Les versions de solveurs MC pour les phonons que l'on peut trouver dans la littérature,^{60, 64, 73} utilisent deux phases indépendantes : une phase de dérive (déplacement) ;

puis une phase d'interactions. Le découplage de l'ETB en deux équations de transport sans collision et d'une équation de diffusion par interaction introduit une erreur en temps du premier ordre.⁴⁸ Pour pallier à ce problème dans la majorité de nos codes nous ne découplons pas l'ETB en deux phases de traitement. Chaque particule de la simulation est sondée, et déplacée jusqu'à ce qu'elle subisse éventuellement une interaction au cours du pas de temps. La procédure d'interaction lui est tout de suite appliquée avant de poursuivre le traitement des autres particules de la simulation.

IV.4.a. Déplacement des super-particules

Le mouvement des super-particules dans la simulation est régi par leurs vitesses de groupe selon une direction spécifique. La position des phonons est suivie en utilisant une intégration explicite du temps du premier ordre donnée par :

$$\begin{cases} \mathbf{r}(t + \Delta t) = \mathbf{r}(t) + \mathbf{v}_g \Delta t & \text{si } t_l > \Delta t \\ \mathbf{r}(t + t_l) = \mathbf{r}(t) + \mathbf{v}_g t_l & \text{si } t_l \leq \Delta t \end{cases} \quad (\text{IV.4.2})$$

Durant leur déplacement les super-particules peuvent changer de volume de contrôle ou entrer en collision avec les bords du domaine de simulation. Quand une super-particule change de cellules, l'énergie, la population des phonons et le flux sont mis à jour.

IV.4.a.i. Collisions avec les bords

Au cours de leur déplacement, les super-particules peuvent entrer en collision avec les bords latéraux du domaine de simulation. Une collision avec ces bords a pour effet de réfléchir la particule dans le domaine de simulation sans changement de son énergie. Selon la rugosité de la surface ; ces phonons peuvent être réfléchis d'une manière spéculaire, ou d'une manière diffusive. Mais cela dépend de la nature de la surface et de sa rugosité comparée à la longueur d'onde du phonon incident. Ziman a proposé une méthode simple avec un traitement phénoménologique pour appréhender ces interactions de surface qui sont assez complexe.²⁷ Cette approche se base sur un paramètre unique, d , que nous appellerons rugosité de surface. Pour $d = 0$ la surface est purement spéculaire, pour $d = 1$ la surface est totalement diffusive.

A chaque collision d'une super-particule avec un bord latéral, un nombre aléatoire, r , est tiré entre 0 et 1 :

- ❖ Si $r > d$ la super-particule incidente est réfléchi d'une manière spéculaire avec conservation de la composante selon l'axe de déplacement de sa direction. Trois cas se présentent : *i*) nous avons une collision avec un bord latéral perpendiculaire à l'axe **l** (voir Figure 6) *ii*) nous avons une collision avec un bord latéral perpendiculaire à l'axe **m**, *iii*) nous avons une collision avec une arête d'intersection des deux bords perpendiculaires aux axes **l** et **m**.

- Dans le cas *i*) la direction résultante est obtenue en effectuant uniquement l'opération suivante sur l'angle azimutal du vecteur direction

$$\varphi_r = \pi - \varphi_i, \quad (\text{IV.4.3})$$

avec φ_r l'angle azimutal du vecteur direction de la super-particule réfléchi et φ_i est l'angle azimutal du vecteur direction de la super-particule incidente. Ce qui nous donne une composante selon l'axe des x du vecteur direction de la super-particule réfléchi opposée à celle de l'incidente.

- Dans le cas *ii*) la direction résultante est obtenue en prenant l'angle azimutal du vecteur direction de la super-particule réfléchi comme opposé à celui de la super-particule incidente. Cela nous donne une composante selon l'axe des y du vecteur direction de la super-particule réfléchi opposée à celle de l'incidente.

- Dans le cas *iii*) la direction résultante est obtenue en effectuant uniquement l'opération suivante sur l'angle azimutal du vecteur direction

$$\varphi_r = \pi + \varphi_i. \quad (\text{IV.4.4})$$

Ce qui nous donne des composantes selon les axes des x et des y , du vecteur direction de la super-particule réfléchi opposées à celles de l'incidente.

- ❖ Si $r \leq d$ la super-particule incidente est réfléchi d'une manière diffusive. Dans ce cas sa direction est rendue aléatoire en s'assurant que sa direction latérale

(composantes selon les axes \mathbf{l} et \mathbf{m}) est redirigée vers l'intérieur du domaine de simulation.

IV.4.b. Interactions intrinsèques des phonons

Il faut noter que les taux d'interactions sont mis à jour en fonction de l'évolution des nombres d'occupation moyens, à chaque n pas de temps de simulation, mais à une fréquence assez récurrente. La fréquence de la mise à jour doit être précisée par l'utilisateur. Un compromis est à trouver entre le temps de calcul et la précision des simulations pour chaque configuration. Notons que pour toutes les simulations dans l'espace réciproque uniquement, la mise à jour est faite à chaque pas de temps. Cela nous donne ainsi une précision supplémentaire et rend la simulation plus proche de la réalité physique.

Dans le cadre de notre schéma numérique, nous n'avons pas besoin de recalculer les taux d'interaction pour les mettre à jour. En effet, leur calcul initial requiert déjà un temps important, donc ce serait très lourd de devoir refaire le calcul complet à chaque fois que nous voulons les mettre à jour au cours de la simulation MC. Pour éviter cela, les taux d'interaction sont initialement calculés en factorisant, les nombres d'occupation moyens et les facteurs de couplages anharmoniques qui sont considérés comme des paramètres ajustables, des équations (III.1.14)–(III.1.17) (voir section III.4).

Ces taux d'interaction ainsi calculés, et qui dépendent des vecteurs d'onde et des branches de polarisation, sont lus et stockés au début de chaque simulation MC. Ensuite, les taux d'interaction réels sont calculés en multipliant les résultats partiels des taux d'interaction par les nombres d'occupation moyens et la constante de couplage anharmonique correspondante.

Durant la simulation, la mise à jour des taux d'interaction est faite de la même façon en mettant les nombres moyens d'occupation adéquats, qui évoluent au cours du temps de simulation. Ainsi, cette procédure permet l'ajustement de ces paramètres à volonté sans qu'il y ait besoin de refaire le calcul complet des taux d'interaction à chaque itération.

IV.4.b.i. Procédure de traitement

Toutes les super-particules dans le domaine de simulation ont un temps de vol libre choisi aléatoirement selon l'équation (IV.4.1). À chaque pas de temps, les super-particules sont sondées, et si le temps de vol libre de la super-particule se termine durant le pas de temps actuel, alors la particule subit une collision. Un nombre est tiré aléatoirement entre 0 et 1 pour voir si cette super-particule va subir une interaction effective ou un « self-scattering ».

Étant donné que les nombres aléatoires sont générés avec des distributions de probabilité en accord avec les taux d'interaction calculés, en utilisant la technique du cas discontinue (« Discrete Case Technique »),⁶⁵ dans le premier cas de figure (cas d'une interaction effective ou non « self-scattering »), le même nombre aléatoire indiquera quel processus d'interaction la super-particule va subir.

Il n'y a pas besoin de vérifier la conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie quand un processus d'interaction est choisi, puisque seuls les processus respectant les lois de conservation ont des probabilités d'interaction non nulles. Ainsi la loi de la conservation de l'énergie est directement mise en œuvre dans le solveur MC.

Le choix d'un processus d'interaction pour une super-particule d'une branche de polarisation et vecteur d'onde donnés, inclut aussi le choix direct des branches de polarisation des deux autres super-particules qui sont impliquées dans cette interaction à trois-phonons. Pour finaliser le choix du processus d'interaction, il reste à spécifier les vecteurs d'onde des deux super-particules impliquées dans l'interaction en plus de celle à l'origine de l'interaction. Le code sélectionne ces vecteurs d'onde en utilisant une procédure aléatoire qui prend en considération la participation, des paires possibles de vecteurs d'onde de phonons fils constituant l'état final, à l'amplitude de chaque processus spécifique. De plus, on garantit par notre approche la conservation rigoureuse, stricte ou non (processus Umklapp), de la quantité de mouvement, ce qui n'avait jamais été mis en œuvre antérieurement dans un solveur MC pour les phonons. Les statistiques des participations sont extraites directement au cours du calcul des taux d'interaction (voir IV.4.b.ii).

Ensuite deux procédures de traitement sont possibles selon que le processus d'interaction est de classe 1 ou de classe 2.

Dans le cas d'une interaction de type 1, le code crée deux nouvelles super-particules dont les propriétés correspondent à celles des phonons « fils » de l'interaction, et il élimine la super-particule initiale de la simulation. Cela s'accompagne par une mise à jour de toutes les grandeurs physiques de la simulation.

Si l'interaction choisie est de type 2, le code suit une procédure semblable à la précédente. Mais, cette fois le phonon promoteur de l'interaction a besoin d'un autre phonon avec lequel interagir, pour s'annihiler tous les deux et en créer un troisième. Le code cherche parmi toutes les super-particules de la distribution disponible, une dont les propriétés correspondent à celle du phonon désigné par le processus d'interaction. Si elle est trouvée, elle est éliminée de la simulation en compagnie de la super-particule promotrice, et une nouvelle super-particule est créée, correspondante au phonon résultant du processus d'interaction sélectionné.

D'autre part, si pour un processus de classe 2 le code n'arrive pas à trouver une super-particule dans le domaine de simulation qui a les propriétés requises, la ligne de conduite commune consiste à faire subir un *self-scattering* à la super-particule promotrice au lieu du processus choisi. Cela est le cas quand toutes les populations des phonons (même celles à l'équilibre thermodynamique) sont modélisées dans la simulation. Cependant, dans les cas où uniquement les phonons de déviation sont modélisés, nous avons choisi de permettre l'accomplissement de l'interaction. Cela signifie que, dans ce cas uniquement, la super-particule promotrice est éliminée de la simulation et une super-particule avec les propriétés du phonon fils est créée. Evidemment toutes les grandeurs physiques sont mises à jour, même celle concernant la population de l'état phononique du deuxième phonon parent de l'interaction de classe 2.

Dans certaines des versions du code, quand le concept de *nonon* (voir section IV.7) est utilisé, si une super-particule qui possède les propriétés du deuxième phonon « parent » n'est pas trouvée, un *nonon* possédant ces propriétés peut être créé à la place. Pour les interactions de classe 2 et de classe 1 (toujours avec les *nonons*), le code cherche d'abord à éliminer des éventuels *nonons* présent dans le domaine de simulation et qui possèdent les

propriétés des phonons de l'interaction, avant de créer de nouvelles super-particules pour accomplir un processus d'interaction.

Notons qu'après une interaction, s'il n'y a pas eu de *self-scattering*, de nouvelles super-particules sont créées. Ces nouvelles particules sont traitées directement par une sous-routine. Cette dernière reprend la procédure explicitée dans toute la présente section. La seule différence est que cela n'est pas effectué pour un pas de temps de simulation complet, mais pour ce qui en reste, *i.e.* la durée entre l'interaction de la particule promotrice et la fin du pas de temps.

Pour les codes MC résolvant l'ETB dans l'espace réel, il faut également opérer un choix pour les directions des vecteurs d'onde des phonons fils résultant d'un processus d'interaction. Nous avons adopté une démarche originale que nous évoquerons en sous-section IV.4.b.iii.

IV.4.b.ii. Participations des états phononiques fils

La procédure de sélection des vecteurs d'onde des états finaux pour un processus d'interaction donnée, présentée dans la sous-section précédente, impose la conservation de la quantité de mouvement. En effet, seuls les couples de vecteurs d'onde, de phonons fils, assurant la conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie peuvent être sélectionnés, parce que eux-seuls sont comptabilisés. De plus, comme déjà mentionné, le code sélectionne aléatoirement un couple de vecteurs d'onde des deux super-particules filles, en utilisant une loi de distribution qui dépend de la participation, à l'amplitude du processus considéré, pour chaque paire possible de vecteurs d'onde de phonons fils constituant l'état final. Cette approche augmente la précision des simulations et les rapprochent encore plus de la réalité physique.

Lors du calcul des taux d'interaction, nous construisons directement des lois de probabilités liées à la participation des couples d'états phononiques fils (les phonons i et j dans une interaction où le phonon k est le phonon promoteur) à l'amplitude du taux d'interaction du processus d'interaction spécifique en question qui est défini par 4 entrées (ou données) qui sont : le mode de polarisation du phonon k , la norme de son vecteur d'onde (et ainsi son énergie aussi), le mode de polarisation du deuxième phonon i participant à

l'interaction, et enfin le mode de polarisation du troisième phonon j participant à l'interaction. Pour un processus défini ainsi, il existe un certain nombre de couples d'états phononiques fils qui participent à l'amplitude du taux d'interaction de ce processus. Ce qu'on appelle dans ce cas, un « état phononique fils » est précisé par le vecteur d'onde du phonon fils, qui nous donne accès directement à son énergie aussi, comme le mode de polarisation est déjà connu grâce à la nature du processus d'interaction sélectionné.

Pour établir les participations des couples d'états phononiques fils, nous utilisons une discrétisation, selon la norme des vecteurs d'onde des phonons fils, qui est identique à celle utilisée pour le phonon promoteur. Disposant de cette discrétisation, pour chaque couple de vecteurs d'onde de phonon fils qui valident la conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie pour le processus d'interaction en question, nous calculons sa participation à l'amplitude totale du processus d'interaction. Etablissant ainsi une distribution de probabilité normalisée pour ces couples de vecteurs d'onde. Dans le code MC le tirage d'un nombre aléatoire entre 0 et 1 détermine, en se basant sur la distribution de probabilité des participations, le couple de vecteur d'onde des phonons fils, finalisant ainsi la spécification du processus d'interaction.

Notons que ces participations sont mises à jour régulièrement durant la simulation tout comme les taux d'interaction. La connaissance des vecteurs d'onde des phonons fils en plus de la connaissance préalable de leurs modes de polarisation, permet de préciser les nombres d'occupation moyens des phonons i et j intervenant dans l'interaction. Ces nombres d'occupation moyens interviennent dans l'expression de chaque taux d'interaction élémentaire, et ainsi avec le changement des populations au cours de la simulation la participation d'un couple de vecteurs d'onde de phonon fils à un processus donné va évoluer elle aussi.

IV.4.b.iii. Statistiques directionnelles des vecteurs d'onde fils

Une des originalités de ce travail de recherche est l'utilisation de statistiques directionnelles extraites lors du calcul complet des taux d'interactions phonon–phonon et l'établissement des participations des couples de vecteurs d'onde des phonons fils. Cette procédure remplace l'artéfact numérique rencontré fréquemment dans la littérature visant à essayer de respecter la règle de conservation de la quantité de mouvement. L'approche en

question consiste à « *randomiser* » la direction du vecteur d'onde de la moitié des phonons subissant une interaction intrinsèque (phonon–phonon), pour approcher la contribution directe des processus U à la résistivité thermique.⁶⁴

Pour notre part, nous utilisons ces statistiques pour donner des directions des vecteurs d'onde des phonons résultant d'une interaction, qui sont plus en harmonie avec la réalité physique et avec le calcul complet des taux d'interaction trois-phonons. Cette approche est évidemment nécessaire uniquement pour les codes MC résolvant l'ETB dans l'espace réciproque et l'espace réel simultanément. Pour les codes MC résolvant l'ETB uniquement dans l'espace réciproque le concept de direction est sans objet.

Pour la détermination des états finaux après une interaction anharmonique, faisant intervenir le phonon promoteur k et : dans le cas d'une interaction de classe 1 les deux phonons fils i et j ; dans le cas d'une interaction de classe 2 un autre phonon i et le phonon fils j , nous utilisons trois probabilités :

1. St_1 : Sachant que $\mathbf{q}_k \cdot \mathbf{q}_i \geq 0$ la probabilité que $\mathbf{q}_k \cdot \mathbf{q}_j < 0$
2. St_2 : Sachant que $\mathbf{q}_k \cdot \mathbf{q}_i < 0$ la probabilité que $\mathbf{q}_k \cdot \mathbf{q}_j < 0$
3. St_3 : La probabilité que $\mathbf{q}_k \cdot \mathbf{q}_i \geq 0$.

Dans le cas d'une interaction de classe 1, on crée deux nouvelles super-particules i et j . La particule i est créée en premier. La probabilité St_3 est utilisée pour déterminer la direction de i . Une fois celle-ci déterminée, la probabilité St_1 est utilisée pour déterminer la direction de j si la particule promotrice k et la particule fille i ont la même direction. Sinon, la probabilité St_2 est utilisée pour déterminer la direction de la particule j . Évidemment, cela est rendu possible grâce au tirage de nombres aléatoires compris entre 0 et 1 qui sont comparés à ces probabilités.

Dans le cas d'une interaction de classe 2, on recherche une particule i qui va s'annihiler avec la particule promotrice pour créer la particule j . La probabilité St_3 est utilisée pour la sélection de la particule i parmi les super-particules disponibles dans la simulation. Une fois i sélectionnée, sa direction étant connue, les probabilités St_1 et St_2 sont utilisées pour déterminer la direction de j , selon que k et i ont la même direction ou non, respectivement.

Nous avons déjà précisé que pour les interactions de classe 2 dans le cas où seules des super-particules de déviation sont simulées l'interaction est systématiquement considérée comme complète ; même si on ne trouve pas une super-particule dans la simulation dont les propriétés correspondent à la particule i participant à l'interaction. Dans ce cas de figure, nous utilisons la probabilité St_3 pour déterminer si le phonon k est supposé avoir la même direction que i ou non, et ensuite la probabilité St_1 ou St_2 est utilisée, respectivement, pour déterminer la direction relative de j par rapport à k .

IV.5. Conditions aux limites

Pour les conditions aux limites selon l'axe de propagation, nous imposons des conditions iso-thermes aux deux extrémités de l'échantillon (axe z). C'est ce qui se pratique pour des calculs de conductivité thermique qui constitue notre exemple de validation du code MC. Ces conditions aux limites vont induire un gradient de température dans la structure.

Dans la littérature, deux approches sont utilisées pour imposer de telles conditions aux limites : 1) Des faces isothermes aux extrémités du domaine de simulation,⁶⁰ ou 2) Des cellules isothermes aux bords du domaine de simulation.⁶⁴

Dans les deux cas ces « barrière » isothermes agissent comme des « corps noirs », avec une thermalisation de chaque phonon qui y pénètre (la super-particule est éliminée de la simulation), et avec une émission, au cours du temps et selon leurs températures fixées, des phonons dans le domaine de simulation.

Mazumder et Majumdar donnent dans leur « fameux » article à l'origine de la nouvelle vague de code MC pour le transport des phonons,⁶⁰ une expression qui fixe le nombre de phonons à émettre par une barrière limite, de superficie égale à A pendant un intervalle de temps Δt . Cette expression est facilement retrouvable en calculant le nombre moyen de phonons dans un volume infinitésimal, divisé par le temps moyen que met chaque phonon pour sortir de ce volume. Avec notre discrétisation cela aboutit à la formule suivante

$$N_{face} = \frac{1}{2\pi^2} A \Delta t \sum_p \sum_q \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar \omega_p(q)}{k_B T_{face}}\right) - 1} \langle \mathbf{v}_g(\omega_p(q)) \cdot \mathbf{n} \rangle q^2 \Delta q, \quad (IV.5.1)$$

où $\mathbf{v}_g(\omega_p(q)) \cdot \mathbf{n}$ représente la vitesse de groupe du phonon normal à la face en question. On utilise la distribution de Bose-Einstein à la température de la face isotherme. En général, les phonons sont émis d'une face dans toutes les directions (sur un angle solide 2π si nous considérons uniquement les phonons émis dans le domaine de simulation). La vitesse normale doit être alors moyennée sur toutes les directions comme indiqué par les *braket* (chevrons) entourant le produit scalaire dans l'équation précédente. La vitesse de groupe moyenne des phonons normal à la surface isotherme est égale à

$$\langle \mathbf{v}_g(\omega_p(q)) \cdot \mathbf{n} \rangle = \frac{1}{4} |\mathbf{v}_g|. \quad (IV.5.2)$$

Evidemment N_{face} est aussi divisé par le facteur d'échantillonnage pour obtenir le nombre de super-particule à injecter dans le domaine de simulation.

Dans les cas où seules les particules de déviations sont simulées, au lieu d'utiliser la distribution de Bose-Einstein à la température limite de la face dans l'équation (IV.5.1), on utilise la différence entre une distribution de Bose-Einstein à la température fixée de la face isotherme, et une distribution de Bose-Einstein à la température de la population de l'équilibre de référence du domaine de simulation.

Pour le deuxième type de « barrière » limite isotherme qu'est la cellule de bord isotherme, identique à la configuration retenue dans l'article de Lacroix *et al.*⁶⁴, les populations sont initialisées comme dans le cas de n'importe quelle cellule à l'équilibre thermodynamique mais cette fois à la température de la condition aux limites. Cependant, pour garder une certaine « histoire » des super-particules, on peut songer à améliorer l'approche de Lacroix *et al.* Il faut se rappeler que pour certaines super-particules plusieurs pas de temps sont nécessaires avant qu'elles sortent d'une cellule donnée. Bien entendu, cela dépend de la discrétisation en taille des cellules. Donc, au lieu de réinitialiser la cellule isothermique entièrement à chaque pas de temps, ce qui pourrait contribuer à fausser la simulation, on calcule la différence entre des distributions de Bose-Einstein à la température fixée et les populations réelles dans les cellules isothermes. Pour chaque état phononique, si

la population réelle est plus faible que la distribution de Bose-Einstein à la température donnée, on initialise des super-particules pour combler cette différence.

Nous interdisons aussi les interactions phonon–phonon dans les cellules isothermes, pour éviter une stagnation dans certains états phononiques de faibles vitesses de groupe. Ces états présentent, en général, des grandes densités d'états. Donc la recombinaison d'autres phonons vers les premiers est favorisé de surcroit. Cela entraînerait un écart par rapport à la température fixe de ces cellules isothermes.

Cette procédure nous permet de nous assurer que tous les types de phonons initialisés peuvent se déplacer et être introduits dans le reste du domaine de simulation. Notons, que les phonons initialisés dans les cellules isothermes ont des directions qui couvrent un angle solide 4π . Ceux qui vont vers la face externe du domaine de simulation sont éliminés de la simulation.

IV.6. Flux de chaleur, conductivité thermique, et température

IV.6.a. Calcul du flux

Le flux de chaleur dans le domaine de simulation est tiré du mouvement des super-particules dans ce domaine. Chaque passage d'une super-particule à travers une interface qui sépare une cellule de l'autre, est comptabilisé dans le flux de l'interface considérée de la manière suivante

$$\varphi = \varphi \pm \frac{S\hbar\omega_p(q)}{A\Delta t}, \quad (\text{IV.5.3})$$

où A est la surface de l'interface ($L_x L_y$) et φ est le flux net d'énergie par unité de surface et unité de temps, et S le facteur d'échantillonnage. Le signe positif correspond à un passage de la super-particule dans le sens positif, selon l'axe des z , opposé au gradient de température qui s'installe dans la structure à cause des conditions aux limites. Le signe négatif est pour un passage dans le sens opposé.

Dans le cas où uniquement les super-particules de déviation sont simulées, il suffit de comptabiliser le mouvement de ces phonons pour calculer le flux net. Le reste de la population de phonon qui n'est pas simulée, est supposée être à l'équilibre

thermodynamique et donc on a un déplacement isotrope et homogène des phonons dans tous les sens pour une même température. Ces phonons à l'équilibre thermodynamique se déplacent de manière isotrope et ainsi la partie du flux dû à ces phonons s'annule dans le bilan net.

Les flux à travers chaque interface, donnent accès au flux net moyen dans la structure simulée à travers la moyenne des flux de toutes les surfaces de contrôle dans le domaine de simulation.

Le flux net dans le domaine de simulation le long de l'axe des z (axe \mathbf{n}) peut être calculé par une approche différente selon la relation suivante⁶⁴

$$\varphi = \frac{1}{V} \sum S \hbar \omega_p(q) \mathbf{v}_g(\omega_p(q)) \cdot \mathbf{n}, \quad (\text{IV.5.4})$$

où V est le volume total du domaine de simulation, S le facteur d'échantillonnage, \mathbf{n} le vecteur normal au plan latéral qui est perpendiculaire à l'axe des z . La somme est effectuée sur toutes les super-particules présentes dans la simulation. La remarque, faite précédemment pour les cas où on simule seulement les particules de déviation, est valable pour cette approche également.

IV.6.b. Calcul de la conductivité thermique

Pour calculer la conductivité thermique d'un matériau, nous imposons les conditions aux limites de faces isothermes ou de cellules isothermes avec une faible différence de température, en général de l'ordre de 10 K. Les températures extrêmes sont centrées sur la température à laquelle nous souhaitons avoir la conductivité thermique.

Le calcul de la conductivité thermique s'appuie sur l'inversion de la loi de Fourier. Nous supposons bien sûr que nous sommes dans un cas de figure où la loi de Fourier avec ces propriétés macroscopiques est valable et applicable. Nous sommes, donc, en « régime de diffusion » et la simulation a atteint son régime permanent.

Le flux par unité de surface et par unité de temps étant calculé, il suffit de calculer le gradient de température selon la direction de propagation (pour simplifier les choses,

sachant que les conditions aux limites sont imposées selon cet axe), et enfin d'inverser la loi de Fourier comme suit :

$$\kappa = -\frac{\varphi}{\nabla T}, \quad (\text{IV.5.5})$$

où κ est la conductivité thermique.

Les deux approches explicitées dans la sous-section précédente pour calculer le flux, donne des valeurs de conductivité thermique très proches.

IV.6.c. Calcul de la température

Le concept de température n'existe pas en l'absence d'équilibre thermodynamique. Une population de phonons réelle ne donne accès à aucune température locale si la distribution ne suit pas une loi de Bose-Einstein.

Mais pour des raisons pratiques, comme par exemple pour établir des profils de température dans le domaine de simulation, ce qui permet d'évaluer notamment le régime dans lequel le transport de chaleur se trouve (en un régime balistique, non stationnaire, ou en régime de diffusion), nous calculons une pseudo-température. Cette pseudo-température est plus facile d'accès pour un observateur que l'énergie réelle de la cellule que nous avons à notre disposition.

Pour obtenir une pseudo-température locale, on suppose qu'il y a un pseudo-équilibre thermodynamique dans la cellule. A partir de l'énergie réelle dans la cellule, nous inversons l'équation (IV.3.3).^{60, 64} L'inversion est faite grâce à un algorithme hybride de Newton-Raphson et de dichotomie.⁹³

IV.7. Particule de déviation négative ou « *nonon* »

S'inspirant des travaux de Hadjiconstantinou *et al.*⁹⁴ qui ont cherché à produire des codes MC, pour la résolution de l'ETB linéarisé avec l'ATR, avec une réduction de la variance, nous avons décidé de simuler des particules de déviations négatives comme nous simulons celles pour des déviations positives.

Les super-particules de simulation peuvent ainsi représenter des déviations positives (comme nous l'avons déjà précisé) ou négatives selon le signe de la déviation, de la population réelle par rapport à une distribution référence fixe (ou non) à l'équilibre thermodynamique, pour un état donné. Nous appelons les particules de déviation négative des « *nonons* » par commodité de langage.

Ce mot, renvoie à l'absence d'un phonon. Le concept des *nonons* est assez simple, et quasi-équivalent à celui des particules de déviations positives ou à proprement dire aux super-particules représentant les phonons. L'idée principale est que comme les super-particules représentant les phonons de déviations usuellement, représentent un certain surplus de quanta d'énergie par rapport à l'équilibre en question, les *nonons* représentent un déficit de quanta d'énergie.

L'interaction d'un *nonon* dans le cadre des interactions anharmoniques à trois-phonons est la réciproque de celle d'un phonon. Quand un phonon promoteur interagit cela implique son annihilation parce que nous considérons que les termes de sortie pour les états considérés. On constate ainsi une perte d'un quantum d'énergie de l'état phononique auquel appartenait cette particule. Ce processus est équivalent à la création d'un *nonon*. L'annihilation d'un *nonon* dans le cadre d'une interaction équivaut à un gain d'un quantum d'énergie dans l'état phononique en question, ou la création d'un phonon.

En se rappelant que dans l'expression du taux net d'une interaction de classe 1 ou de classe 2 on trouve les facteurs de nombres d'occupation moyens correspondant à une absorption (ce que nous considérons habituellement dans le MC pour les interactions des phonons, et qui correspondent aux termes de sorties), mais aussi ceux de l'émission qui vont correspondre maintenant aux termes d'absorption d'un *nonon*. On peut ainsi déduire les taux d'interactions pour les *nonons*, à partir des expressions générales usuelles utilisées pour les phonons (équations (III.1.14), (III.1.15), (III.1.16) et (III.1.17)) mais cette fois en remplaçant les coefficients impliquant les nombres d'occupation moyens par $(n_k + 1)n_i n_j$ pour les processus de classe 1, et par $(n_k + 1)(n_i + 1)n_j$ pour les processus de classe 2.

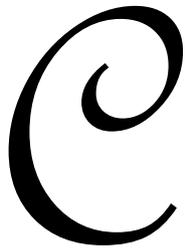
Cela simplifie aussi le traitement des taux d'interaction, puisque nous n'avons pas de nouveaux taux d'interaction à calculer, car ceux des phonons sont calculés numériquement en factorisant, les facteurs impliquant les nombres d'occupation moyens, des expressions générales.

En revanche, dans les codes MC, le traitement des *nonons* va impliquer le changement des sous-routines de spécification des états finaux, parce que nous devons maintenant considérer 4 classes d'interactions au lieu de 2 : deux pour les phonons et deux pour les *nonons*.

De plus, pour optimiser le fonctionnement du code MC avec des particules de déviation, le traitement des états finaux est aussi modifié pour prendre en considération que le fait de créer un phonon est équivalent à la destruction d'un *nonon* et vice-versa. Ainsi quand par exemple dans le cadre d'une interaction de classe 1 d'un phonon, nous avons besoin de créer deux phonon *i* et *j*, le code cherche d'abord s'il y a des *nonons* appartenant aux mêmes états phononiques que ces deux phonons pour les éliminer, le cas échéant, avant de procéder à la création de nouvelles super-particules représentant les gains de quanta d'énergie dans les états phononiques en question, sinon. La même logique s'applique ainsi de suite pour toutes les classes d'interaction phononique et « *nononique* ». Cela aide à garder un nombre raisonnable de particules simulées.

Il faut aussi noter, que dans le cas de l'utilisation des *nonons* pour l'étude du transport des phonons, un passage d'un *nonon* dans un sens est équivalent au passage d'un phonon dans le sens opposé, et cela doit être pris en compte dans le calcul des flux de chaleur.

V Dynamique des phonons



oncevoir des dispositifs dont la fonctionnalité est dérivée du contrôle du comportement des phonons devient possible.⁹⁵ Cette émergence de l'ingénierie phononique qui promet l'avènement de solutions thermiques novatrices dans les nano-dispositifs,⁹⁶ parmi une multitude d'autres applications, augmente l'intérêt de la communauté scientifique pour les phonons. Le contrôle du comportement des phonons est basé sur le réagencement du spectre phononique pour moduler les interactions des phonons et leurs propriétés de transport.¹⁷ Cela consiste par exemple à interdire ou favoriser certains processus d'interactions, que cela soit avec d'autres particules ou d'autres phonons, et augmenter ou diminuer la conductivité thermique. Ainsi, comme cela a été évoqué dans l'introduction, sachant que la dynamique des porteurs photo-excités dans les semi-conducteurs polaires est fortement influencé par celle des phonons optiques polaires de centre de zone, on pense que la compréhension et le contrôle de la relaxation des phonons LO ouvre l'opportunité de contrôler la relaxation des porteurs par le biais de l'ingénierie phononique et plus précisément celle qui façonne les interactions à trois-phonons. Par exemple, limiter/ralentir la relaxation des phonons LO aidera à améliorer le rendement des cellules photovoltaïques de 3^{ème} génération.⁹⁷

Cependant, des lacunes dans notre compréhension et dans notre connaissance complète des interactions phonon–phonon, entrave cette voie et réduit l'efficacité de toute ingénierie phononique. Néanmoins, il existe une littérature abondante sur les temps de vie expérimentaux des phonons optiques ;¹⁸⁻²⁰ mais les canaux de désintégration spécifiques à ces phonons ne peuvent pas être déterminés expérimentalement. Il y a aussi une multitude d'études théoriques sur les interactions phonon–phonon et la relaxation des phonons LO.²¹⁻²⁶ Les auteurs parviennent à reproduire les propriétés physiques observées expérimentalement ; toutefois, ils considèrent un nombre limité de type d'interactions possibles et s'imposent des approximations contraignantes en utilisant souvent, de surcroît, l'approximation du temps de relaxation.

Pour étudier la dynamique des phonons nous nous intéressons qu'à l'espace réciproque. Il est reconnu, par ailleurs, que les interactions phonon–phonon sont le type d'interaction prépondérant pour la relaxation des phonons optiques dans les semi-

conducteurs III-V à température ambiante.⁶³ Dans ce travail et pour l'étude dans l'espace réciproque seules les interactions phonon–phonon sont étudiées en ne considérant que les termes anharmoniques cubiques, dans le potentiel cristallin, qui donnent lieu aux interactions à trois-phonons. Ces dernières constituent le processus d'interaction dominant parmi les processus anharmoniques.^{73, 76} Ainsi l'Equation de Transport de Boltzmann (ETB) (éq. (I.4.1)) peut s'écrire dans ce cas de figure sous la forme suivante

$$\left. \frac{\partial f(t, \mathbf{q})}{\partial t} = \frac{\partial f(t, \mathbf{q})}{\partial t} \right|_{ph-ph}, \quad (\text{V.0.1})$$

où ph–ph indique les interactions trois-phonons. Comme indiqué dans le chapitre I, il est extrêmement difficile d'obtenir une solution déterministe de l'ETB, surtout si l'on veut éviter de prendre une longue liste d'approximations contraignantes.⁶⁰ Une des alternatives est l'utilisation des techniques Monte Carlo (MC).

Pour étudier la dynamique des phonons dans l'espace réciproque nous nous intéressons à un problème particulier, d'intérêt majeur pour la communauté scientifique : la relaxation des phonons LO chauds de centre de zone. Dans ce chapitre nous présentons tout d'abord une méthode pour l'extraction de coefficients de couplages anharmonique adéquats pour les simulations MC. Puis nous abordons le schéma des simulations MC. Enfin nous présentons les résultats obtenus dans différents matériaux III-V et dans des matériaux de la colonne IV ainsi qu'une analyse des canaux de relaxation des phonons LO de centre de zone dans ces matériaux, qui permet d'avoir un meilleur aperçu de la dynamique de ces phonons.

V.1. Coefficients de couplage anharmonique

Les coefficients de couplage anharmonique sont considérés comme des paramètres ajustables dépendants du mode de polarisation et de la température, ce qui constitue une pratique commune.²⁴

Pour ajuster les valeurs de ces paramètres nous utilisons l'approche suivante, basée sur la théorie généralisée de Ridley, et la définition du temps de vie donnée par Ferry,⁸⁶ qui est équivalente à celle du single mode relaxation time (SMRT) de Srivastava (voir section III.2) : on peut dériver l'expression suivante pour la contribution des processus de

classe 1 (décomposition) au temps de vie du phonon optique de mode de polarisation k et de vecteur d'onde \mathbf{q}_k

$$\frac{1}{\tau_{\mathbf{q}_k}^{(1)}} = \frac{\Gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} \sum_{i,j} \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} (\bar{n}_i + \bar{n}_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, -\mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k - \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j, \quad (\text{V.1.1})$$

où les \bar{n} sont les distributions des phonons à l'équilibre thermodynamique.

Les processus de classe 2 (fusion) ont également un taux net en général.^{24, 25} Or ce taux de fusion est nul dans le cas des phonons LO de centre de zone parce que l'énergie ne peut être conservée car les phonons LO de centre de zone ont les plus grandes fréquences de vibration dans le diagramme de dispersion des matériaux semi-conducteurs. Néanmoins, il y a d'autres processus de fusion qui peuvent influencer la durée de vie des phonons LO de centre de zone, comme par exemple le processus de fusion des phonons appartenant à d'autres modes de polarisation ayant pour état final (à savoir, les phonons générés dans ce type de processus) des phonons LO de centre de zone. Toutefois, comme cela a été montré précédemment par Usher et Srivastava,⁹⁸ et comme l'indiquent nos calculs de taux d'interaction, les processus de fusion générant les phonons LO centre de zone sont très lents. Ainsi le temps de vie total des phonons LO de centre de zone est presque exclusivement égal à la contribution donnée par l'équation (V.1.1).

Ayant extrait une expression pour le temps de vie, nous pouvons dériver une valeur adéquate du coefficient de couplage anharmonique en ajustant la dépendance en température du temps de vie expérimental des phonons avec une seule constante de Grüneisen. Ainsi nous pouvons obtenir le temps de vie théorique des phonons LO à une série de températures, comme cela est montré sur la Figure 7 pour GaAs ($\Gamma_{LO} \approx 2.2 \times 10^9$ à 300 K) et InP. Compte tenu des incertitudes expérimentales des mesures et les écarts sur les valeurs, du temps de vie expérimentale des phonons LO de centre de zone, données par différentes références, la dépendance théorique en température du temps de vie donnée par le *single mode relaxation time* est assez satisfaisante. Ce bon accord valide, de facto, le modèle théorique développé et la procédure de calcul numérique utilisée.

Cependant, cette approche, pour ajuster les paramètres de Grüneisen en utilisant le single mode relaxation, ne reproduit pas la dépendance en température des temps de vie de phonons dans les simulations MC. Cela peut être dû à l'évolution du nombre moyen d'occupation des phonons promoteurs avec le temps. La distribution des phonons

promoteurs, elle-même, est négligée dans l'approche du *single mode relaxation time*, ainsi que dans toutes les définitions (et extraction d'expression) de temps de vie des phonons que l'on peut trouver dans la littérature. Dans ces définitions la distribution des phonons promoteurs et même la perturbation que peut subir cette fonction de distribution sont éliminées de l'expression finale du temps de vie. De plus, le taux de génération inclus dans la théorie du temps de relaxation du mode unique utilisé pour obtenir l'équation (V.1.1) ne se manifeste pas de la même manière dans la technique MC.

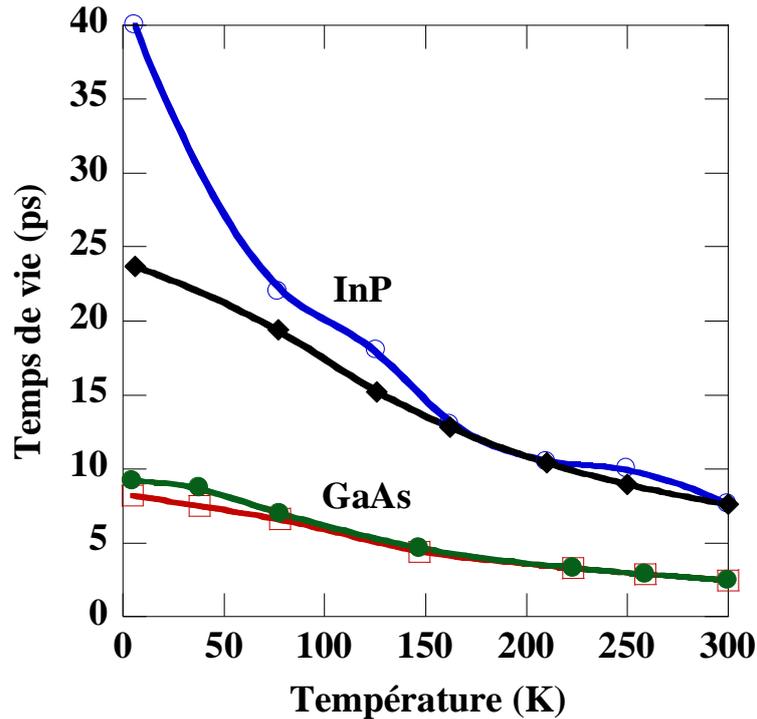


Figure 7. La dépendance en température du temps de vie des phonons LO de centre de zone, en utilisant le *single mode relaxation time*, dans GaAs (disques verts) et InP (losanges noirs), en ajustant dans chaque cas l'unique paramètre de Grüneisen pour reproduire la dépendance en température des temps de vie expérimentaux rapporté par Irmer *et al.*¹⁸ (carrés rouges) et Vallée¹⁹ (cercles bleus), respectivement. Les courbes sont tracées pour guider l'œil.

Dans le solveur MC, chaque état phononique q_p , est défini par le vecteur d'onde q et la branche de polarisation p , et il est représenté par une super-particule. Un certain taux d'interaction est attribué à cet état qui est relié uniquement à la probabilité qu'un phonon sorte de cet état. Alors que, les probabilités d'interaction induisant la génération d'un phonon dans l'état spécifique q_p n'y sont pas directement reliées, mais sont plutôt rattachées à la probabilité de phonons d'autres états, qui en interagissant entre eux, génèrent un phonon dans l'état phononique en question. Par conséquent, nous pouvons voir qu'il y a une

différence entre l'approche particulière des techniques MC et la théorie du temps de relaxation du mode unique.

Pour élaborer une approche convenable pour l'ajustement des coefficients de couplage anharmonique des phonons LO pour les simulations MC, nous essayons de reproduire le taux de sortie des phonons d'un état spécifique. Nous considérons, comme c'est fait dans le cadre de l'approche du temps vie du mode unique, tous les modes de polarisation de phonons, la distribution des phonons LO incluse, en équilibre thermodynamique. Nous appliquons, ensuite, une petite perturbation à la distribution du phonon promoteur. Ainsi, en utilisant l'équation (III.1.14) pour les taux de diffusion de classe 1 des phonons optiques, on peut obtenir l'expression suivante pour le taux de relaxation

$$\frac{1}{\tau_{\mathbf{q}_k}} = \frac{\Gamma^2 \hbar^2}{8\pi^2 \rho} \sum_{i,j} \int \frac{\omega_i \omega_j}{\omega_k} (\bar{n}_k + \Delta n_k) (\bar{n}_i + 1) (\bar{n}_j + 1) \delta_{\mathbf{q}_k - \mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j, -\mathbf{G}} \delta(\hbar\omega_k - \hbar\omega_i - \hbar\omega_j) d\mathbf{q}_i d\mathbf{q}_j, \quad (\text{V.1.2})$$

où la somme court sur tous les modes de polarisation et Δn_k est une petite perturbation appliquée à la distribution du phonon promoteur. Il est à noter que la perturbation ne doit être ni très faible ni très forte, par exemple, nous avons choisi, empiriquement, de prendre $\Delta n_k = n_k / 10$.

En factorisant le coefficient de couplage anharmonique dans l'équation (III.1.14) on peut ajuster des constantes de Grüneisen optiques convenables pour les simulations MC. Cette approche donnera des résultats satisfaisants en parfait accord avec les temps de vie expérimentaux, comme nous le montrerons dans la partie résultats V.3, mais cette opération doit être effectuée pour chaque température que nous souhaitons simuler ($\Gamma_{LO} \approx 3.3 \times 10^9$ pour GaAs à 300 K).

Nous n'avons pas trouvé de données expérimentales sur les temps de vie des modes acoustiques dans la littérature. Nous n'avons pas pu ajuster nos paramètres de couplage anharmonique en fonction de mesures expérimentales. Par conséquent, nous avons pris les constantes de Grüneisen des phonons acoustiques égales à leurs valeurs expérimentales. Cela peut être justifié dans les deux approches précédentes, par le faible impact que peuvent avoir, les constantes de Grüneisen des autres modes, sur la décomposition des phonons LO de centre de zone. La dépendance exclusive, des taux de relaxation de phonons LO, du coefficient de couplage anharmonique de leur mode, est une des raisons. L'autre étant que

les processus de classe 2 (recombinaison) générant les phonons LO de centre de zone sont tellement faibles que c'est à peine s'ils influencent la décomposition des phonons LO de centre de zone. Subséquemment, c'est le coefficient de couplage anharmonique spécifique aux phonons LO de centre de zone qui influence seul leur relaxation, et le choix des coefficients de couplage anharmonique des modes acoustiques est sans importance pour les applications traitées dans ce chapitre.

V.2. La configuration des simulations

La population de phonons LO de centre de zone est initialement mise hors équilibre par la relaxation de porteurs photo-excités. La valeur du nombre d'occupation moyen de la population hors équilibre est pour certaine des simulations extraite de simulations MC des porteurs,^{99, 100} dans lesquelles les porteurs sont excités par une pulsion Laser. Les autres simulations que nous présentons sont menées avec une perturbation initiale choisie de manière adéquate, faible ou forte selon les nécessités et objectifs de la discussion.

Nous utilisons une discrétisation en vecteur d'onde de l'espace réciproque, au lieu de la plus classique discrétisation en pulsation ou énergie (voir section IV.1). La longueur de la direction $\Gamma-X$, qui représente la zone de Brillouin dans notre approche isotrope, est divisée en 100 segments. Chaque segment d'amplitudes de vecteurs d'onde est représenté par sa valeur médiane, *i.e.*, dans le GaAs la premier segment (ou cellule) qui comprend des amplitudes de vecteurs d'onde allant de 0 jusqu'à $\sim 1.1 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$ est représenté par le vecteur d'onde d'amplitude $q \sim 5.6 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$. Les phonons actifs Raman sont compris dans le premier segment de notre discrétisation.

Les résultats des simulations donnent accès directement, dans notre cas de figure, à l'évolution de l'état hors équilibre du système. Même si seuls des phonons LO chauds sont initialisés, cela ne signifie pas que l'état des autres phonons qui sont initialement à l'équilibre thermodynamique n'est pas pris en compte. Toutes les probabilités de distribution, déduites des taux d'interaction, dépendront des états de tous les phonons et de leurs nombres d'occupation moyens.

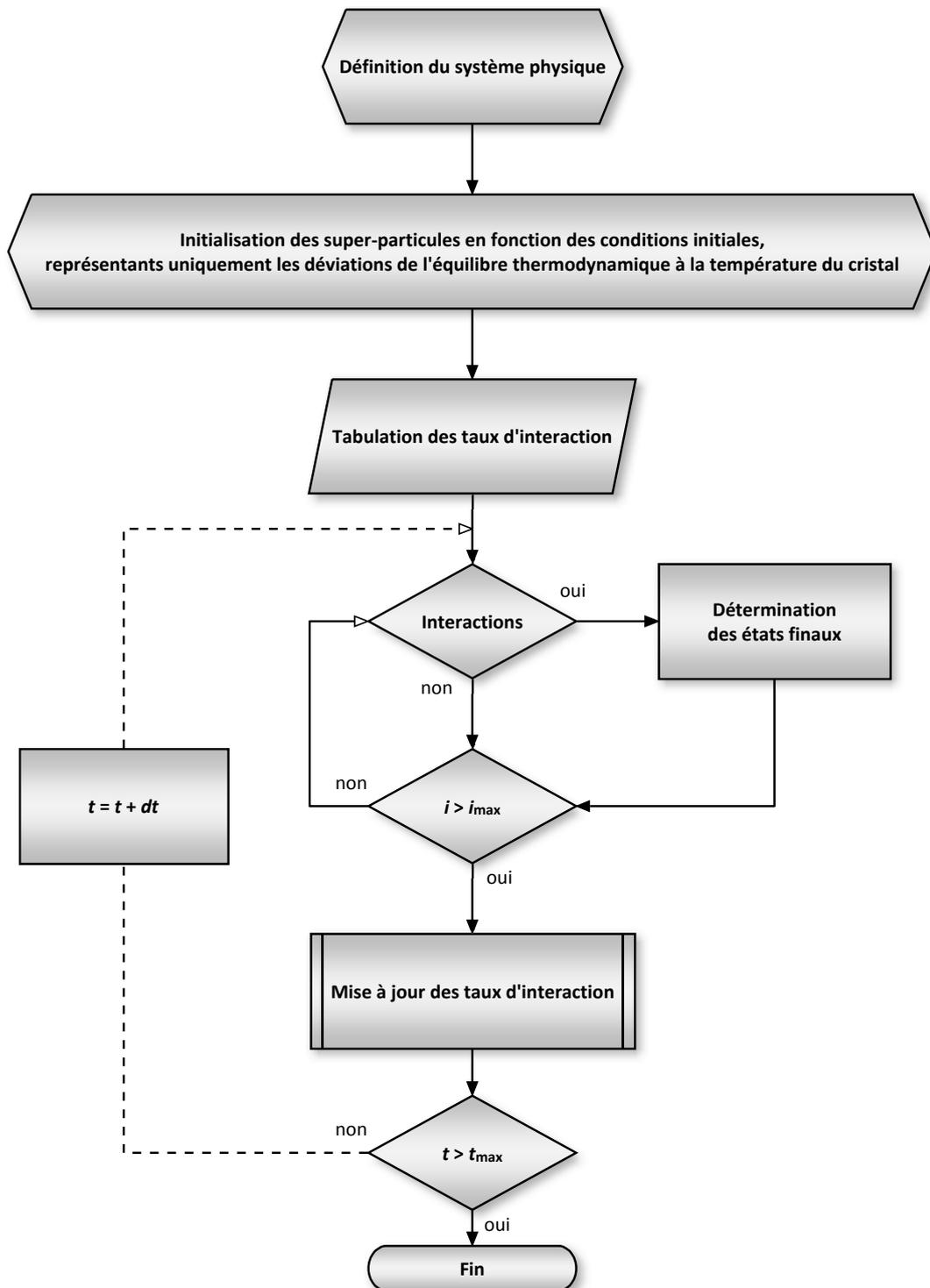


Figure 8. Organigramme de l'algorithme du solveur MC dans l'espace réciproque

V.3. Résultats et Discussions

V.3.a. Validation du Code et diverses simulations

Pour valider le code nous prenons comme référence le GaAs qui est un matériau bien connu et pour lequel on peut trouver une littérature expérimentale et théorique importante. Cela nous permet de confronter différents aspects de notre programme aux résultats d'autres auteurs et vérifier la validité du code. Ensuite, des résultats de simulations d'autres matériaux sont présentés.

V.3.a.i. GaAs

La relaxation de la distribution de phonons LO de centre de zone (en échelle logarithmique) qui est légèrement perturbée par rapport à sa valeur d'équilibre thermodynamique, est représentée en Figure 9. La petite perturbation par rapport à l'équilibre $\Delta n = n - \bar{n}(T_c)$ est de l'ordre de ~ 0.06 , pour une distribution à l'équilibre, \bar{n} de ~ 0.325 à la température du cristal $T_c = 300$ K. Le coefficient de couplage anharmonique Γ_{LO} est pris égal à 3.3×10^9 , avec un pas de temps $\Delta t = 50$ fs, pour un temps total de simulation de $t_{tot} = 15$ ps avec un nombre d'échantillon $N_{sim} = 10000$. A titre d'information, un temps de calcul typique d'une telle de simulation est de 8 heures sur un processeur récent sans parallélisation du code.

La relaxation qui nous intéresse ici, est celle des phonons appartenant au premier segment de notre discrétisation de l'espace des vecteurs d'onde ($q \sim 5.6 \times 10^5$ cm⁻¹). Nous pouvons remarquer que la relaxation de la distribution de phonons est complètement non-exponentielle. Une asymptote de décroissance exponentielle reliant les deux extrémités de la distribution de phonons entre l'instant 0 et l'instant 10 ps est dessinée pour guider l'œil. Cette ligne de décroissance exponentielle correspond à un temps caractéristique de ~ 60 ps, qui est beaucoup plus grand que le temps de vie expérimental des phonons LO.¹⁸

Si on veut extraire un temps de vie pour les phonons d'une telle décroissance non-exponentielle de leur distribution, on peut utiliser les concepts de temps de vie différentiel (« differential lifetime ») de Fuhs et Stuke¹⁰¹ ou de relaxation exponentielle initial (« initial exponential decay »).¹⁰² En utilisant de tels approches, l'extraction de coefficient de couplage

anharmonique avec la méthode du 'single mode relaxation time' permet d'ajuster la dépendance en température du temps de vie du phonon LO de centre de zone sur une large bande de températures.¹⁰³

Cependant, la démarche la plus habituelle et la plus adéquate, consiste à étudier directement la relaxation de la perturbation de la distribution de phonon, *i.e.*, l'évolution temporelle de Δn , et spécifiquement en présence du décalage sur la distribution des phonons dû à la population de phonon à l'équilibre thermodynamique. Pour cela, nous utilisons, dorénavant la procédure expliquée dans la section V.1 pour l'ajustement des coefficients de couplage anharmonique.

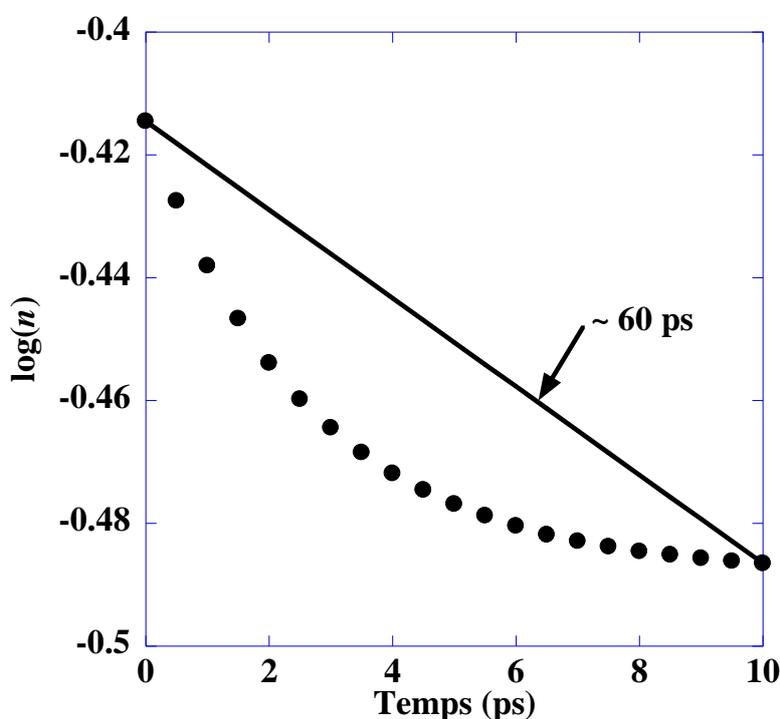


Figure 9. Evolution temporelle dans GaAs du logarithme d'une distribution de phonons LO de centre de zone avec des échelles linéaires. Température du cristal à 300 K. La ligne continue représente une décroissance exponentielle asymptotique qui relie les deux extrémités de la distribution de phonons entre 0 et 10 ps. Cette asymptote a une constante temporelle de 60 ps.

Pour étudier l'évolution temporelle d'une distribution de phonons LO chauds de centre de zone, la population est initialement portée hors équilibre à cause de la relaxation des porteurs de charges photo-excités (simulés avec un solveur MC porteurs de charges^{99, 100}). Il faut noter que la simulation dont sont extraites les Figure 10 et 11 et dont nous parlons dans cette partie, utilise des taux d'interactions calculés numériquement avec le modèle impliquant les densités d'états analytiques pour la normalisation (voir III.4.a).

La variation de la fonction de distribution de phonons LO de centre de zone, à différents instants, en fonction du vecteur d'onde est représentée dans la Figure 10. L'énergie de l'excitation LASER a été prise égale à 2.15 eV avec un pulse à profil Gaussien avec une largeur à mi-hauteur de 40 meV. Une concentration de porteurs de charges de l'ordre de $1.17 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ est ainsi générée dans GaAs intrinsèque. L'interaction électron-phonon de Fröhlich, constitue le moyen de relaxation dominant des électrons dans les semi-conducteurs III-V faiblement perturbés à température ambiante. Les électrons qui se relaxent émettent les phonons, dont les amplitudes de leurs vecteurs d'onde est comprise entre $\sim 10^5$ et 10^7 cm^{-1} .³² Les populations de phonons concernés sont rapidement hors équilibres.

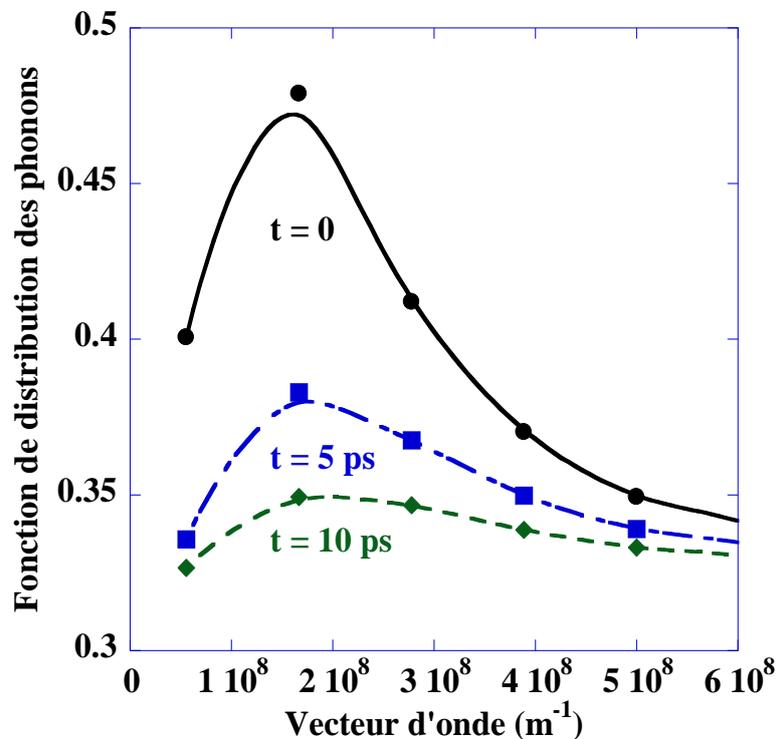


Figure 10. Variation de la fonction de distribution hors équilibre des phonons LO de centre de zone en fonction des vecteurs d'onde, à différents instants. La perturbation initiale des phonons LO est générée par le biais de la relaxation de porteurs de charges photo-excités. Les symboles indiquent les échantillons simulés selon la discrétisation de l'espace des phases utilisé dans le solveur MC. Les lignes continues sont uniquement tracées pour guider l'œil avec des courbes lissées et ajustées représentant les fonctions de distribution des phonons à différent instant de la simulation.

L'évolution temporelle, des perturbations phononiques pour les phonons appartenant aux quatre premiers segments de la discrétisation de l'espace des phases, est tracée dans la Figure 11. L'évolution temporelle de la perturbation des phonons actifs Raman est représentée par des cercles dans la Figure 11. La perturbation sur la fonction de distribution de ces phonons arrivent à un pic de ~ 0.075 . Nous trouvons une décroissance

asymptotique exponentielle de ~ 2.5 ps, ce qui est en très bon accord avec la mesures expérimentales du temps de vie du phonon LO de centre de zone.¹⁸

Même si les porteurs de charges interagissent largement avec les phonons dont le vecteur d'onde est dans la première cellule de la discrétisation de l'espace des phases, ils relaxent principalement en émettant des phonons dont l'amplitude de leurs vecteurs d'onde est proche de $1.7 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$, d'après la simulation avec le solveur MC dédié aux porteurs de charges. Ces derniers phonons se trouvent dans la seconde cellule de la discrétisation de l'espace des phases. La relaxation de ces phonons est représentée par des carrés dans la Figure 11. Nous trouvons une décroissance exponentielle asymptotique de ~ 5.8 ps.

Pour les phonons des deux cellules suivantes de la discrétisation de l'espace des phases, dont les amplitudes des vecteurs d'onde sont proches de $2.8 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$ et $3.9 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$, respectivement, nous trouvons des relaxations exponentielles avec des temps caractéristiques de ~ 7.4 et 8.5 ps, respectivement. Ainsi, nous observons une augmentation significative du temps de relaxation des phonons quand l'amplitude de leurs vecteurs d'onde croît. Cela souligne le caractère sommaire de l'approximation du temps de relaxation, surtout si un seul temps de relaxation est utilisé par branche de polarisation. Cependant, en utilisant une normalisation des taux d'interaction avec des densités d'états calculées directement numériquement, la différence, de décroissance des modes ayant des vecteurs d'ondes différents mais proches du centre de zone, est beaucoup moins marquée.

Dans des articles récents, des temps de relaxation dépendant de la fréquence et de la température sont considérés dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation. Néanmoins, les temps de relaxation provenant de Holland,⁶⁹ qui requièrent un grand nombre de paramètres d'ajustement pour chaque branche de polarisation, sont toujours utilisés. Mittal et Mazumder ont utilisé dans leur article récemment des temps de relaxation pour les processus Umklapp des phonons optiques et acoustiques avec un seul paramètre ajustable.⁷³ Toutefois, ils ignorent les règles de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement et utilisent des fonctions de distributions des phonons toujours à l'équilibre thermodynamique.

La Figure 12 montre les résultats de deux simulations à 300 K avec des perturbations initiales fortes de la fonction de distribution des phonons LO de centre de zone. La déviation

Δn est égale à ~ 1.6 puis à ~ 15.7 . Dans les deux simulations, une relaxation initiale non-exponentielle est observée avant l'établissement du régime de relaxation exponentielle asymptotique trouvé précédemment à 300 K dans GaAs avec la constante de temps de ~ 2.5 ps.

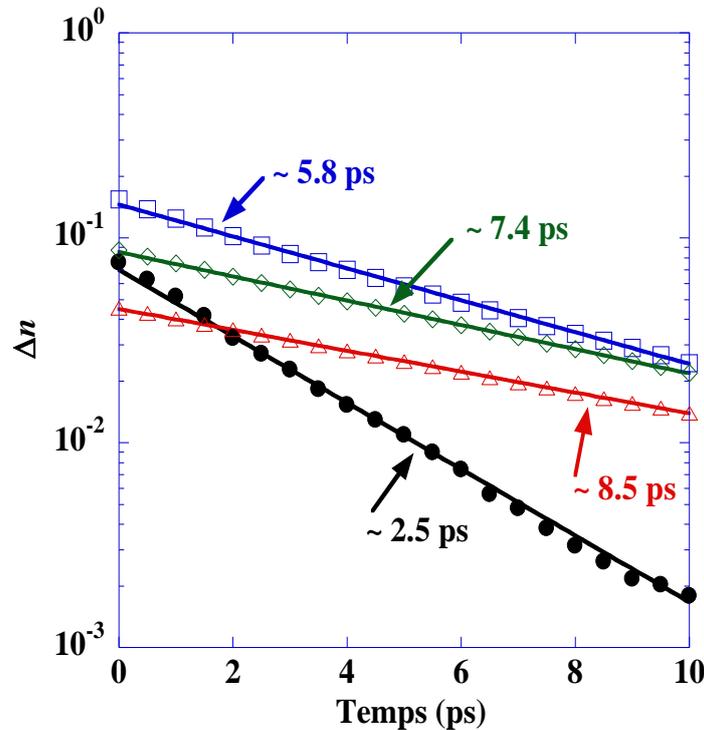


Figure 11. Evolution temporelle des perturbations des phonons appartenant aux quatre premiers segments de la discrétisation de l'espace des phases dans le GaAs. Les cercles, carrés, losanges, et triangles correspondent aux phonons avec des vecteurs d'onde dont les amplitudes sont proches de $5.6 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$, $1.7 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$, $2.8 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$ et $3.9 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$, respectivement. La température du cristal est de 300 K. Les distributions de phonons sont initialement perturbées *via* la relaxation des porteurs de charges photo-excités.

On peut remarquer que la durée et la grandeur de la décroissance non-exponentielle initiale sont proportionnelles à l'amplitude de la perturbation initiale. On observe également que le régime de décroissance exponentielle n'est rétabli que quand la perturbation devient assez petite et que le nombre d'occupation moyen s'approche significativement de sa valeur à l'équilibre thermodynamique. De telles configurations, mettent en exergue l'impact du nombre d'occupation moyen du phonon promoteur sur la relaxation de distributions hors-équilibre. Cela ne peut pas être proprement traité quand l'approximation de temps de relaxation est considérée. Puisque dans ce dernier cas l'évolution en temps réel du nombre d'occupation moyen du phonon promoteur n'est pas prise en compte. L'hypothèse implicite de l'approximation de temps de relaxation étant un

retour exponentiel direct de la distribution de phonon perturbée à l'équilibre thermodynamique.

Ainsi nous avons constaté que pour des fortes déviations de l'équilibre de la population de phonon, si l'approximation de temps de relaxation est utilisée dans le solveur MC, l'évolution de la fonction de distribution des phonons avec le temps se fera sur des échelles de temps incorrectes. Cela peut entraîner des erreurs dans les résultats des simulations, notamment quand on tente d'étudier les phonons chauds et l'influence de leurs relaxations sur la dynamique des porteurs de charges (voir chapitre VI). Pour illustrer cela, nous avons tracé en Figure 12 des droites avec des traits qui représente une décroissance exponentielle asymptotique directe de ~ 2.5 ps à partir de la perturbation initiale sur la fonction de distribution des phonons à l'instant $t=0$. Nous pouvons clairement remarquer que tout au long de la simulation les résultats seront extrêmement différents si l'approximation de temps de relaxation est utilisée dans le MC.

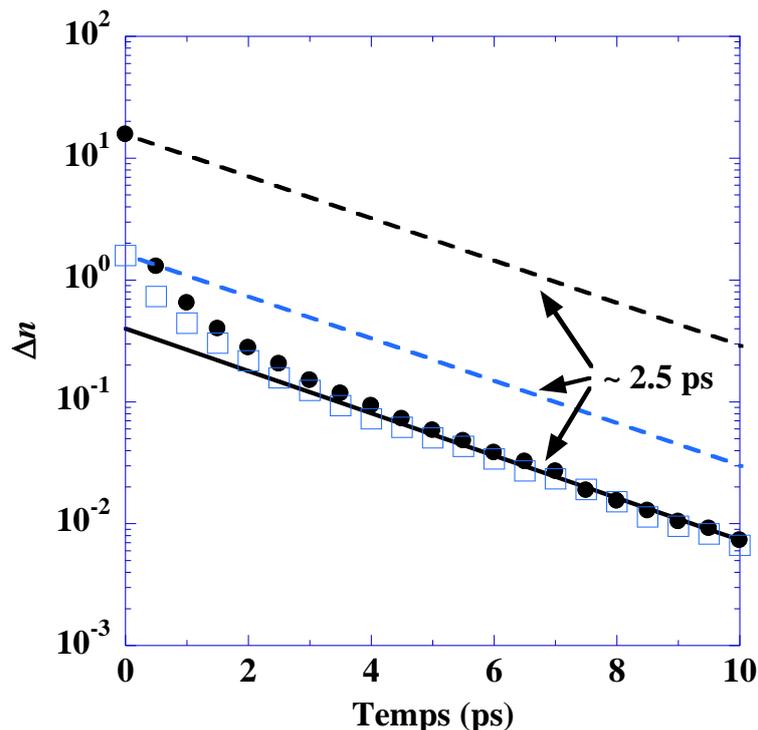


Figure 12. Evolution temporelle d'une perturbation des phonons LO de centre de zone dans GaAs avec une forte déviation initiale de l'équilibre : $\Delta n \sim 1.6$ (carrés); $\Delta n \sim 15.7$ (disques). La température du cristal est de 300 K. Après une relaxation initiale non-exponentielle relativement longue, un régime de décroissance exponentielle asymptotique (traits continus et discontinus) de ~ 2.5 ps s'établi dans les deux simulations. Les droites avec des traits représentent une décroissance exponentielle asymptotique directe à partir de la déviation initiale, avec une constante de temps de 2.5 ps.

Les relaxations de phonons de centre de zone à 223 K et 77 K sont montrées dans la Figure 13. Les déviations initiales de l'équilibre sont prises, dans les deux cas, proches des valeurs de perturbation qui peuvent être générées par la relaxation de porteurs de charges photo-excités. En particulier, nous avons pris la valeur rapportée par Von der Linde *et al.* à 77 K.³² On peut encore noter l'établissement, après un certain laps de temps, dans les deux simulations, de régimes de relaxation exponentielle asymptotique de ~ 3.3 ps à 223 K et de 6.6 ps à 77 K. Cela est en très bon accord avec les temps de vie mesurés expérimentalement par Irmer *et al.*¹⁸

Pour la simulation à 223 K nous avons $\Gamma_{LO} \approx 4.65 \times 10^9$, un pas de temps $\Delta t = 50$ fs, pour un temps total de simulation de 50 ps, et 85000 échantillons de simulations. Pour la simulation à 77 K nous avons $\Gamma_{LO} \approx 3.41 \times 10^{10}$, $\Delta t = 50$ fs, $t_{tot} = 100$ ps et $N_{sim} = 85000$.

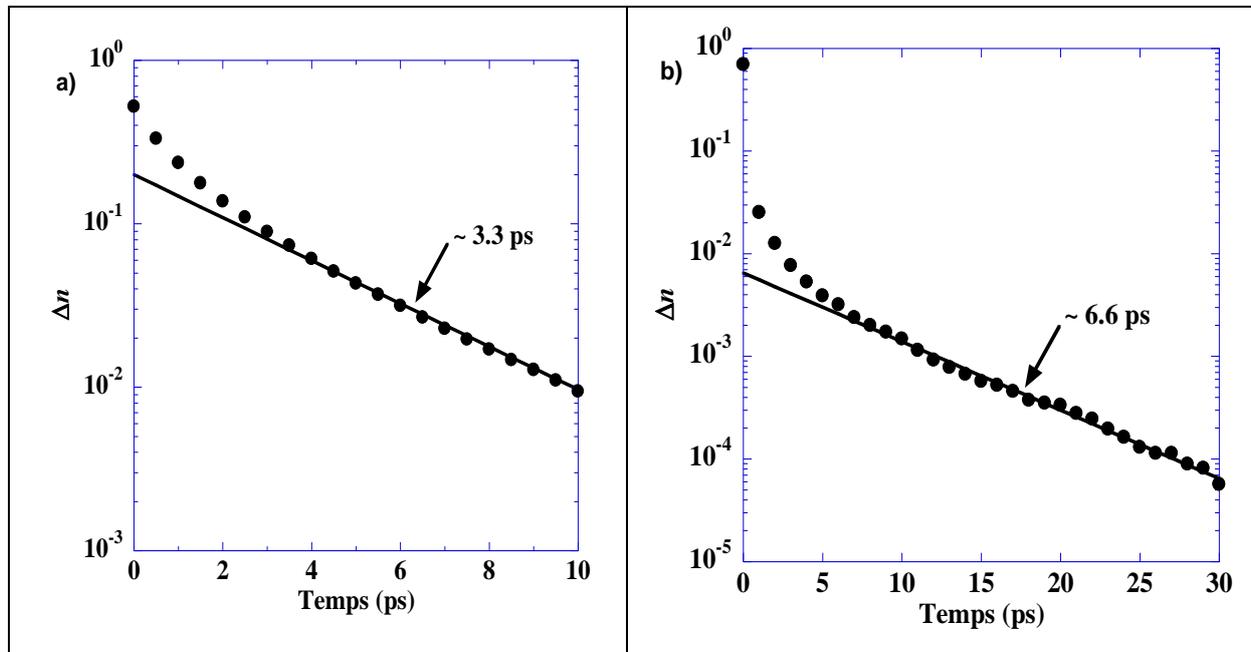


Figure 13. Evolution temporelle de perturbations sur les phonons LO de centre de zone dans GaAs. La température du cristal est de a) 223 K et b) 77 K. Les droites sont des ajustements exponentiels asymptotiques aux courbes de relaxation, donnant un temps caractéristique de a) ~ 3.3 ps et b) ~ 6.6 ps.

L'augmentation du temps requis avant l'établissement de régime de décroissance exponentielle quand la température diminue est également remarquable. Cela est dû principalement à l'importante diminution de la fonction de distribution à l'équilibre thermodynamique avec la décroissance de la température, alors que la déviation de l'équilibre causée par la relaxation de porteurs de charges photo-excités garde le même ordre de grandeur. Ainsi, à basse température la fonction de distribution des phonons est

placée plus fortement hors-équilibre. Ce phénomène est d'une telle ampleur à très basse température que l'approche décrite précédemment (voir sec. V.1), pour l'extraction de coefficients de couplage anharmonique pour les simulations MC, ne fonctionne plus.

Cette approche n'est valable que quand la perturbation n'est pas très grande par rapport à la valeur de la distribution à l'équilibre thermodynamique. A 6 K, la génération de phonons par la relaxation de porteurs de charges photo-excités donnera une perturbation du même ordre de grandeur que celle à température ambiante, *i.e.* de l'ordre de 10^{-1} . Or, la distribution de phonons LO de centre de zone à l'équilibre thermodynamique à 6 K est de l'ordre de 10^{-31} . Les phonons perturbés par la relaxation des porteurs de charge sont ainsi portés extrêmement hors-équilibre et ne peuvent être appréhendés par le biais de l'approche dont il est question ici.

Notons, enfin, que nous avons aussi effectué des simulations MC dans l'espace réciproque en incorporant le concept des *nonons* (voir sec. IV.7), et cela n'a aucun effet sur les résultats des simulations qui nous intéressent. Ceci vient du fait que les configurations de nos simulations consistent à considérer le cristal à l'équilibre thermodynamique à une température donnée, puis, considérer seulement des déviations positives par rapport à cet équilibre (en général émission de phonons LO par relaxation de porteurs de charge).

V.3.a.ii. Simulations dans InP, InAs, InSb, Ge et Si

Un exemple d'une simulation MC de la relaxation de distribution de phonons LO de centre de zone dans l'InP avec une perturbation initiale de ~ 0.7 à 300 K, alors que la distribution de phonons à l'équilibre thermodynamique est de ~ 0.0215 est montrée en Figure 14. Cette simulation donne une relaxation exponentielle asymptotique proche de 7.6 ps. Cela est en très bon accord avec les résultats expérimentaux de Vallée.¹⁹

Dans la Figure 15, nous montrons la relaxation d'une perturbation sur une distribution de phonons LO de centre de zone dans InAs à 300 K. Une relaxation exponentielle asymptotique de ~ 1.8 ps est trouvée. Cela est en très bon accord avec la valeur du temps de relaxation que Grann *et al.* ont indiqué qu'il était nécessaire pour ajuster leurs mesures Raman résolues en temps avec leur solveur MC.¹⁰⁴ Cette valeur est à notre connaissance le seul résultat du temps de vie des phonons LO de centre de zone dans InAs disponible dans la littérature et au moins basé sur des mesures expérimentales.

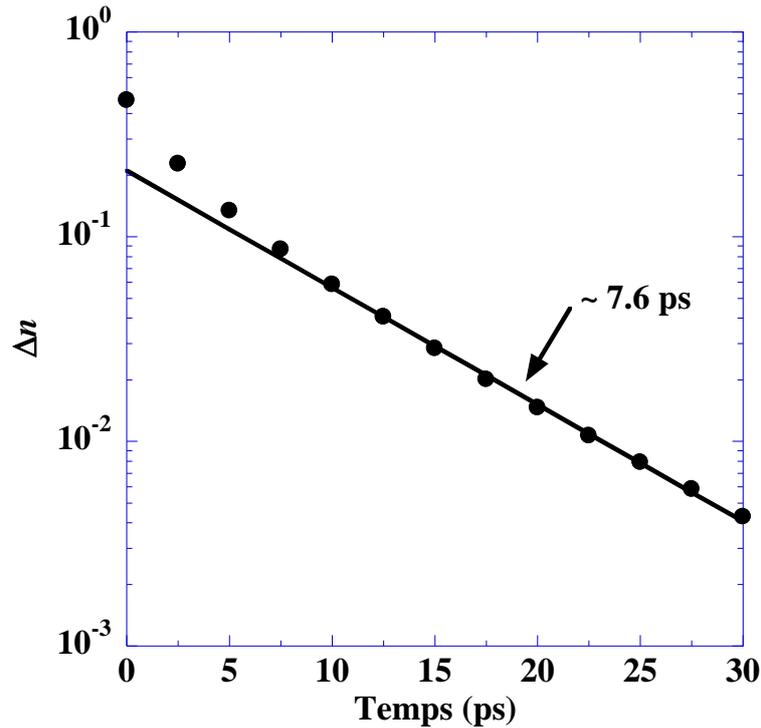


Figure 14. Evolution temporelle d'une perturbation sur les phonons LO de centre de zone dans l'InP. La température du cristal est de 300 K. La ligne continue est un ajustement asymptotique exponentielle par rapport à la courbe, avec une constante de temps de ~ 7.6 ps.

Même si le manque de mesures expérimentales est vraiment regrettable, on peut quand même prédire un temps de vie théorique des phonons en utilisant le SMRT afin d'en tirer les facteurs de couplage anharmonique pour les simulations de MC. Grâce à l'équation (V.1.1) et le temps de vie expérimentale des phonons LO à 300 K, on peut en déduire la constante de Grüneisen unique pour obtenir l'allure de la dépendance des temps de vie expérimentaux en fonction de la température. Ainsi, on trouve un temps de vie théorique (équation (V.1.1)) du phonon LO de centre de zone de ~ 5.8 ps à 77 K dans l'InAs. Avec ce temps de vie, l'équation (V.1.2) permet d'obtenir un coefficient de couplage anharmonique pour la simulation MC. La simulation permet de retrouver un régime de relaxation asymptotiquement exponentiel de ~ 5.8 ps si on néglige le début de la simulation, comme on peut le voir sur la Figure 16. Cependant, il faut noter que nous croyons que le temps de vie du phonon LO de centre de zone dans InAs rapporté par Grann *et al.*¹⁰⁴ est sous-estimé (voir section V.3.b).

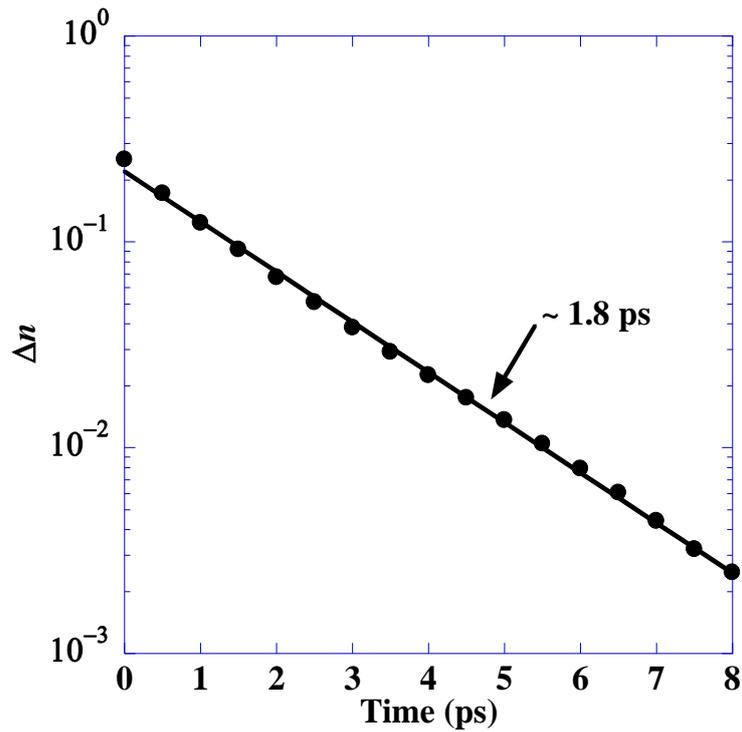


Figure 15. Relaxation de phonons LO de centre de zone en fonction du temps dans InAs. La température du cristal est de 300 K. La droite est un ajustement asymptotique exponentiel par rapport à la courbe, avec un temps de relaxation de ~ 1.8 ps.

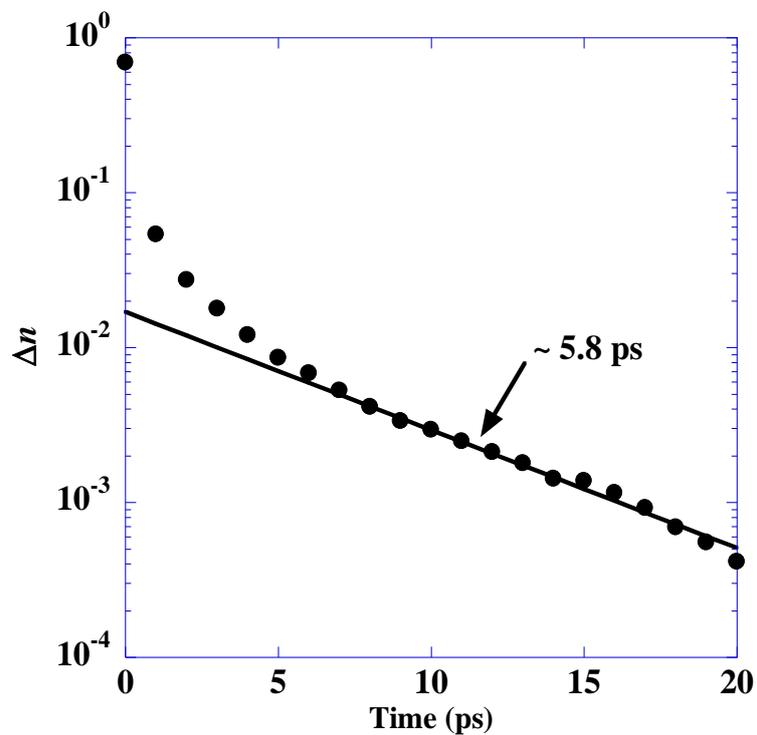


Figure 16. Evolution temporelle d'une perturbation sur la distribution des phonons LO de centre de zone dans InAs à 77 K. La ligne continue est un ajustement asymptotique exponentielle par rapport à la courbe avec un temps de relaxation de ~ 5.8 ps.

Dans la Figure 17 nous montrons la relaxation d'une perturbation sur les phonons LO de centre de zone dans GaSb à 300 K. Nous trouvons un régime de décroissance asymptotique exponentielle de ~ 1.6 ps en accord avec la mesure expérimentale du temps de vie.¹⁰⁵

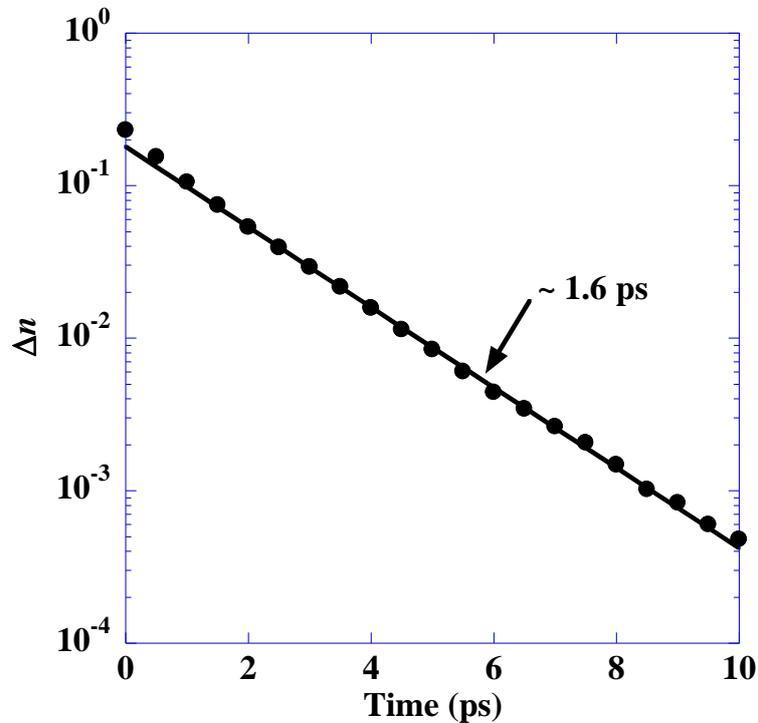


Figure 17. Evolution temporelle d'une perturbation des phonons LO de centre de zone dans GaSb. La température du cristal est de 300 K. La ligne droite représente un ajustement asymptotique exponentielle à la courbe avec un temps de relaxation de ~ 1.6 ps.

V.3.b. Analyse des canaux de décomposition dans les matériaux III-V

Dans cette section nous allons examiner les mécanismes de désintégration des phonons LO de centre de zone. Les canaux de relaxation des phonons LO de centre de zone peuvent être énumérés d'après Barman et Srivastava²⁴ comme suit :

- Le canal de Klemens²¹ qui génère deux phonons acoustiques
- Le canal de Ridley⁸⁸ qui génère un phonon TO et un phonon acoustique
- Le canal de Vallée-Bogani^{19, 20} qui donne un phonon LO de bord de zone et un phonon acoustique.

Nous présentons, dans le Tableau 3, nos résultats sur les contributions relatives des différents canaux de relaxation à la désintégration du phonon LO de centre de zone à basse température et température ambiante, en plus des temps de vie rapportés dans la littérature.

Ces résultats sont extraits grâce aux calculs des taux d'interaction des phonons (voir chapitre III).

V.3.b.i. GaAs

Dans le GaAs, nos résultats sont en bon accord avec ceux des calculs *ab initio* de Debernardi¹⁰⁶ qui a trouvé que la relaxation est dominée par la contribution du canal de Klemens. Néanmoins, dans notre cas, le canal de Ridley a une contribution plus forte que celle totalement négligeable trouvée par Debernardi. Ce dernier affirme que les mécanismes de relaxation appartenant au canal de Vallée-Bogani ne peuvent pas remplir, du tout, les conditions de conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie. Nos résultats s'accordent avec ce que rapporte Debernardi puisque nous trouvons que les processus d'interaction de ce canal sont très faibles.

Les contributions relatives dans le canal de Klemens, de la relaxation de phonons LO de centre de zone vers deux modes acoustiques différents, canal de combinaison (« *combination channel* »), ou deux phonons de la même branche de polarisation, canal *overtone* (« *overtone channel* »), sont, d'après Debernardi, à basse température de 96 % et 4 %, respectivement. Nos calculs ont donné des résultats très proches avec 94 % et 6 %, respectivement.

D'autre part, Vallée,¹⁹ et Barman & Srivastava ultérieurement,²⁴ ont déclaré que le canal de Vallée-Bogani a une participation significative et n'est autorisé que dans le GaAs. Sachant qu'ils ont précisé que les phonons créés par le canal de Vallée-Bogani sont au voisinage du point critique L , on peut penser que les divergences, entre leurs résultats et les nôtres, peuvent provenir de notre modèle de dispersion isotrope des phonons selon la direction $[\xi 00]$ uniquement.¹⁰⁷ Par conséquent, nous avons réalisé une série de calculs de taux d'interaction et des extractions de contributions relatives des canaux de désintégration (relaxation) avec la dispersion des phonons prise le long des directions $[\xi \xi 0]$ et $[\xi \xi \xi]$. Les résultats sont également rapportés dans le Tableau 3 (entre parenthèses), après avoir moyenné les contributions relatives à partir des données extraites selon les trois directions de haute symétrie mentionnées précédemment. Chaque ensemble de données, de chacune des trois directions considérées, a été pondéré par le nombre de directions équivalentes de haute symétrie.

Ces résultats confirment la contribution négligeable du canal de Vallée-Bogani. De surcroît, nous constatons que ce canal de désintégration ne satisfait pas les conditions de conservation de l'énergie et la quantité de mouvement selon la direction $[\xi\xi\xi]$ entre les points critiques Γ et L et sa mince contribution ne vient que des deux autres directions. Vallée et Bogani,^{19, 20} ont fait valoir que le canal de Vallée-Bogani est le canal de désintégration majeur dans GaAs basant leur hypothèse sur l'argument que selon les relations de dispersion ce canal vérifie les lois de conservation. Quand on regarde à nouveau les données fournies par l'article auquel Vallée & Bogani ont fait référence pour les diagrammes de dispersion. On peut constater que la conservation de l'énergie, nécessaire pour le canal de Vallée-Bogani dans GaAs, n'est même pas possible en prenant en compte l'incertitude expérimentale des mesures proposées par Dolling et Waugh.¹⁰⁸

Vallée et Bogani aurait pu utiliser les résultats des calculs de la dispersion faits à partir de modèles théoriques de Kunc *et al.*¹⁰⁹ Mais, selon les mesures expérimentales rapportées par Strauch et Dorner⁷⁷ en plus de ceux mentionnés précédemment de Dolling et Waugh, le canal de Vallée-Bogani ne peut être satisfait le long de la direction $\Gamma-L$. Barman et Srivastava²⁴ ont utilisés pour leurs calculs dans GaAs une relation de dispersion linéaire décroissante pour la branche LO, en plus de l'approximation de Debye pour les modes acoustiques. Cela pourrait autoriser une conservation de l'énergie des processus du canal de Vallée-Bogani si la pente est trop forte. Ainsi en bord de zone de Brillouin, la fréquence des phonons LO est bien plus faible que celle mesurée expérimentalement.

Quoiqu'il en soit, on peut voir l'importance de l'impact de changements modestes dans les relations de dispersion sur les contributions relatives des canaux de relaxation et même sur l'effet des lois de sélection et ainsi sur les processus trois-phonons permis. De plus, il y a des différences significatives entre les différents résultats expérimentaux sur les vibrations cristallines. Par conséquent, il est peut être nécessaire d'entreprendre de nouvelles mesures expérimentales plus précises, grâce surtout aux moyens expérimentaux qui ont beaucoup progressé depuis quelque temps, dans la perspective d'établir un consensus de la communauté scientifique, pour créer ainsi des bases communes pour toutes les études postérieures.

D'autre part, on peut remarquer une augmentation de la contribution du canal de Ridley quand nous moyennons selon les trois directions de haute symétrie. Cela est dû à la contribution dominante de ce canal le long de la direction $\Gamma-L$, nommément 56%, et de sa contribution le long de la direction $\Gamma-K$ de 8% qui reste quand même supérieure à celle au long de la direction $\Gamma-X$.

V.3.b.ii. InP

Dans l'InP, nos résultats des participations relatives des canaux de désintégration (voir Tableau 3) sont en bon accord avec ceux de Vallée,¹⁹ qui a attribué le déclin du phonon LO de centre de zone à une contribution unique du canal de Klemens ou à deux contributions presque identiques du canal de Klemens et de celui de Ridley à température ambiante. Nous trouvons que la contribution du canal de Ridley génère essentiellement des phonons TO et TA avec de petits vecteurs d'onde, comme l'a souligné Vallée,¹⁹ dont les normes sont près de 18% de la zone de Brillouin le long de la direction $\Gamma-X$, et $\sim 10\%$ dans le cas moins important où des phonons TO et LA sont générés.

Debernardi¹⁰⁶ a constaté toutefois que les phonons LO de centre de zone dans l'InP relaxent principalement à travers le canal de Ridley avec seulement une légère contribution négligeable du canal de Klemens. Le désaccord entre ses résultats et les nôtres est encore plus flagrant lorsque nous faisons l'analyse à basse température, car nous constatons que lorsque la température diminue la contribution du canal de Klemens augmente sensiblement au détriment de celle du canal de Ridley.

En outre, en raison de la prédiction théorique de la dispersion selon la direction $\Gamma-X$ Barman et Srivastava ont soutenu que le canal de Klemens n'est autorisé que si la valeur expérimentale de la fréquence du mode LA en X, qui est plus élevée que ceux des prédictions théoriques, est considérée.²⁴ Nous avons trouvé que les vecteurs d'onde, de chacun des deux phonons LA créés à travers le canal de Klemens, ont des directions opposées avec des normes égales situées près de 80% de la zone de Brillouin. Ainsi, ils sont dans une région de la zone de Brillouin où il n'y a pas de mesure expérimentale des fréquences.⁸¹ La forme de la courbe ajustée représentant la relation de dispersion dans ce segment spécifique de la zone de Brillouin est régie par la fréquence de la branche LA au point X. Si la valeur de cette fréquence est, comme cela était théoriquement prédit,

significativement inférieure à la valeur mesurée,²⁴ alors le canal de Klemens n'aurait pas été possible dans InP le long de la direction de haute symétrie étudiée.

Mis à part le coefficient de couplage anharmonique, on peut voir dans la série d'équations (III.1.14)–(III.1.17) que la variation de température ne peut induire une modification du taux d'interaction que par la modification de la fonction de distribution des phonons. C'est parce que, bien que la constante de Grüneisen des phonons LO soit considérée comme dépendante de la température, elle restera la même pour tous les taux d'interaction des différents canaux de relaxation. Par ailleurs, dans le taux d'interaction d'un processus spécifique, seuls les nombres d'occupation moyens des phonons dépendent de la température.

Dans le canal de Ridley un des phonons fils est un TO, alors que dans le canal de Klemens les deux phonons fils sont des phonons acoustiques. La relaxation de phonons LO génère des particules dans les états mentionnés précédemment, mais ces phonons créés n'ont guère d'influence sur la distribution des phonons acoustiques ou TO à cause de la très faible densité d'états des phonons LO de centre de zone et la relaxation des phonons TO créés en phonons acoustiques. Ainsi, les nombres d'occupation des particules filles peuvent être décrits, tout au long de la relaxation des phonons LO, par la fonction de distribution de Bose-Einstein (celle de l'équilibre thermodynamique qui ne va pas être perturbé). Cette fonction de distribution a une diminution beaucoup plus rapide avec la température, pour les phonons de haute énergie comparée à celle avec les phonons de basse énergie. Par conséquent, pour les phonons TO le nombre d'occupation diminue plus fortement avec la température que celui des phonons acoustiques. Ainsi, nous pouvons comprendre la baisse de la contribution du canal de Ridley en faveur de celle du canal de Klemens, mentionné précédemment. Ce phénomène est également observé dans le GaAs.

D'autre part, il y a un très bon accord entre nos résultats et ceux de Barman et Srivastava,²⁴ Debernardi,¹⁰⁶ et Vallée¹⁹ concernant l'absence de contribution du canal de Vallée-Bogani en raison de l'impossibilité de satisfaire la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement pour les processus de ce canal dans InP.

V.3.b.iii. InAs et GaSb

Dans l'InAs ainsi que dans le GaSb il convient de noter que le canal de Vallée-Bogani a encore une contribution négligeable le long de la direction $\Gamma-X$ (voir Tableau 3). On peut remarquer, dans les deux matériaux, encore une fois la variation relative des contributions des canaux de Klemens et Ridley avec la température qui est en conformité avec le comportement mentionné et justifié ci-dessus. On peut noter, également, la prédominance du canal de Klemens dans le GaSb. À notre connaissance, l'étude des contributions relatives des canaux de relaxation n'a jamais été faite auparavant dans aucun des deux matériaux, InAs et GaSb, alors aucune comparaison avec les résultats d'autres auteurs n'est possible.

	Temps de vie en ps (+ référence)	Canal de Klemens (%)	Canal de Ridley (%)	Canal de Vallée- Bogani (%)
Basse température				
GaAs	8.2 ¹⁸	99	1	~ 0
InP	40 ¹⁹	89	11	--
InAs	--	68	32	~ 0
GaSb	--	98	2	~ 0
Température ambiante				
GaAs	2.5 ¹⁸	98 (82)	2 (8)	~ 0
InP	7.6 ¹⁹	73	27	--
InAs	1.8 ¹⁰⁴	41	59	~ 0
GaSb	1.6 ¹⁰⁵	89	11	~ 0

Tableau 3. Temps de vie des phonons LO de centre de zone et les contributions relatives des différents canaux de relaxation. La dispersion des phonons est prise selon la direction de haute symétrie $[\xi 00]$. Résultats des contributions moyennés selon les trois directions de haute symétrie $[\xi 00]$, $[\xi \xi 0]$ et $[\xi \xi \xi]$ sont entre parenthèses.

V.3.c. Comparaison et discussion général pour les binaires III-V

Après avoir explicité (voir Tableau 3) et étudié la contribution des différents canaux de relaxation au temps de vie des phonons LO de centre de zone dans les différents matériaux III-V dans la sous-section précédente, nous allons maintenant faire une comparaison des routes de relaxation des phonons LO de centre de zone dans ces matériaux. A cette fin nous rappelons dans les diagrammes de dispersion des phonons dans GaAs,

InP, InAs, et GaSb sur la même Figure 18 pour mieux observer les différences entre les relations de dispersions des matériaux de cette étude

Le temps de vie du phonon LO de centre de zone dans l'InP est le plus long parmi les matériaux III-V étudiés. Cela peut être attribué au gap plus grand entre les modes acoustiques et optiques dans l'InP par comparaison avec les gaps des autres matériaux. Cela rend difficile la combinaison de fréquences acoustiques pour atteindre les fréquences optiques en remplissant la condition de conservation de l'énergie.

Dans le GaAs, la contribution principale au canal de Klemens vient du canal de combinaison, alors que dans l'InP la seule contribution au canal de Klemens vient du canal *overtone* qui implique deux phonons LA. Cela peut aussi expliquer le temps de relaxation plus long des phonons LO de centre de zone dans l'InP, puisque comme Vallée l'a souligné, les canaux de combinaison sont plus efficaces que les canaux *overtone*.¹⁹

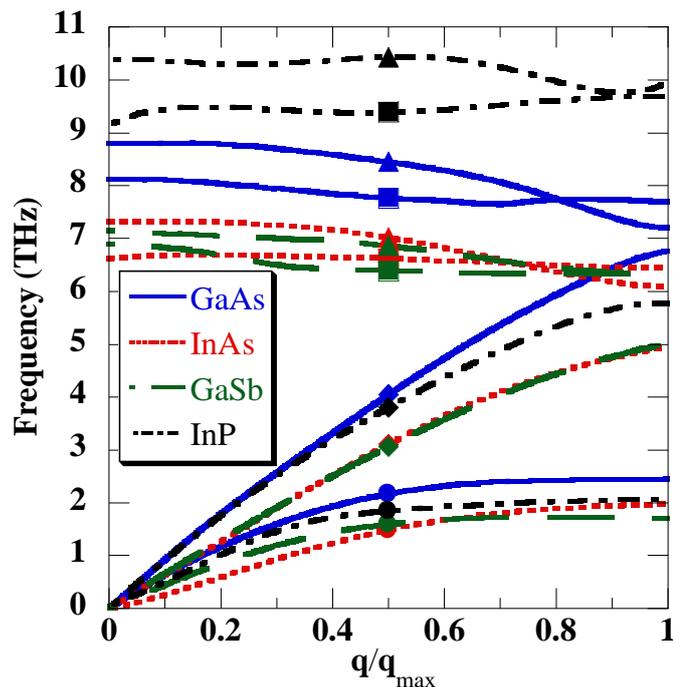


Figure 18. Diagrammes de dispersion des phonons dans GaAs, InAs, GaSb, et InP. Les branches de polarisations TA, LA, TO et LO sont identifiées par un cercle, un losange, un carré, et un triangle, respectivement.

La contribution au temps de vie du phonon LO de centre de zone dans InP ne vient pas uniquement du canal de Klemens ; mais il y a une certaine participation à température

ambiante du canal de combinaison de Ridley. Néanmoins, les phonons créés à travers le canal de Ridley dans InP ont des vecteurs d'onde de petites amplitudes (voir sous-sec. V.3.b). Ainsi, leurs densités d'états sont plus petites que celles des phonons créés à travers le canal de Klemens dans GaAs et InP qui ont des vecteurs d'onde plus grands. Pour cela, les processus du canal de combinaison dans InP ont des amplitudes d'interaction plus faible que celle de GaAs.

Même si à première vue, les diagrammes de dispersions des phonons d'InAs et InP peuvent sembler assez différents ; les taux de relaxation des phonons LO de centre de zone dans InAs sont plus proches à ceux dans InP que ceux du GaAs. Comme dans l'InP, dans InAs la seule contribution au canal de Klemens vient du canal *overtone* impliquant deux phonons LA qui ont des vecteurs d'onde de direction opposées se situant à $\sim 60\%$ de la zone de Brillouin. De plus, les phonons créés à travers le canal de Ridley dans InAs ont des vecteurs d'onde courts et ainsi des petites densités d'états. On peut s'attendre alors que la relaxation soit moins efficace dans InAs que dans GaAs et qu'elle soit plus similaire à celle de l'InP.

Le seul résultat que nous avons trouvé dans la littérature sur le temps de vie de phonon LO de centre de zone dans InAs basé sur des mesures expérimentales,¹⁰⁴ est un temps de relaxation qui semble bien court en comparaison de ceux de InP et GaAs. Cependant, Grann *et al.*¹⁰⁴ ont dérivé ce temps de vie pour pouvoir ajuster, dans le cadre de l'approximation de temps de relaxation, les résultats de leur méthodologie MC à des données expérimentales. Donc ce n'était pas un résultat expérimental dérivé à partir de mesure de largeur de raie Raman. Leur résultat d'un temps de vie de phonon de 2.3 ps dans l'InP à 300 K, dérivé en utilisant le même schéma que celui utilisé pour l'InAs, sous-estime d'un facteur supérieur à 2, le temps de vie expérimental du phonon LO de centre de zone rapporté dans la littérature à la même température.^{18, 19}

Tous ce qui a précédé nous pousse à suggérer que le résultat de Grann *et al.*¹⁰⁴ dans InAs est aussi largement sous-estimé, et que le temps de vie du phonon LO de centre de zone dans ce matériaux, selon nos résultats actuels avec la dispersion des phonons prises selon la direction $\Gamma - X$, doit être plus long que celui du GaAs et plus proche au temps de vie expérimental dans l'InP.

D'autre part, même si les mécanismes de relaxation dans l'InAs ressemblent fortement à celles dans InP, on trouve que le canal de Ridley a une contribution plus forte au temps de vie du phonon LO de centre de zone dans InAs. Cette contribution est plus grande que celle du canal de Klemens à température ambiante. Cela peut être expliqué par la densité d'états plus faibles des phonons LA créés à travers le canal *overtone* de Klemens dans InAs, dont les normes des vecteurs d'onde se situent approximativement à 60 % de la taille de la zone de Brillouin ; alors que, ceux dans InP s'allongent à ~ 80 % de la longueur de la zone de Brillouin. Ainsi le canal de Klemens est moins efficace dans InAs que dans InP.

De plus, nous avons trouvé une faible augmentation de la taille, des vecteurs d'onde des phonons optiques et acoustiques créés à travers le canal de combinaison de Ridley dans l'InAs, par rapport à celles dans InP. Puisque les canaux de combinaison sont supposés être plus efficaces que ceux *overtone*,¹⁹ ces changements dans la densité d'état des phonons générés à la faveur du canal de Ridley dans InAs, peuvent avoir été suffisants pour que la contribution du canal de Ridley dans InAs soit supérieure à celle du canal de Klemens, et qu'elle dépasse significativement celle du canal de Ridley dans InP qui est un matériau qui a des chemins de relaxations très semblables à ceux de l'InAs. Cette intensification du canal de combinaison de Ridley dans InAs par rapport à l'InP, suggère que le temps de vie du phonon LO de centre de zone doit être plus petit dans InAs que dans InP.

Les chemins de relaxation dans GaSb, InP et InAs sont assez similaires, même si le diagramme de dispersion de GaSb est assez différent de celui de l'InP. Nous avons trouvé des contributions relatives très proches des canaux de Ridley et de Klemens dans GaSb et InP. Bien que, les longueurs des vecteurs d'onde des phonons LA créés à travers le canal de Klemens exclusivement *overtone* dans GaSb sont à ~ 60% de la taille de la zone de Brillouin dans InAs, le canal de Klemens surpasse la contribution du canal de Ridley dans GaSb contrairement à ce qui est le cas dans InAs et plus fortement que dans InP. Cela peut être expliqué par la très petite amplitude (~5% de la taille de la zone de Brillouin) des vecteurs d'onde des phonons acoustiques et optiques créés à travers le canal de combinaison de Ridley dans GaSb, et ainsi les densités d'états de ces particules filles qui sont plus petites que celles de l'InP.

Le seul résultat expérimental que nous avons pu trouver pour le temps de vie du phonon LO centre de zone dans GaSb est un temps de relaxation assez rapide proche de 1.6

ps.¹⁰⁵ Pourtant, suivant l'analyse des canaux de relaxation ci-présente, le temps de vie du phonon LO de centre de zone dans GaSb doit être beaucoup plus long.

V.3.d. Analyse des canaux de relaxation dans Si et Ge

Tournons-nous maintenant vers les matériaux de la colonne IV, qui jouent un rôle clef dans l'industrie d'électronique. Nous présentons dans le Tableau 4 nos résultats sur les contributions relatives des différents canaux de relaxation à la désintégration du phonon LO de centre de zone à températures ambiante et à température cryogénique, en plus des temps de vie rapportés dans la littérature.

Nos résultats dans Si et Ge sont concordants avec ceux de Debernardi,⁴² avec une participation exclusive du canal de Klemens au temps de vie des phonons LO de centre de zone. Notons toutefois, que nous trouvons une participation négligeable du canal de Ridley au temps de vie dans le Ge. Debernardi a reporté ces résultats pour des cristaux à basse température, nous retrouvons un résultat identique même à température ambiante.

Nous trouvons à basse température que le canal de combinaison de Klemens est beaucoup plus fort que le canal *overtone*, avec des participations respectives de 92.5% et 7.5% dans le Si, et de 94% et 6% dans le Ge. Ces résultats sont en très bon accord avec ceux trouvés par Debernardi,⁴² à savoir 94% et 6% dans le Si et 95.4% et 4.6% dans le Ge pour le canal de combinaison et celui *overtone*, respectivement. Cela concorde aussi avec l'affirmation de Vallée sur l'efficacité supérieure des canaux de combinaison vis-à-vis des canaux *overtone*.¹⁹

A température ambiante, nous trouvons des résultats semblables à ceux obtenus à basse température. Avec une participation au temps de vie des phonons LO de centre de zone de 94% et 6% des canaux de combinaison et *overtone*, respectivement, dans Si, et de 95% et 5%, respectivement, dans Ge. On observe une légère augmentation du canal de combinaison.

	Temps de vie en ps (+ référence)	Canal de Klemens (%)	Canal de Ridley (%)	Canal de Vallée- Bogani (%)
Basse température				
Si	3.7^{110}	100	--	--
Ge	7^{111}	100	~ 0	--
Température ambiante				
Si	1.5^{110}	100	--	--
Ge		100	~ 0	--

Tableau 4. Temps de vie des phonons LO de centre de zone et les contributions relatives des différents canaux de relaxation à températures ambiante et basse.

VI Dynamique couplée phonon—électron*



Étudier la dynamique couplée des phonons et électrons est un objectif que de nombreux auteurs ont essayé d'atteindre précédemment. Comme nous l'avons déjà mentionné dans l'introduction, la dynamique des phonons influe fortement sur le transport des électrons. L'interaction électron—phonon est due à une variation du potentiel cristallin causé par les déplacements atomiques. Les électrons sont alors diffusés sur ce changement de potentiel : c'est le modèle « potentiel de déformation ».¹¹² Ce modèle s'applique aux phonons acoustiques et optiques liés à différents potentiels de déformation.

De plus, dans les semi-conducteurs sans centre d'inversion, les vibrations atomiques créent un champ électrique qui constitue une autre source de diffusion pour les porteurs de charges. On parle alors de phonons piézoélectriques pour les phonons acoustiques, et simplement de phonons optiques polaires pour les phonons optiques. L'interaction des phonons optiques polaires avec les porteurs de charges est régie par le couplage de Fröhlich.¹¹³ Cette interaction constitue le mode de relaxation dominant des électrons modérément perturbés dans les semi-conducteurs III-V à température ambiante.³²

Dans ces matériaux, la première bande de conduction peut être modélisée par trois vallées : Γ , L et X.¹¹³ Ainsi, on différencie les interactions intra-vallées qui diffusent l'électron dans la vallée où il se trouve déjà et les interactions inter-vallées qui diffusent l'électron vers une autre vallée. Les interactions intra-vallées sont dues à l'émission/absorption de phonons de petits vecteurs d'onde, tandis que les interactions inter-vallées sont associées à l'émission/absorption de phonons de grands vecteurs d'onde. Dans chaque interaction les phonons qui causent les transitions électroniques doivent respecter les symétries de l'état initial et final de l'électron, il s'agit de règles de sélection.¹¹⁴ Par exemple, dans le GaAs, les transitions Γ —L sont permises pour les phonons LO et LA, et les transitions Γ —X pour les phonons LO.¹¹⁴

* De nombreux passages de ce chapitre sont communs avec le chapitre V de la thèse d'E. TEA

Des densités de porteurs chauds (énergétiques) photo-générés (paires électron-trou) peuvent facilement atteindre quelques 10^{18} cm^{-3} sous excitations optiques modérément intenses. De telles densités peuvent mener à des effets tels que le chauffage de la distribution de phonons (les phonons chauds) et le couplage des phonons optiques polaire (POP) avec des modes de plasmons (LO phonon-Plasmon Coupled Mode, LOPCM).¹⁰⁰ Ces deux phénomènes affectent la relaxation des porteurs de charge chauds et n'ont pas été étudiés en même temps, dans un même calcul/mesure. Cela pose un problème, par exemple, pour l'étude théorique de Cellules Solaires à Porteurs Chauds où une relaxation lente des porteurs est nécessaire pour atteindre, d'après le concept, des rendements potentiellement élevés.¹⁰⁰

Dans cette partie, on parlera de l'utilisation d'un EMC Full-band porteurs de charges pour comparer l'influence du couplage phonon/plasmon et des phonons chauds sur la relaxation de porteurs chauds.¹¹⁵ Dans ce but, des spectres de transmission différentielle normalisée sont modélisés afin de pouvoir confronter les résultats de calculs, incluant les LOPCM ou les phonons chauds, à des résultats d'expériences pompe-sonde. En effet, les montages pompe-sonde permettent de suivre l'évolution temporelle des populations d'électrons et de trous à l'échelle sub-picoseconde.

GaAs étant le semi-conducteur III-V le plus caractérisé expérimentalement et le mieux connu, il servira de matériau de référence pour toutes les applications présentés dans ce chapitre.

VI.1. Phonons chauds et effet 'Bottleneck'

Dans les semi-conducteurs polaires, quand les électrons sont très excités (*i.e.* quand ils possèdent un excès d'énergie non négligeable par rapport au minimum de la bande de conduction), ils relaxent leur excès d'énergie en la cédant au réseau cristallin. Cette relaxation a lieu au travers d'émission de phonons optiques polaires longitudinaux LO via le couplage de Fröhlich. Considérons que la quantité totale de phonons émis pendant un laps de temps est significative. Si ce laps de temps est relativement court devant la durée de vie des phonons excédentaires (définis par rapport à la quantité de phonons présents à l'équilibre thermique avant la relaxation des électrons), la quantité de phonons émis peut faire dévier la population des phonons LO hors de sa valeur d'équilibre, en augmentant le

nombre moyen d'occupation par état. L'excès de phonons donne une population dite de phonons chauds car la nouvelle fonction de distribution des phonons ne renvoie plus à une statistique de Bose-Einstein évaluée à la température du réseau cristallin à l'équilibre. Des mesures par diffusion Raman donnant des informations sur les populations de phonons ont fourni des preuves de ce phénomène.³²⁻³⁴

Ces phonons chauds peuvent être ré-absorbés par les électrons (toujours en train de relaxer), et peuvent donc réduire le taux net de perte d'énergie des électrons. Ceci est connu sous le nom de « phonon bottleneck effect » pour la relaxation des électrons. Rappelons que les taux d'interactions d'émission et d'absorption d'un phonon LO par un électron sont proportionnels au nombre moyen d'occupation des phonons.¹⁰⁰ Des informations approfondies sur le « phonon bottleneck effect » peuvent être trouvées dans l'article de Garanin.¹¹⁶ De plus, le taux de ré-absorption de phonons LO par les électrons peut être plus grand que le taux de relaxation des phonons LO par la dynamique du réseau cristallin.²⁹

Cela souligne l'importance d'une étude rigoureuse et surtout simultanée des électrons et du système de phonons. Ces deux systèmes sont étroitement couplés. Un même niveau de description est donc nécessaire pour l'étude de la dynamique des deux systèmes. Ces considérations s'appliquent également à la relaxation des trous. Une perturbation de la population des phonons LO, alors hors d'équilibre, créant le *bottleneck* peut survenir au cours de la relaxation de relativement grandes densités de porteurs photo-excités, le nombre de phonons émis étant proportionnel à la quantité de porteurs relaxant.

De grandes densités de porteurs de charges peuvent aussi être la cause d'effets assez complexes d'écrantage de l'interaction porteur—phonon optique polaire et peuvent donner lieu à des modes couplés phonons LO—plasmons.^{117, 118} Au cours de la relaxation des porteurs, les effets liés à leur grande concentration (écrantage, LOPCM) sont en compétition avec le *bottleneck*, ce qui justifie leur étude simultanée.

Plusieurs auteurs ont pris en compte la dynamique des phonons LO, en utilisant l'approximation du temps de relaxation (*Relaxation Time Approximation* en anglais (RTA)) dans les codes MC de porteurs de charges.^{43, 119} Nous reviendrons plus loin sur la pertinence d'une telle approche. Dans le cadre du présent travail de recherche, le MC phonon développé dans le cadre de cette thèse, est couplé à un Ensemble MC porteurs de charges

développé par Eric TEA.^{99, 100} Une telle approche permet le traitement simultané des deux systèmes porteurs de charges et phonons sans l'utilisation de la RTA. Dans les sections suivantes, le couplage entre les deux MC sera présenté ainsi que les effets que chaque système (porteurs, phonons) ont l'un sur l'autre.

L'étude est axée autour de la dynamique des électrons, vu l'importance que porte la communauté scientifique et les contextes technologiques actuels de l'effet des phonons sur la dynamique des électrons. L'impact des phonons chauds et des LOPCM sur la relaxation de porteurs chauds sera ensuite discuté comme exemple d'application de ce couplage.

VI.2. Couplage MC porteurs/phonons

VI.2.a. MC porteurs

L'équipe au sein de laquelle j'ai effectué mon travail de thèse travaille sur la modélisation du transport des porteurs depuis plus de 15 ans. Des solveurs de l'équation de Boltzmann pour les porteurs de charge ont été développés tout comme des codes qui calculent les structures électroniques des matériaux semi-conducteurs.

Concernant le transport des porteurs de charge et plus largement les mécanismes de relaxations des électrons et des trous, l'équipe dispose de codes déterministes (3D, 2D full band) et pour les calculs de structures électroniques des approches $k.p$ multi bandes (30 pour Oh ou Td) incluant les effets de contraintes et le confinement quantique et pseudo potentiel. Ces outils ont été développés par des membres de l'équipe ou des doctorants. En parallèle avec une large fraction de mon travail au sein de l'équipe, E. Tea a travaillé sur des améliorations significatives du code Monte Carlo 3D porteurs de charge de l'équipe.¹⁰⁰

Après avoir amélioré le code de calcul de structures électronique de Monsieur F. Aniel qui incluait déjà le couplage spin-orbite en y ajoutant la prise en compte de la non-localité des potentiels atomiques, E. Tea a abandonné la représentation analytique des bandes dans le code MC pour lui substituer la « véritable » structure électronique. On parle alors d'un « Ensemble Monte Carlo Full-Band ».

Le code MC porteurs de charge qu'E. Tea a pris en main au début de sa thèse incluait les interactions des électrons avec les phonons acoustiques, optiques, optiques polaires et piézoélectrique, la diffusion sur le potentiel d'alliage et sur les impuretés ionisées (via l'approche de Brooks et Herring) et de manière anecdotique l'interaction avec les plasmons 3D. Une équation de balance sur les phonons optiques polaires de centre de zone permettait de prendre en considération le « chauffage » des phonons via un calcul régulier des taux d'interaction. Enfin le principe d'exclusion de Pauli avait été mis en œuvre via une approche de rejection.

E. Tea a pris en compte la dynamique des trous en montrant le rôle clef joué par le terme de recouvrement des parties périodiques des ondes de Bloch au-delà de l'approche de Wiley dont le domaine de validité est extrêmement limité. Il a pris en compte de manière très fine l'ionisation par choc, l'effet Auger mais surtout la diffusion sur les impuretés ionisées via le calcul de la fonction diélectrique. Cela a permis l'étude détaillée de différentes interactions d'origine Coulombiennes entre porteurs telles que les collisions électron-électron, électron-trou, trou-trou, et l'écrantage. Un écrantage statique fonction des densités de porteurs qui peuvent dépendre du temps (et qui passe continûment du type Debye-Huckel au type Thomas-Fermi) a fait l'objet d'un soin particulier afin de ne pas trop allonger les temps de calculs.

Les facteurs de recouvrement, évoqués plus haut, se sont révélés indispensable à la modélisation de l'absorption optique (impulsions et CW (Continuous Wave)) et la modélisation de la recombinaison radiative. Les routines développées permettent de modéliser des expériences de type « pompe-sonde » dégénérées ou non, où seuls les paramètres physiques de l'excitation (puissance, FWHM temporelle et spectrale) déterminent l'absorption sans autres paramétrages « artificiels ». Le principe d'exclusion de Pauli faisant systématiquement partie du code Monte Carlo porteurs de charge global, les phénomènes tels que le blanchiment de l'absorption en bords de bandes peuvent être implicitement traités.

Les facteurs de recouvrement se sont également révélés indispensables à la modélisation des processus d'ionisation par choc. Le modèle développé inclut le calcul de l'élément de matrice et une conservation fine de la quantité de mouvement et de l'énergie. Ce modèle se rapproche des calculs *ab initio* et se place au-delà de l'approche « random-k » de

Kane et, bien entendu, du modèle analytique de Keldysh. De plus, le taux d'ionisation par choc étant calculé « en interne », la distribution réelle des porteurs dans l'espace réciproque (et en conséquence l'anisotropie des taux d'ionisation par choc) et la non conservation du nombre de particule sont pris en compte. Cela permet de dépasser la pratique habituelle, dans laquelle l'ionisation par choc est introduite dans un modèle MC porteurs de charge de façon paramétrée et ne permet que le calcul du coefficient d'ionisation qui est, *in fine*, tout aussi paramétré.

De manière symétrique (bien que dans la pratique de manière très différente), un modèle pour les processus Auger a été développé avec le même souci de rigueur. Ce modèle calcule également le taux de recombinaison Auger en interne et s'affranchit donc d'un paramétrage du type coefficients Auger, coefficients qui ne sont pas toujours disponibles expérimentalement en fonction de la température.

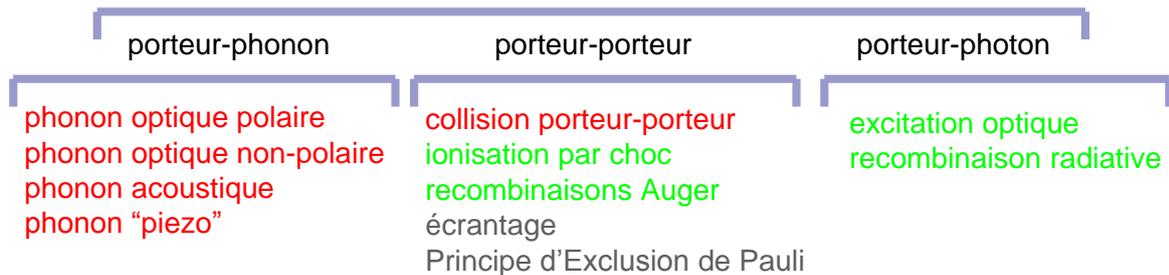


Figure 19. Interactions prises en compte dans le code MC porteurs de charge utilisé.

La Figure 19 représente de manière schématique les interactions prises en compte dans le code MC porteurs de charge.¹⁰⁰

Maintenant, la prise en compte du « phonon bottleneck effect » et des LOPCM par E. Tea, dans le code MC porteurs de charge, est détaillée. L'effet *bottleneck* étant lié à l'accumulation de phonons excédentaires (« phonons chauds ») ; les taux d'interaction porteur – phonon LO doivent être recalculés en permanence tout au long de la simulation en utilisant le « vrai » nombre moyen d'occupation des états de phonon, qui peut dévier de sa valeur d'équilibre.

Le calcul de ce taux est opéré à partir du taux d'interaction général porteur – LOPCM qui est donné par¹⁰⁰

$$W(k) = \frac{2\pi}{\hbar} \iint \frac{e^2}{q^2} \operatorname{Im} \left(-\frac{1}{\varepsilon_T(q, \omega)} \right) \left(n(q, \omega) + \frac{1}{2} \mp \frac{1}{2} \right) \delta_{k \pm q - k'} \delta_{E_k \pm \hbar\omega - E_{k'}} \frac{d\hbar\omega}{\pi} \frac{d^3q}{(2\pi)^3}, \quad (\text{VI.2.1})$$

où sont omises les contributions des électrons et des trous à la fonction diélectrique totale ($\varepsilon_T(q, \omega) = \varepsilon_\infty + \varepsilon_{lat}(\omega) + \varepsilon_e(q, \omega) + \varepsilon_h(q, \omega)$ avec $\varepsilon_e(q, \omega) = \varepsilon_h(q, \omega) = 0$). Le k et E_k , étant le vecteur d'onde et l'énergie de l'état initial du porteur de charge, respectivement, k' et $E_{k'}$, ceux de l'état final du porteur de charge, respectivement. e est la charge du porteur de charge. Les signes supérieur et inférieur correspondent respectivement aux processus d'absorption et d'émission. Les deux deltas assurent la conservation globale (porteur + phonon) de l'énergie et de la quantité de mouvement.

Dans le cas où l'on considère une branche de phonon plate ($\omega(q) = \text{constante}$, modèle d'Einstein), la fonction spectrale $\operatorname{Im}(-1/\varepsilon_T(q, \omega))$ peut se réduire à

$$\operatorname{Im} \left(-\frac{1}{\varepsilon_T(q, \omega)} \right) = \frac{\omega_{LO}\pi}{2} \left(\frac{1}{\varepsilon_\infty} - \frac{1}{\varepsilon_s} \right) \delta(\omega - \omega_{LO}). \quad (\text{VI.2.2})$$

Si on considère que la population de phonon LO est à l'équilibre, la double intégration de l'éq. (VI.2.1) mène au taux d'interaction porteur – POP habituel calculé avec le couplage de Fröhlich.²⁵

En levant l'approximation consistant à dire que la population de phonon LO reste constante et à l'équilibre, on peut insérer le « vrai » nombre d'occupation moyen des états de phonon dans (VI.2.1) et intégrer numériquement. Cela permet de prendre en compte l'accumulation des phonons LO et donc l'effet *bottleneck* des phonons.

Dans cette étude, aucun champ électrique n'est appliqué. Il n'y a donc pas d'orientation privilégiée pour les phonons impliqués dans les interactions porteur – POP. Le nombre d'occupation moyen des états de phonon peut donc être considéré isotrope dans l'espace réciproque et être fonction de la norme du vecteur d'onde seulement. Dans le MC, l'espace réciproque est discrétisé par des sphères avec un pas radial dq . En effet, l'espace réciproque d'un cristal massif étant extrêmement dense, il n'est pas envisageable de traiter

numériquement tous les points de l'espace réciproque. $n_{LO}(q_i)$ est alors défini comme le nombre moyen d'occupation des états de phonons entre q_i et $q_{i+1} = q_i + dq$, et couvre le volume de l'espace réciproque $\Omega(q_i) = (4/3)\pi(q_{i+1}^3 - q_i^3)$.

Lors de l'émission/absorption d'un phonon LO de vecteur d'onde q_p par une super-particule du MC (électron ou trou), $n_{LO}(q_i)$ (avec $q_i < q_p \leq q_i + dq$) doit être augmenté/diminué d'une valeur $\Delta n(q_i)$. D'après la définition de $n_{LO}(q_i)$

$$n_{LO}(q_i) = \frac{\text{nombre d'états occupés dans } \Omega(q_i)}{\text{nombre d'états total dans } \Omega(q_i)} \quad (\text{VI.2.3})$$

et donc $\Delta n(q_i) = \frac{\text{nombre de phonons émis ou absorbés}}{\text{nombre d'états total dans } \Omega(q_i)}$.

Le nombre d'états total dans l'élément $\Omega(q_i)$ de l'espace réciproque est donné par $dn_{tot}(q) = V \times \Omega(q) / (2\pi)^3$ où V est le volume du cristal.

Comme dans le MC un nombre de porteurs $N_{porteurs}$ est échantillonné par N_{SP} super-particules, le nombre de phonons émis ou absorbés est $N_{porteurs} / N_{SP}$. Le terme d'incrément/décément du nombre moyen d'occupation des états de phonons LO est donc donné par

$$\Delta n(q) = \frac{N_{porteurs} / N_{SP}}{dn_{tot}(q)} = \frac{(2\pi)^3 \times (n / N_{SP})}{(4/3)\pi(q_{i+1}^3 - q_i^3)}, \quad (\text{VI.2.4})$$

où la densité de porteurs est $n = N_{porteurs} / V$.

Afin de prendre en compte dans le MC porteurs de charges, l'évolution de la population de phonon LO qui n'est pas due aux interactions porteur-phonon, donc due aux interactions phonon-phonon, un code MC dédié à la dynamique des phonons (voir sous-section VI.2.b) est intégré.

Un moyen beaucoup plus simple (et systématiquement utilisé dans la littérature : Lugli *et al.*⁴³ et Kocevar¹¹⁹ par exemple) que de recourir à un code MC dédié, est d'utiliser l'approximation de temps de relaxation (ATR). Cette approximation suppose qu'une distribution de phonons perturbée revient à l'équilibre thermodynamique initial de façon

exponentielle. En définissant Δn_{LO} comme la partie de n_{LO} représentant les phonons excédentaires telle que $n_{LO} = \overline{n_{LO}} + \Delta n_{LO}$, l'évolution temporelle de n_{LO} est donnée par

$$n_{LO}(t) = \overline{n_{LO}} + (\Delta n_{LO} \times \exp(-t/\tau_{LO})), \quad (\text{VI.2.5})$$

où τ_{LO} est le temps de vie des phonons excédentaires. Comme tout au long d'une simulation « MC porteurs » Δn_{LO} varie à chaque pas sur le temps dt , il est plus pratique de recourir à l'évolution temporelle. Comme Δn_{LO} est à chaque fois redéfini, le temps dans l'exponentielle aussi ($t = 0$)

$$\frac{\partial n_{LO}}{\partial t} = -\frac{n_{LO} - \overline{n_{LO}}}{\tau_{LO}}. \quad (\text{VI.2.6})$$

La ATR suppose que tous les phonons LO ont le même temps de vie τ_{LO} , indépendamment de leur vecteur d'onde. Elle suppose également que le temps de vie est constant, et que la distribution de phonons relaxe de façon exponentielle indépendamment de la perturbation Δn_{LO} . Afin d'améliorer la ATR, on introduit dans l'éq. (VI.2.6) un temps de vie dépendant du vecteur d'onde $\tau_{LO}(q)$ calculé à partir des taux de relaxation des phonons LO dû aux interactions à trois phonons (voir chapitre III).¹²⁰

La prise en compte des LOPCM a déjà été détaillée dans la thèse d'Éric TEA¹⁰⁰ et relève du cadre de son travail de recherche et n'était pas un thème du travail de recherche entrepris dans la présente thèse. Rappelons tout de même que la fonction diélectrique totale $\varepsilon_T(q, \omega)$, à partir de laquelle est calculé le couplage entre les modes de phonons et les modes de plasmons, contient une partie électronique qui dépend des susceptibilités du premier ordre χ_i , et des constantes d'amortissement Γ_i . D'après le modèle de Mermin elle est donnée par¹²¹

$$\varepsilon_{i=e,h}(q, \omega) = \frac{(1 + i\Gamma_i/\omega)\chi_i(q, \omega + i\Gamma_i)}{1 + (i\Gamma_i/\omega)[\chi_i(q, \omega + i\Gamma_i)/\chi_i(q, 0)]}. \quad (\text{VI.2.7})$$

Les susceptibilités sont calculées « en temps réel » sur les distributions de porteurs de l'EMC. Il en est de même pour les constantes d'amortissement. Il a été suggéré d'utiliser les temps de relaxations du moment pour évaluer ces constantes : $\Gamma_i = 1/\tau_m^i$.¹²² Les termes d'affaiblissement Γ_i sont des paramètres effectifs servant à mesurer l'amortissement des

oscillations des plasmas d'électrons et de trous.¹²³ Il n'est donc pas exclu d'utiliser les taux moyens d'interaction total au lieu des temps de relaxation du moment car n'importe quelle interaction contribue à l'amortissement des oscillations, et ce, indépendamment de l'orientation du moment résultant. Il est plus pertinent d'évaluer le taux moyen d'interaction total en absence de champ électrique.

L'évaluation des temps de relaxation du moment en absence de champs électrique nécessite la réintégration complète et répétée de tous les taux d'interaction. L'évolution temporelle des constantes d'amortissement suivra donc celle des taux d'interaction, le taux moyen d'interaction total étant donné par

$$W_{tot}^{i=e,h} = \sum_{c_i} \left(\sum_{s_i} w_{s_i}(E_{c_i}) (1 - f_i(E_{c_i,f})) \right), \quad (\text{VI.2.8})$$

où le prime sur la première somme signifie que le résultat est moyenné sur la population de porteurs i . La seconde somme (loi de Matthiessen) court sur toute les interactions prises en compte dans le modèle, $w_{s_i}(E_{c_i})$ étant le taux d'interaction pour le processus s_i évalué pour le porteur c_i à l'énergie E_{c_i} . Le facteur $(1 - f_i(E_{c_i,f}))$ tient compte du principe d'exclusion de Pauli où $f_i(E_{c_i,f})$ est la fonction de distribution de la population de porteurs i évaluée à l'énergie de l'état final $E_{c_i,f}$ (pour le processus s_i). En d'autres termes, W_{tot}^i est le taux d'interaction total incluant tous les processus de diffusion, moyenné sur la population de porteurs i qui est une donnée dynamique de l'EMC.

Comme les LOPCM ont une partie plasmon, l'effet « phonons chauds » n'est pas attendu à cause de l'amortissement des plasmons qui empêchent les effets d'accumulation dans la population des modes. Les temps de vie des phonons LO sont de l'ordre de quelques picosecondes alors que les temps d'interaction (amortissement, $1/W_{tot}^i$) sont sub-picosecondes. Le temps de vie effectif d'un LOPCM est donc court et $n(q, \omega)$ dans l'éq. (VI.2.1) est considérée suivre une statistique de Bose-Einstein.

VI.2.b. MC phonons

Pour le couplage entre les deux MC nous avons utilisés le solveur MC phonons présenté dans la partie V. En effet, nous nous intéressons dans cette partie uniquement à la

dynamique couplée des deux systèmes, phonons et porteurs de charges, et l'influence de l'un sur l'autre. C'est pour cela que nous avons besoin de la version du solveur MC qui résout l'ETB des phonons dans l'espace réciproque. Cependant, quelques modifications ont été introduites au solveur EMC phonon utilisé précédemment pour permettre le couplage et pour prendre en compte des phénomènes physiques observés lors du couplage porteurs de charges—phonons, et non nécessaires lors de l'étude de relaxation de phonons LO de centre de zone par exemple, comme c'était le cas dans la partie V de ce manuscrit.

Les densités totales de phonons dans un cristal étant extrêmement grandes (même à 300 K) et la différence entre les densités d'états de chaque branche variant sur plusieurs ordres de grandeurs, modéliser la densité totale de phonons par des super-particules est donc écarté pour des raisons de quantité de mémoire et d'optimisations de temps de calcul. Comme précédemment dans la partie V, seules les déviations Δn_{LO} vis-à-vis du nombre moyen d'occupation à l'équilibre thermodynamique $\overline{n_{LO}}$ sont modélisées et échantillonnées par des super-particules dans l'EMC phonons.

Au début de chaque simulation, les populations de phonons sont à l'équilibre. Les nombres moyens d'occupation à l'équilibre sont donc donnés par la statistique de Bose-Einstein à la température du réseau cristallin. Les déviations par rapport à l'équilibre sont issues des processus d'émission/absorption de phonon LO par les porteurs de charges dans l'EMC porteurs de charges. Les porteurs de charges pouvant émettre et absorber des phonons, les déviations par rapport à l'équilibre peuvent être positives (excès de phonons) ou négatives (déficit de phonons). C'est ce dernier type de déviation qui nécessite l'introduction de la principale modification dans la version du solveur MC phonons utilisée pour le couplage par rapport à celle utilisée pour l'étude de la dynamique des phonons uniquement.

Les super-particules peuvent donc être de deux types, correspondant aux déviations positives et négatives. Le concept derrière la déviation négative peut être comparé à celui de trou en bande de valence. Ce n'est cependant qu'un nouveau concept permettant la modélisation numérique. Nous avons appelés ces super-particules de déviations négatives des « *nonons* » par simplification et commodité d'écriture. Ces *nonons* sont présentés dans la section IV.7.

VI.2.c. Couplage du MC phonons avec le MC porteurs de charges

Le couplage entre les deux MC est réalisé en échangeant des informations sur la fonction de distribution des phonons LO $q n_{LO}$. Le MC porteurs de charges donne au MC phonons (après un pas de temps donné) la fonction de distribution perturbée à cause des processus d'émission/absorption de phonon par les porteurs (qui ont eu lieu pendant ce pas de temps). Le MC phonons évalue les déviations correspondantes et traite la dynamique des populations des phonons (pendant ce même pas de temps). Le MC porteurs de charge met alors à jour sa fonction de distribution de phonon LO à l'aide des résultats donnés par le MC phonons, et ainsi de suite. Ce mécanisme est schématisé sur la Figure 20.

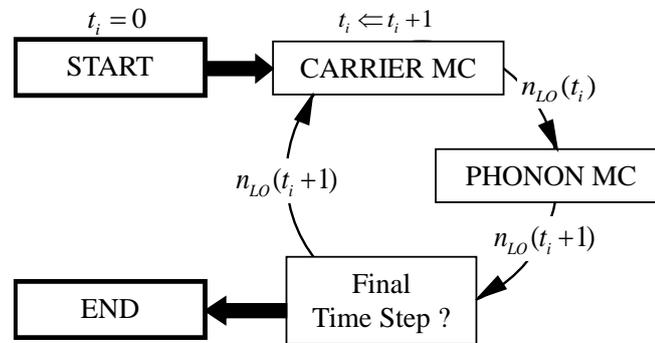


Figure 20. Schéma simplifié de l'EMC porteurs de charges/phonons couplé montrant la principale boucle d'itération sur le temps et le flux d'informations échangées entre les EMC individuels.

Seule la fonction de distribution des phonons LO est échangée entre les deux MC car la perturbation générée par la relaxation des porteurs de charges affecte principalement, et quasi exclusivement, la population de phonons LO de centre de zone. De plus, la décomposition de ces phonons LO étudiée par le MC phonons (et donc à l'aide de tous les processus à trois phonons, quelle que soit leur branche) a un impact très faible sur les populations de phonons des autres branches.¹²⁰ Les autres branches de phonons sont donc supposées à l'équilibre thermique tout le long de la simulation. Mais cela ne poserait pas de problème spécifique de prendre en considération toutes les branches. Le temps de simulation serait quant à lui nettement plus grand.

VI.2.d. Modélisation d'une expérience « pompe-sonde » : principes

Les expériences pompe-sonde permettent l'étude de la dynamique ultra rapide des porteurs de charges avec une résolution sub-picoseconde avec des lasers. Ces expériences donnent notamment partiellement accès au temps de vie des porteurs de charges. Dans une expérience pompe-sonde, les paires électron-trou sont photo-générées par une impulsion de pompe centrée à $t_0 = 0$ (origine de l'axe du temps). La puissance de la pompe est réglée afin de photo-générer la densité de paires électron-trou désirée. Ensuite, une impulsion de sonde centrée à $t_s = t$, de puissance bien inférieure afin de ne pas perturber la dynamique enclenchée par la pompe avec trop d'absorption supplémentaire, est envoyée sur le semi-conducteur avec un délai contrôlé $t_d = t - t_0$.

A l'aide d'une détection synchrone, la transmission en fonction du temps est mesurée. On peut alors construire un spectre de changement de transmission $\Delta T/T_0$ qui est proportionnel au changement d'absorption $\Delta\alpha$ ¹²⁴

$$\left(\Delta T(t)/T_0 = \frac{T(t) - T_0}{T_0} \right) \propto (-\Delta\alpha(t) = -(\alpha(t) - \alpha_0)) \quad (\text{VI.2.9})$$

où les symboles portant l'indice 0 correspondent aux valeurs de transmission et d'absorption en absence de pompe. En général, les $\Delta T/T_0$ sont normalisés à 1 pour faciliter les comparaisons donnant les $N\Delta T$.

Les $N\Delta T$ permettent donc de suivre l'occupation des états valence-conduction connectés optiquement par la sonde. L'évolution temporelle fournit des informations sur les taux de remplissage/vidage des états optiquement connectés. Un signal $N\Delta T$ croissant (avec le temps) indique le remplissage des états sondés, car l'échantillon devient plus transparent et par conséquent, moins absorbant à l'énergie de sonde. Réciproquement, un signal $N\Delta T$ décroissant (avec le temps) indique le vidage des états sondés, car l'échantillon devient moins transparent (plus absorbant) à l'énergie de sonde. Dans le MC porteurs de charges, le calcul des spectres $N\Delta T$ est obtenu à partir de l'absorption dont la prise en compte a été présentée dans la thèse d'E. TEA.¹⁰⁰

VI.3. Résultats

Dans cette section, les résultats de modélisation d'expériences pompe-sonde serviront de support pour la comparaison des rôles joués par les phonons chauds et les LOPCM dans la relaxation de porteurs photo-excités dans GaAs. Dans les deux expériences modélisées, les densités de porteurs-générés sont « faibles »,¹²⁴ et « grandes »,¹²⁵ Dans chaque cas, l'influence des phonons chauds et des LOPCM sera étudiée. Pour la dynamique des phonons LO, l'ATR et le MC phonons seront comparés.

VI.3.a. Densités de paires électron—trou faibles

Langot *et al.* ont étudié l'effet de *phonon bottleneck* sur la relaxation des porteurs en utilisant une expérience pompe-sonde non dégénérée.¹²⁴ L'énergie des photons de l'impulsion de sonde ($\hbar\omega = 1.46 \text{ eV}$) était inférieure à celle des photons de pompe ($\hbar\omega = 1.59 \text{ eV}$). Dans cette configuration, le spectre $N\Delta T$ donne une image du remplissage des états sondés par les porteurs relaxant depuis les états où ils ont été pompés.

La courbure des bandes de valence et de conduction impose aux électrons de récupérer la majeure partie de l'excès d'énergie des photons par rapport à l'énergie de bande interdite. La conséquence de cela est que le remplissage des états sondés vu sur les spectres $N\Delta T$ reflète principalement la dynamique des électrons car les trous sont pompés près (en énergie) des états sondés. De plus, les trous atteignent une configuration d'équilibre plus rapidement que les électrons car les taux d'interaction en bandes de valence sont en général plus grands que les taux d'interaction en bande de conduction. Comme la principale source de relaxation énergétique des porteurs est l'émission de phonons LO, on s'attend à ce que les résultats de mesure et de calcul caractérisent l'interaction porteurs de charges – phonon LO.

Les mesures de Langot *et al.*¹²⁴ ont montrés que le temps de remplissage des états sondés s'allongeait avec des densités de porteurs de charges pompées plus importantes. Ceci est une signature du *phonon bottleneck* où la relaxation des porteurs de charges est ralentie par les processus de ré-absorption des phonons précédemment émis. Ce point est illustré dans la Figure 21 où la montée du signal $N\Delta T$ est plus lente pour la densité pompée la plus grande ($n = 4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, symboles vides) que pour la densité plus faible ($n = 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$,

symboles pleins). Cette tendance est reproduite par les calculs tenant compte de la dynamique des populations de phonons avec le MC phonons (tirets et lignes pleines dans l'encart correspondant à $n = 4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ et $n = 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ respectivement) et ceux utilisant l'ATR (tirets et ligne pleines dans le graphe principal correspondant à $n = 4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ et $n = 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, respectivement).

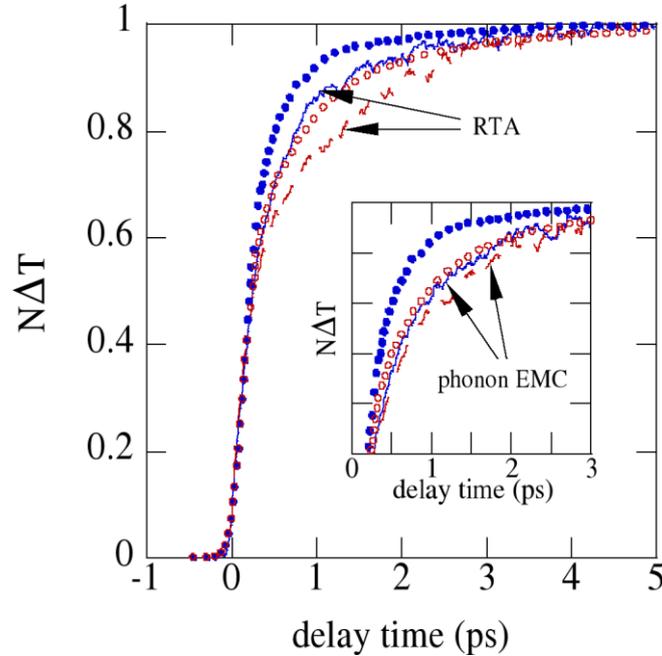


Figure 21. Spectres de changement de transmission normalisé mesurés (symboles¹²⁴) et calculés (lignes) pour des densités de porteurs faibles ($n = 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$: symboles bleus remplis et lignes pleines) et grandes ($n = 4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$: symboles vides rouges et tirets). Calculs avec ATR (RTA en anglais) sur le graphe principal et avec le MC phonons dans l'encart.

Les fonctions de distributions issues des calculs sont représentées en fonction du temps et du vecteur d'onde (donc dans le plan (q, t)) sur la Figure 22 pour $n = 4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ en utilisant le MC phonons et l'ATR (parties a) et b) respectivement). On note que la population des phonons LO de centre de zone dévie fortement de l'équilibre après l'impulsion de pompe (centrée en $t = 0$), et relaxe ensuite en quelques picosecondes. Pour des vecteurs d'onde $q > 1 \times 10^7 \text{ cm}^{-1}$ (correspondant à plus de 99% du volume de la 1^{ère} zone de Brillouin) la perturbation de la population de phonon est négligeable.

Les résultats calculés avec le MC phonons et l'ATR suivent les mêmes tendances. Cependant, comme noté dans la section V.3.a plus la perturbation sur la population de phonons LO est intense, plus la population relaxe vite. Ce comportement ne peut être

reproduit par l'ATR où le temps de vie τ_{LO} est indépendant de la population de phonon, et donc indépendant de la perturbation. Ceci est dû à l'hypothèse que dans l'ATR, le retour à l'équilibre se fait de façon exponentielle. Les fonctions de distribution calculées avec l'ATR montrent donc des maxima plus élevés que celles calculées avec l'EMC phonon. Elles ont le même comportement qualitatif mais montrent des différences quantitatives. En dépit de ces différences, les résultats concernant les spectres $N\Delta T$ (dynamique des porteurs) diffèrent peu d'une approche à l'autre. Pour les conditions modélisées, l'utilisation d'un modèle tel que la RTA semble suffisant et constitue une bonne approximation.

Sur la Figure 21, on peut noter que les temps de montée des $N\Delta T$ calculés ne reproduisent pas avec précision ceux mesurés. Afin de vérifier si cet écart peut être expliqué par les effets d'écrantage/anti-écrantage de l'interaction porteurs de charges – POP, des calculs avec LOPCM mais sans phonons chauds ont été menés. Avec LOPCM, les temps de montée des $N\Delta T$ calculés sont très courts, ce qui suggère que dans ces conditions ($n \leq 4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) les effets dus aux « phonons chauds » dominent.

Afin d'approfondir l'étude du *phonon bottleneck* dans cette expérience, les mêmes calculs pour une densité de porteurs photo-générés de $4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ont été menés mais cette fois avec une température initiale du réseau cristallin de 77K au lieu de 300K. A 77K les phonons « thermiques » présents à l'équilibre sont peu nombreux par rapport à 300K. Les phonons LO émis lors de la relaxation des porteurs constituent alors une perturbation énorme en regard du nombre de phonons à l'équilibre. Le *phonon bottleneck* pour la relaxation des porteurs est alors plus important que dans le cas à 300K. La dynamique du système total (porteurs + phonons) dépend alors de façon critique de la rigueur avec laquelle la dynamique des phonons est traitée.

Les fonctions de distribution des phonons LO et les changements de transmission ($\Delta T/T_0$, non normalisés) calculés pour une température initiale du réseau cristallin de 77K sont représentés sur la Figure 22 (parties (c) pour MC phonons et (d) pour ATR) et en Figure 23, respectivement. On note que le temps de montée de $\Delta T/T_0$ avec le MC phonons (ligne pleine) est légèrement plus lent que celui obtenu en négligeant la perturbation sur la population de phonons (pointillés). Cela indique un *phonon bottleneck* pour la relaxation des porteurs modéré. Les résultats calculés avec l'ATR (tirets) sont très différents.

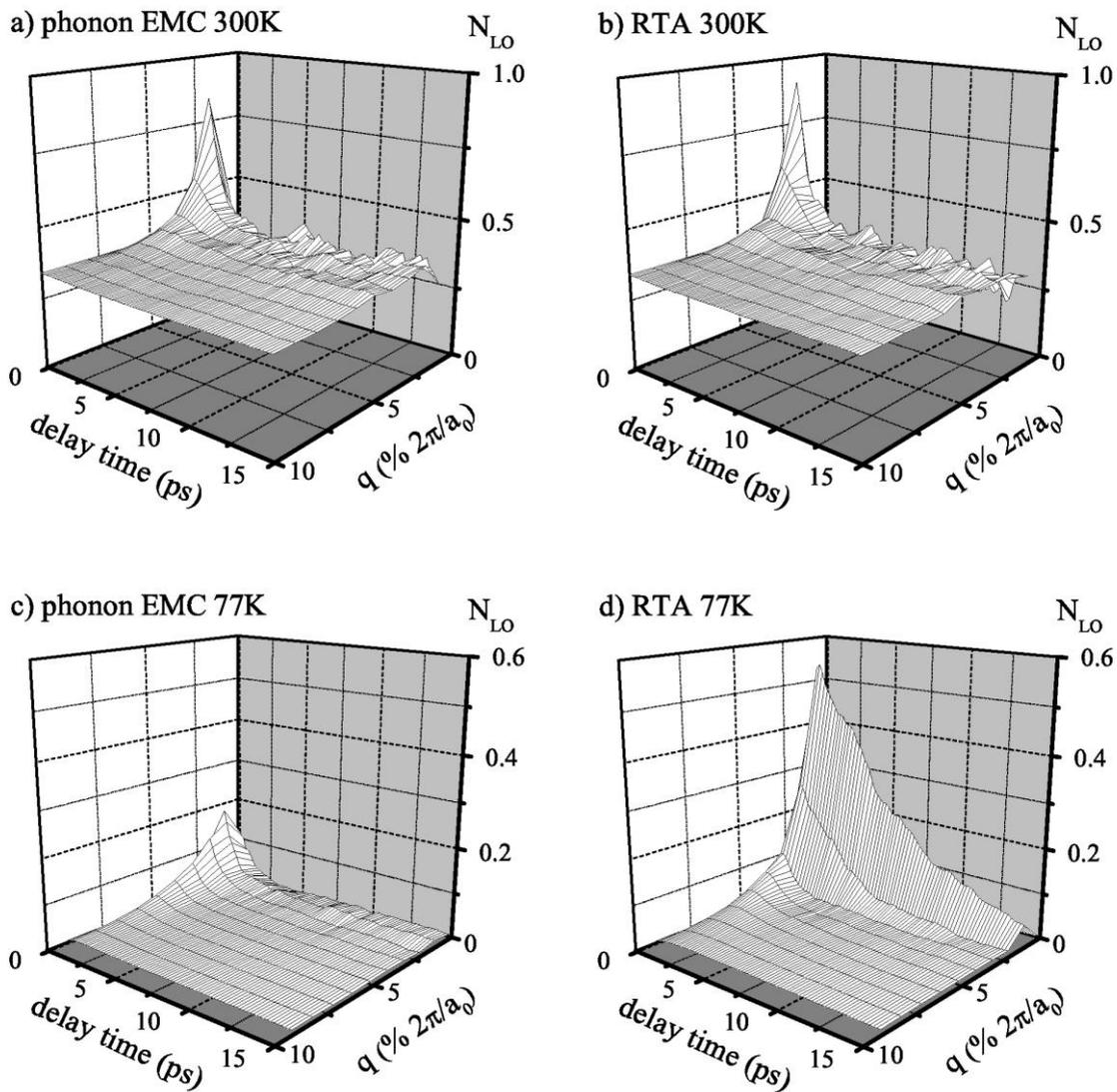


Figure 22. Fonction de distributions des phonons LO en fonction du temps et du vecteur d'onde calculées à l'aide du MC phonon (à gauche) et avec l'ATR (à droite, RTA en anglais) pour des températures initiales du réseau cristallin de 300 K (en haut) et 77 K (en bas)

Le temps de montée de $\Delta T/T_0$ obtenu avec l'ATR est très lent, ce qui indique un *phonon bottleneck* très efficace. La fonction de distribution correspondante illustrée sur la Figure 22 (partie d)) présente un extremum à une valeur beaucoup plus élevée que celle calculée avec le MC phonon (partie c)) indiquant une relaxation de la population de phonon très lente. Encore une fois, ceci est dû à l'hypothèse de retour à l'équilibre exponentiel.

L'excès de phonons dans le système total généré par la relaxation des porteurs peut être quantifié par le rapport entre la valeur maximale du nombre moyen d'occupation (dans

le plan (q, t)) et sa valeur à l'équilibre. Cela fournit une évaluation de la perturbation sur la population de phonon et comment le système total la gère.

Pour une température initiale de 77K, ce ratio est ~ 110 et ~ 40 pour les calculs avec l'ATR et le MC phonons, respectivement. Cela montre que l'ATR sous-estime la relaxation de la population de phonons LO. Cette relaxation est initialement rapide et non exponentielle, ce qui est une caractéristique du MC phonons quand la perturbation est grande. Pour une température initiale de 300K, ce ratio est ~ 2.5 pour les deux approches. A cette température, la différence entre les résultats de l'ATR et du MC phonons n'est pas flagrante car la perturbation de la population de phonons LO causée par la relaxation des porteurs est faible à cause des nombres moyens d'occupation des états de phonons plus élevés à l'équilibre thermodynamique. Dans le MC phonons, le régime de relaxation rapide non-exponentielle est alors très court. D'après le MC phonons, l'ATR surestime l'accumulation de phonons LO et donc le *phonon bottleneck* pour la relaxation des porteurs en résulte quand la perturbation initiale sur la population de phonons LO est grande.

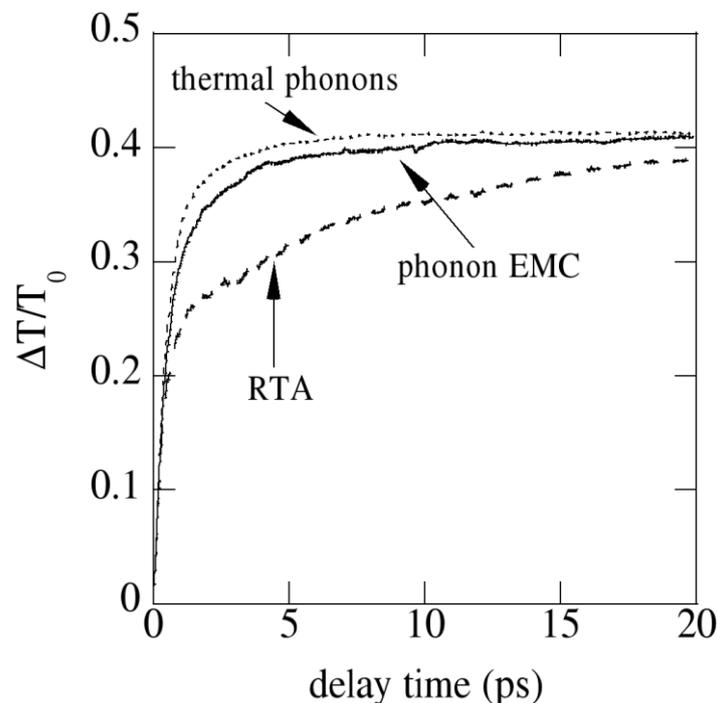


Figure 23. Changements de transmission calculés pour une densité de porteur photo générée de $n = 4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ en négligeant l'accumulation de phonons LO (phonons thermiques à 77K : pointillés), et en tenant compte de l'accumulation de phonons (RTA : tirets, phonon EMC : ligne pleine).

VI.3.b. Densités de paires électron—trou grandes

Lin *et al.* ont étudié la dynamique de relaxation des porteurs photo-générés en utilisant une expérience pompe-sonde dégénérée, où les photons de l'impulsion de pompe et de sonde ont la même énergie.¹²⁵ Ainsi le changement de transmission normalisé $N\Delta T$ reflètera le remplissage et le vidage des états valence—conduction optiquement connectés. À cause de l'énergie des photons relativement élevée ($\hbar\omega = 2 \text{ eV}$), trois types de transitions inter-bandes sont autorisés : les électrons peuvent être photo-excités à partir de la bande des trous lourds (« Heavy Holes » (HH)), la bande des trous légers (« Light Holes » (LH)), et la bande split-off (SO), vers la vallée centrale de la première bande de conduction (Γ). Les états sondés par les différents types de transition inter-bande s'étalent sur une gamme d'énergie relativement large. L'excès d'énergie moyen des porteurs photo-générés via les différents types de transition inter-bande sont listés dans le Tableau 5.

L'impulsion de pompe photo-générant une densité de paires électron-trou évaluée à $n = p = 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, le *phonon bottleneck* et les LOPCM peuvent a priori tous deux avoir lieu (pour $n = p = 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ photo-généré par des photons à $\hbar\omega = 2 \text{ eV}$, la saturation d'absorption n'est pas atteinte). Une analyse rapide du Tableau 5 peut aider à comprendre les spectres $N\Delta T$ mesurés¹²⁵ et calculés tracés en Figure 24. La discussion va être focalisée sur les électrons car les trous relaxent plus vite et la plupart d'entre eux sont photo-générés près du bord de bande. En effet, pour $t > 0.1 \text{ ps}$ les trous sont quasiment à l'équilibre.

	$HH \rightarrow \Gamma$	$LH \rightarrow \Gamma$	$SO \rightarrow \Gamma$
Excès d'énergie dans la bande de Conduction	0.490	0.360	0.150
Excès d'énergie dans les bandes de Valences	0.090	0.220	0.430

Tableau 5. Excès d'énergie moyens (en eV) des porteurs photo-générés par des photons à $\hbar\omega = 2 \text{ eV}$ dans GaAs. Les excès d'énergie dans la bande de conduction et les bandes de Valence sont calculés à partir des extrema des bandes de conduction et HH (trous lourds) respectivement.

Juste après l'impulsion de pompe (centrée à $t = 0$), $N\Delta T$ décroît car les porteurs photo-générés sont diffusés hors des états « pompés/sondés » rendant l'échantillon moins transparent. La restauration de la transparence initiale montre cependant deux composantes. La première correspond à la diffusion très rapide des porteurs hors des états sondés

(principalement par les transitions $HH \rightarrow \Gamma$) étudiée par Bailey *et al.* par des calculs EMC.¹²⁶ La seconde est plus lente et est gouvernée par la relaxation des électrons photo-excités via les transitions $HH \rightarrow \Gamma$ et $LH \rightarrow \Gamma$. Puisque ces transitions génèrent des électrons à « haute » énergie, ce qui est vu après 0.1 ps est le passage de ces électrons dans les états sondés par les transitions $SO \rightarrow \Gamma$, ce qui caractérise la relaxation des électrons.

Bailey *et al.* ont reproduit avec précision la composante rapide en ajustant le potentiel de déformation pour les interactions électron–phonon inter-vallée $\Gamma - L$. On peut conclure que la forme de la composante rapide autour de $t = 0$, est presque exclusivement contrôlée par ce potentiel de déformation. Cependant, leurs calculs n'ont pu reproduire la composante lente. Ici, tous les potentiels de déformation pour les interactions électron–phonon inter-vallée dépendent des branches de phonons¹¹⁴ et ont été ajustés à partir de valeurs calculées^{49, 127-129} afin de reproduire les propriétés de transport. Aucun paramètre de du MC n'a été ajusté pour la modélisation de l'expérience pompe–sonde et le calcul de $N\Delta T$.

Sur la Figure 24, les résultats calculés en tenant compte de l'accumulation de phonons LO avec la RTA et le MC phonons (tous deux tracés avec des tirets) sont loin des résultats mesurés pour la seconde composante, tout comme le résultat sans « phonons chauds » (libellé « raw relaxation »). Cela suggère que dans cette expérience il n'y a pas de phonons chauds et que la relaxation des électrons n'est pas ralentie.

L'autre effet suspecté d'affecter la relaxation des électrons est le LOPC. Les taux d'interactions porteurs de charges–LOPCM dépendent de la fonction diélectrique totale $\varepsilon_T(q, \omega)$, qui dépend de la distribution des porteurs et des paramètres d'amortissement Γ_i , qui eux-mêmes dépendent des distributions de porteurs. Les paramètres d'amortissement ne peuvent donc pas être fixés avant un calcul EMC car ils doivent être déterminés par le calcul EMC lui-même afin d'obtenir des résultats consistants d'un point de vue physique.

Afin de débiter avec une bonne estimation de ces paramètres, les temps de relaxation du moment ont été déterminés dans des calculs de mobilités auto-cohérents pour $n = p = 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$:^{99, 100} $4 \times 10^{-14} \text{ s}$ et $3 \times 10^{-14} \text{ s}$ pour les électrons et les trous,

respectivement. En gardant les paramètres d'amortissement alors obtenus ($\Gamma = 1/\tau_m$) constants, la courbe tracée en ligne fine (libellée LOPC) sur la Figure 24 a été calculée.

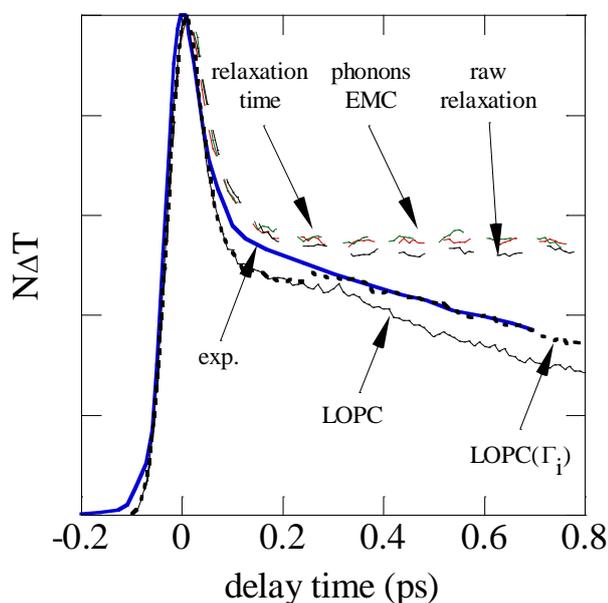


Figure 24. Spectres de changement de transmission normalisés mesurés¹²⁵ (exp. : ligne épaisse bleue) et calculés (lignes fines). Les calculs sans accumulation de phonons (« raw relaxation »), et avec la RTA et l'EMC phonons donnent pratiquement les mêmes résultats (tirets). Les résultats de calculs incluant les LOPCM avec un paramètre d'amortissement constant (LOPC) et un paramètre dynamique (LOPC(Γ_i)) sont tracés avec une ligne fine et des pointillés gras, respectivement.

La même dépendance temporelle que le spectre $N\Delta T$ mesuré est obtenue. Ce résultat suggère que la relaxation des électrons est rapide et qu'il n'y a pas d'accumulation de phonons LO à cause du couplage des phonons optiques polaires avec les modes de plasmons amortis. Cependant, dans un calcul de mobilité, les distributions de porteurs de charges ne sont que très peu déplacées de leur position d'équilibre. Ce n'est pas le cas lors de la photo-excitation de porteurs par des photons à $\hbar\omega = 2eV$ dans GaAs où ils se trouvent énergétiquement loin des bords de bande. On s'attend donc à ce que les paramètres d'amortissement varient au fur et à mesure que les porteurs relaxent et rejoignent leur distribution d'équilibre thermique.

Afin de prendre en compte la dépendance temporelle des paramètres d'amortissement, les taux moyens d'interaction total (VI.2.8) sont utilisés ($\Gamma_i = W_{tot}^i$). Les temps moyens d'interaction totaux $1/W_{tot}^i$ calculés sont représentés sur la Figure 25. Ils varient beaucoup en fonction du temps, ce qui montre l'importance d'un modèle dynamique

pour les paramètres d'amortissement. De plus, le changement de transmission normalisé calculé $N\Delta T$ (libellé LOPC(Γ_i) sur la Figure 24) reproduit la seconde composante parfaitement ($t > 0.2$ ps). La première composante est contrôlée par les transferts d'électrons $\Gamma - L$, en accord avec Bailey.¹²⁶ Ceci est illustré sur la Figure 25 (transfert $\Gamma - L$) où le temps moyen d'interaction total décroît à cause des taux d'interaction plus élevés en vallée L . Il faut noter qu'ici, les potentiels de déformation pour les interactions électron-phonon inter-vallée $\Gamma - L$ n'ont pas spécifiquement été ajustés pour reproduire $N\Delta T$.

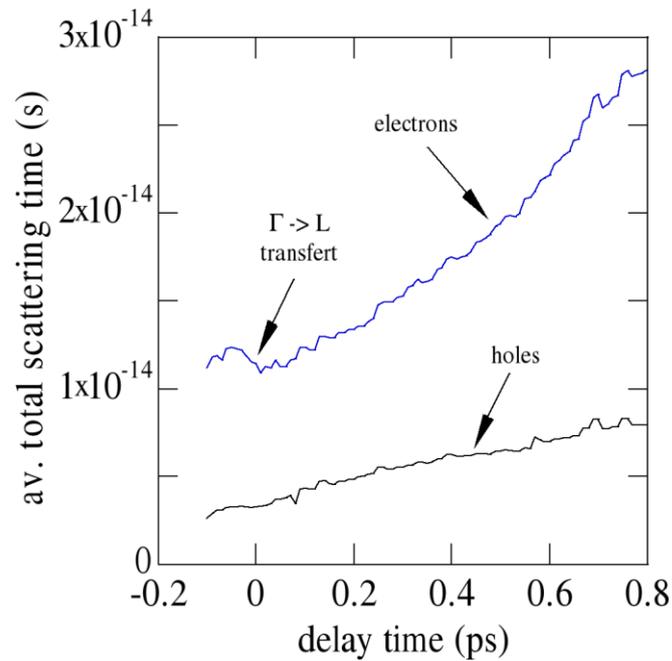


Figure 25. Temps moyens d'interaction total calculés ($1/W_{tot}^{i=e,h}$) pour les électrons et les trous en fonction du temps, issus et utilisés dans les calculs incluant la dépendance temporelle des paramètres d'amortissement ($\Gamma_{i=e,h} = W_{tot}^{i=e,h}$) pour le modèle LOPC.

VII Transport des phonons

Avec la réduction des dimensions des équipements électroniques, opto-électroniques et de conversion d'énergie, les conductivités thermiques des composants de ces équipements (par exemple les films minces et les nano-fils) sont aussi réduites. La grande densité de puissance électrique dans de tels dispositifs à faible conductivité thermique peut causer un échauffement très important avec des températures d'opération très grandes, des performances sous-optimales, et une mauvaise fiabilité. La prédiction de la réduction de la conductivité thermique dans les nanostructures constitue un élément critique pour le développement de stratégies de contrôle thermique.

Dans les semi-conducteurs les phonons dominent le transport thermique. Quand une nanostructure devient plus petite, sa conductivité thermique est réduite à cause d'interactions phonon-phonon et d'interactions des phonons avec les interfaces, plus fréquentes. Pour des systèmes de très petites tailles, les changements de la densité d'états des phonons influent aussi sur le transport thermique.

D'autre part, pour des applications visant les dispositifs thermoélectriques, on cherche à réduire le facteur de mérite ZT qui est proportionnel au coefficient de Seebeck au carré, à la température absolue, et inversement proportionnel à la résistivité électrique et à la conductivité thermique. Les contributions à ZT sont interdépendantes. Des outils de modélisation permettant l'étude de la conductivité thermique et, simultanément, des propriétés électroniques sont d'un intérêt primordial. On cherche à augmenter la conductivité électrique en réduisant en même temps la conductivité thermique.

Pour modéliser le transport thermique dans les semi-conducteurs nous avons développé trois solveurs MC, indépendants, de l'ETB des phonons dans les espaces réel et réciproque simultanément. Ces trois versions de code MC pour la résolution de l'ETB se basent sur trois stratégies différentes pour traiter le transport des phonons dans l'espace réel en plus de leur dynamique dans l'espace réciproque :

- Un code où nous simulons des super-particules représentant les populations totales des phonons en question

- Un code de réduction de variance, où nous avons introduit une nouvelle notion de super-particules que nous avons appelé les *nonons*, en simulant des particules de déviation, positives (phonons) et négatives (*nonons*), par rapport à un équilibre référence.
- Un code où nous simulons que des super-particules représentant la déviation positive des populations de phonons par rapport à un certain équilibre thermodynamique qui est défini dans le cadre de la simulation

Chacun de ces schémas de simulation implique des stratégies de traitement des conditions aux limites, des paramètres d'initialisation, du traitement des phases de diffusion (mouvement des super-particules) et d'interaction, et etc. différentes. Nous avons déjà introduit dans le chapitre IV les aspects généraux du code MC que nous utilisons. Dans ce chapitre, nous spécifierons, quand il y a lieu, les modifications ou les ajouts spécifiques à chaque version des solveurs MC dédiés au transport des phonons.

Nous présentons les solveurs, ainsi que la validation des codes à travers le calcul de la conductivité thermique dans des matériaux massifs et par l'extraction des profils de températures induit par des gradients thermiques, et d'autres applications.

Nous avons aussi développé d'autres versions de solveurs MC pour étudier le transport des phonons, avec des stratégies différentes, qui n'ont malheureusement pas abouties, et nous avons choisi de ne pas les évoquer dans ce manuscrit pour ne pas trop encombrer la discussion.

Dans la première partie de ce chapitre nous introduisons, de manière succincte, la résolution de l'ETB pour la modélisation du transport des phonons, puis nous abordons les trois versions différentes du code et les résultats obtenus.

VII.1. Résolution de l'ETB pour modéliser le transport

Pour modéliser le transport des phonons (et ainsi de la chaleur), il faut résoudre l'ETB complète des phonons. Dans cette partie nous allons alors résoudre l'ETB de l'éq.

(I.4.1) avec tous les termes sans négliger, comme nous l'avons fait pour les chapitres V et VI, la dépendance des fonctions de distributions par rapport à leur position dans l'espace réel.

Comme évoqué précédemment, le terme le plus compliqué dans l'ETB reste celui du membre de droite concernant les collisions ; cependant dans la présente configuration, au lieu de considérer uniquement les interactions phonon-phonon, il faut également envisager les interactions qui peuvent influencer sur la conductivité thermique en opposant de la résistance au transport des phonons. Ces mécanismes regroupent les interactions avec les impuretés, les interactions avec les bords, les interactions entre les porteurs de charge et les phonons, etc. et évidemment les interactions phonon-phonon. On considère généralement que les interactions phonon-phonon Umklapp comme les principaux mécanismes de résistances thermiques à température ambiante. Mais cela n'empêche pas les processus phonon-phonon normaux d'influencer aussi sur le transport, par la redistribution entre les différents états phononiques de l'énergie.

D'autre part, Il ne faut surtout pas oublier les conditions aux limites, parce que même si nous souhaitons simuler la conductivité thermique dans un matériau massif, le domaine de simulation géométrique présente nécessairement des dimensions finies.

Enfin, quelle que soit la stratégie adoptée pour résoudre l'ETB des phonons, nous allons être confrontés à des problèmes de variance. Pour étudier le transport des phonons il faudra considérer des super-particules qui représentent toutes les branches de polarisation des phonons et leurs vecteurs d'onde. On n'est plus juste intéressé, comme au chapitre V, par la relaxation d'un seul état phononique (les phonons LO de centre de zone notamment). C'est l'ensemble des phonons du système qui vont interagir entre eux et se déplacer et ainsi déterminer les propriétés du transport.

Il faut garder en mémoire, qu'un mode de phonon avec un vecteur d'onde donné \mathbf{q} et d'un mode de polarisation p implique le mouvement spécifique de tous les atomes de la totalité du cristal, et ainsi ne peut pas être vraiment localisé. Néanmoins, en superposant des états du cristal chacun avec un vecteur d'onde dans le voisinage $\Delta\mathbf{q}$ de \mathbf{q} , on peut construire un paquet d'onde phononique centré autour de \mathbf{q} et qui peut être localisé physiquement dans le cristal et qui se propage à la vitesse de groupe phononique $\nabla_{\mathbf{q}}\omega_{\mathbf{q},p}$.

Cependant, la localisation de ces paquets d'onde va induire une dégradation de la précision du vecteur d'onde (de l'ordre de $\Delta\mathbf{q}$), qui va à son tour se traduire par un manque de précision sur la position, selon la relation d'incertitude d'Heisenberg.

VII.2. Monte Carlo transport des phonons : populations totales

La modélisation d'un grand nombre de problèmes physiques liés au transport thermique hors-équilibre, sans aucune limitation à des cas spécifiques, requiert, un code prenant en compte tous les états de phonons.

Une des versions les plus « complète » d'un tel type de code, où les super-particules modélisent la totalité des fonctions de distributions des phonons, est celle qui a été développée par Mazumder & Majumdar,⁶⁰ puis modifié par Lacroix *et al.*,⁶⁴ et amélioré par Mittal & Mazumder.⁷³ Mais ces auteurs ont toujours utilisé l'approximation de temps de relaxation (ATR) avec une conservation de l'énergie assurée par des procédures numériques approximatives, et sans une réelle conservation de la quantité de mouvement car elle est approximée par des pratiques empiriques.

Pour notre part, en nous inspirant uniquement de la structure générale des codes décrits précédemment,^{60, 64, 73} et en incluant des procédures *ad hoc* utilisées pour les conditions aux limites du domaine de simulation, et pour le calcul de la conductivité thermique, nous avons développé le code MC dont il est question dans cette section. L'approche adoptée consiste en une méthode de partition, ou découplage, de l'ETB en deux équations, une sans interaction (*free flow equation*)

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v}_g \cdot \nabla_{\mathbf{r}} f = 0, \quad (\text{VII.1.1})$$

et une équation spatialement homogène avec le terme des collisions

$$\frac{\partial f}{\partial t} = \frac{\partial f}{\partial t} \Big|_{\text{collisions}}. \quad (\text{VII.1.2})$$

Cette approche est utilisée usuellement. Elle introduit une erreur du premier ordre sur le temps. Nous utilisons évidemment la méthodologie MC que nous présentons dans le chapitre IV. Le schéma de fonctionnement est explicité via l'organigramme de la Figure 26.

Nous avons aussi implémenté une version avec la modélisation de la totalité des populations des phonons de tous les états qui n'utilise pas ce schéma de découplage de l'ETB et évite ainsi l'erreur introduite sur le temps. C'est la procédure expliquée dans l'introduction de la section IV.4 et utilisée dans les deux versions suivantes de solveur MC pour le transport des phonons (voir Figure 27 et Figure 28).

Même si une telle démarche permet à ce code de modéliser un maximum de problème physique, un tel type de modélisation requiert des capacités de mémoires numériques assez conséquentes et des temps de calcul très (trop) long. Cela vient du fait qu'au lieu d'utiliser l'ETB linéarisé avec l'ATR nous faisons interagir les super-particules les unes avec les autres en appliquant directement la règle d'or de Fermi.

Le problème de variances s'ajoute à ce qui vient d'être évoqué. Nous modélisons les populations entières de tous les modes et états de phonons. Les différences des densités d'états et de nombre d'occupation moyen, liés à l'obligation d'utiliser un facteur d'échantillonnage pour réduire le nombre réelle de phonons à des échantillons stochastiques, pour des raisons pratique et de mise en œuvre numérique, induisent que les phonons acoustiques de centre de zone sont très mal représentés par une telle approche. Ce sont, pourtant, les phonons avec les plus grandes vitesses de groupe, qui a priori devraient participer significativement au transfert de la chaleur.

Ces divers problèmes n'ont pas permis de faire converger la présente version du code MC et d'obtenir des résultats satisfaisants. La phase de validation de cette version de code n'a pas abouti. Face à cette impasse, nous nous sommes tournés vers une nouvelle version de la méthode MC pour la résolution de l'ETB pour des phonons dans les espaces réel et réciproque.

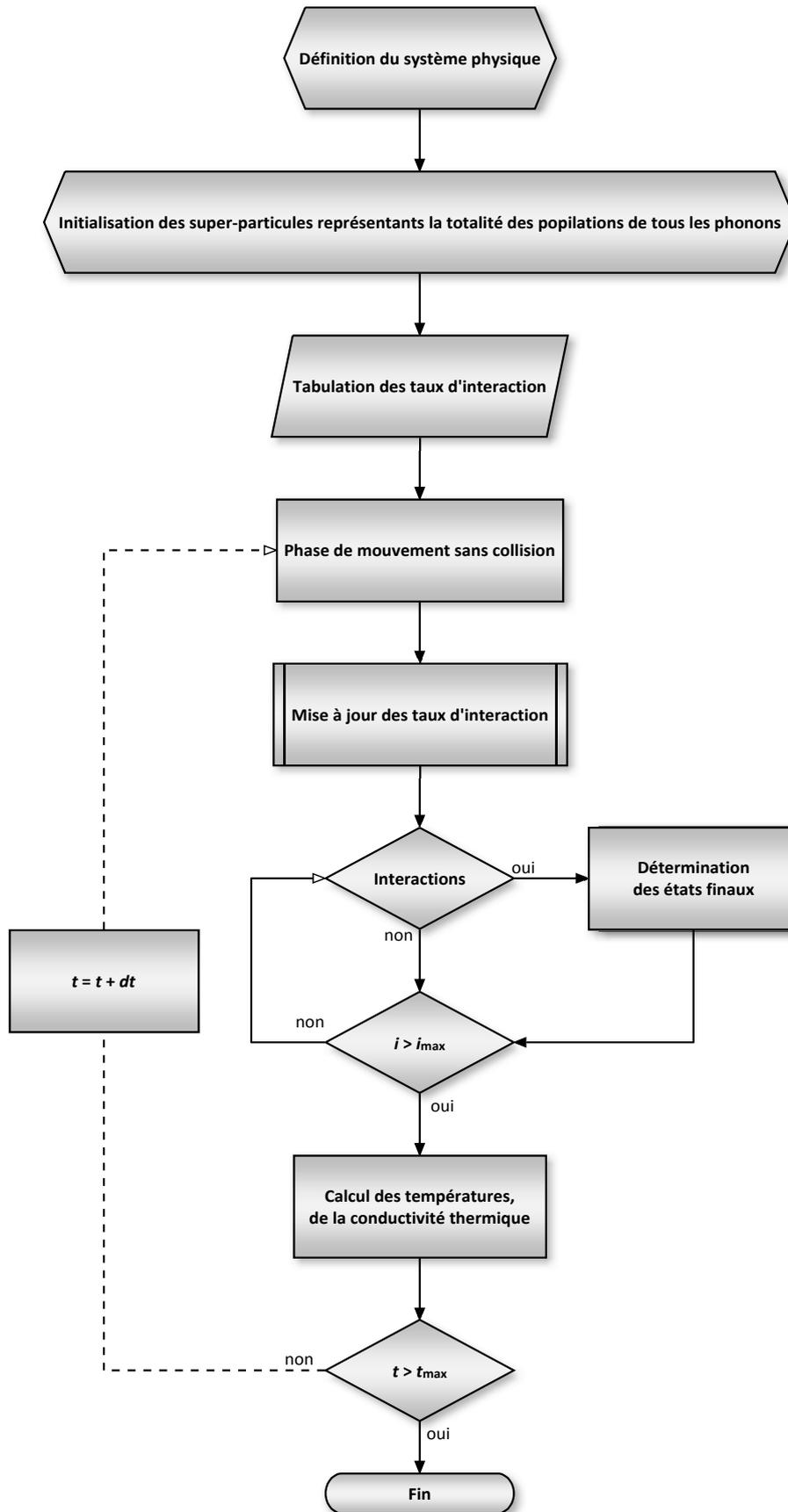


Figure 26. Organigramme de l'algorithme du solveur MC modélisant la totalité des populations de tous les phonons

VII.3. Monte Carlo transport des phonons : super-particules de déviation, positives et négatives : concept de 'nonon'

Ayant été confronté à des problèmes de variances avec la version du code Monte Carlo (MC) modélisant la totalité des populations des phonons de tous les modes, nous avons cherché des solutions pour réduire la variance des grandeurs manipulées forcément empreintes de bruit de quantification.

Pour cela, nous nous inspirons de l'approche de Hadjiconstantinou *et al.*,^{72, 94, 130} qui ont présenté une méthode MC à variance réduite pour la résolution de l'équation de transport Boltzmann (ETB) avec l'approximation du temps de relaxation (ATR). L'approche consiste à simuler uniquement la variation de l'équilibre et non pas les populations entières. C'est le même concept de base de ce que nous faisons pour la résolution de l'ETB dans l'espace réciproque uniquement (voir chapitres IVV). Leur approche était initialement appliquée au cas de gaz dilués, et ils ne l'avaient pas appliquée au cas du transfert de chaleur par les phonons.

Cette approche consiste à simuler une population de déviation $f_d = f - f_e$ d'une distribution d'équilibre « arbitraire » absolue, mais judicieusement choisie, f_e , au lieu de simuler la population totale f . Les super-particules de simulation peuvent ainsi représenter des déviations positives (comme c'était le cas dans le chapitre V) ou négatives selon le signe de f_d pour un état donné.

Le concept de particules de déviations négatives, « nonons », a été présenté dans la section IV.7. Notons que chronologiquement ces *nonons* été introduits initialement pour la présente approche MC avant d'être utilisés ailleurs.

Dans notre approche la population d'équilibre absolue f_e est prise comme une distribution de Bose-Einstein à la température de la face isotherme la plus froide quand nous faisons des calculs de conductivité thermique et de transfert de la chaleur avec les conditions aux limites imposées.

Dans le cadre de l'ETB linéarisée et utilisant l'ATR le terme de collision s'exprime comme

$$\left. \frac{\partial f}{\partial t} \right|_{coll} = - \frac{f - f_{loc}}{\tau}, \quad (\text{VII.1.3})$$

avec f_{loc} la population de pseudo-équilibre local définie comme une distribution de Bose-Einstein à la pseudo-température locale calculée dans chaque (voir section IV.6.c). Si on veut introduire la population de déviation f_d dans ce terme de collision on obtient

$$\left. \frac{df}{dt} \right|_{coll} = \frac{f_{loc} - f_e}{\tau} - \frac{f_d}{\tau}. \quad (\text{VII.1.4})$$

Usuellement les algorithmes MC utilisant l'ATR dans la littérature, éliminent des particules de simulation selon une probabilité dérivée du temps de vie, puis, en créent d'autres pour conserver l'énergie artificiellement via des algorithmes spécifiques, à caractère numérique uniquement, pour faire tendre la population de phonons vers une distribution de Bose-Einstein.

Connaissant ceci, nous pouvons expliquer le concept général de l'algorithme de réduction de variance proposé par Hadjiconstantinou *et al.*^{72, 94, 130} pour résoudre l'équation (VII.1.4). Dans leur approche, une partie de la population apparaît comme une déviation par rapport à l'équilibre thermodynamique absolue qui va relaxer grâce aux interactions, en éliminant des super-particules. Mais, cette fois, les super-particules sont créées pour vérifier le premier terme du membre de droite de l'équation (VII.1.4).

Dans notre cas, nous n'utilisons pas l'ATR, mais on applique directement la règle d'or de Fermi (ce qui a été rappelé un grand nombre de fois). Nous avons dû donc modifier l'algorithme de réduction de variance de Hadjiconstantinou *et al.*, tout en préservant l'esprit de la démarche. En premier lieu, il faut faire interagir les super-particules de déviation pour relaxer f_d . Dans notre configuration la conservation de l'énergie est assurée et il y a création (ou annihilation de particules de déviation de signe opposée) directement lors d'une interaction de super-particules. Cela a pour effet de ramener la population réelle locale f vers un équilibre thermodynamique définie par une distribution de Bose-Einstein. Mais l'équilibre thermodynamique local dans les cellules ne correspond pas à la température

absolue, donc à la distribution f_e , mais correspond à une température locale, et donc à la distribution f_{loc} .

De plus il y a une perturbation supplémentaire en continue, à cause des conditions aux limites. Cette perturbation va avoir tendance à amplifier la déviation f_d . Outre le fait qu'on ne simule que la perturbation, ce qui donne une meilleure représentativité des super-particules, pour réduire la variance, on peut alors introduire dans la simulation des super-particules représentant $f_{loc} - f_e$, en suivant le concept initial de la démarche de Hadjiconstantinou *et al.*, tout en mettant à jour la population f réelle.

Ainsi nous pouvons avoir, conceptuellement, une meilleure représentativité, dans chaque cellule, de la variance entre la distribution de Bose-Einstein à la pseudo-température locale f_{loc} et une vraie distribution de Bose-Einstein faisant partie de la population réelle. Cela permettrait de réduire la variance, tout en conservant une seule distribution de Bose-Einstein référence, pour toute la simulation.

Ces super-particules sont introduites après la phase d'interaction et de mouvement par une routine dédiée et appelée procédure de post-traitement des particules de déviation en fonction de l'équilibre local dans l'organigramme de la figure Figure 27.

Cette approche n'a malheureusement pas aboutie non plus. Nous avons été confrontés à des problèmes d'augmentation intempestive du nombre de super-particules, accompagnés par une divergence des températures locales calculées dans les cellules (ainsi que les énergies dans ces cellules) loin des limites de la température de référence et de la gamme des températures extrêmes fixées par les conditions aux limites.

Plusieurs approches ont été développées pour remédier aux problèmes de nombre excessif de super-particules et de la divergence des profils de température mais sans succès. Plusieurs distributions f_e références ont été utilisées également, pour tenter de remédier à ces problèmes, mais sans donner des résultats satisfaisants, non plus. En conclusion, cette approche complexe et ambitieuse pour la réduction de la variance n'a pas aboutie pour le moment et nous nous sommes tournés vers une simulation n'incluant que des particules de déviation « positive ».

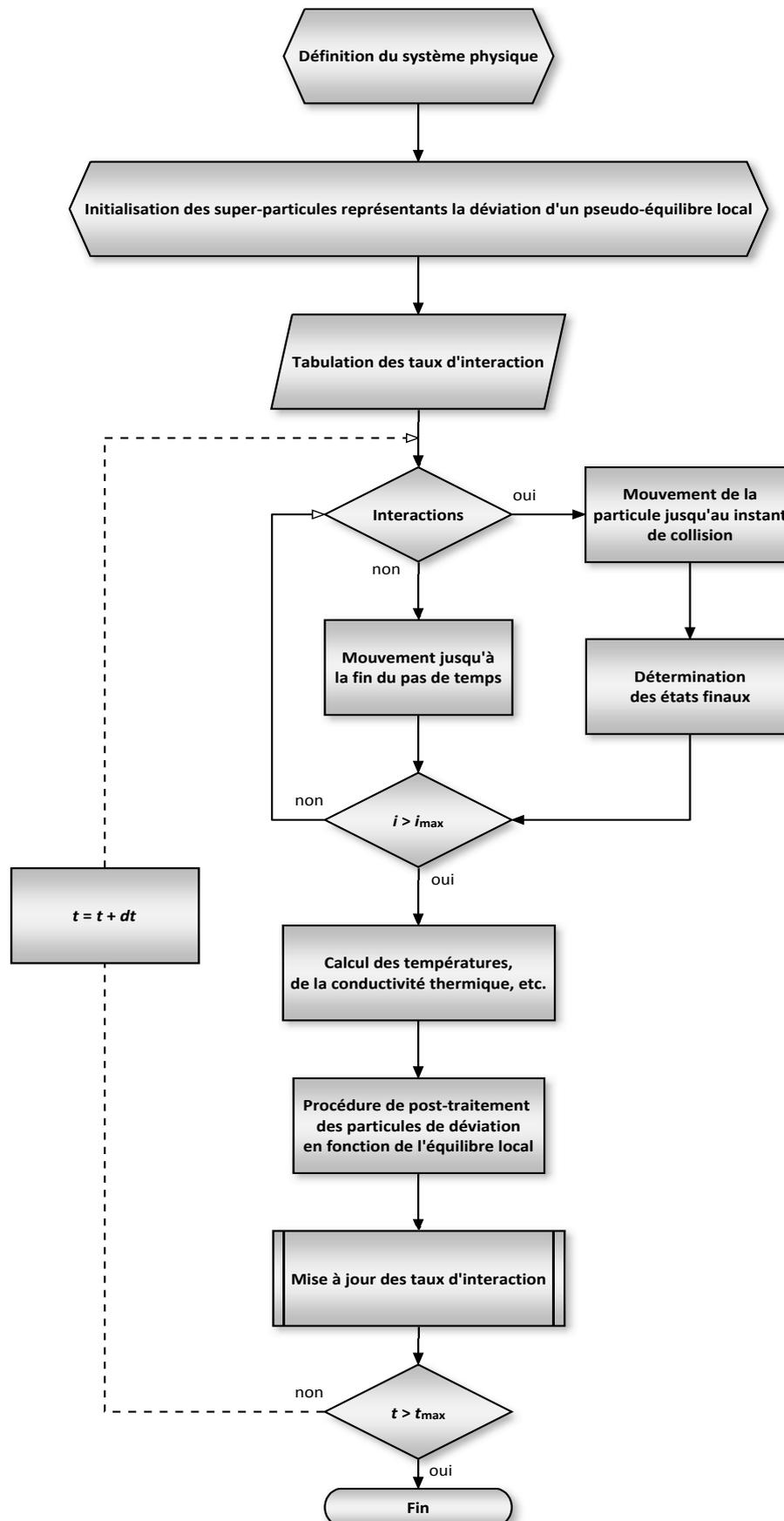


Figure 27. Organigramme de l'algorithme du solveur MC modélisant des déviations positives et négatives par rapport à un pseudo-équilibre local.

VII.4. Monte Carlo transport des phonons: super-particules de déviation

Cette version de solveur MC pour le transport des phonons que nous présentons reprend largement le travail qui a été réalisé dans le cadre de l'étude de la dynamique des phonons dans l'espace réciproque (simulation des particules de déviation positives uniquement), et s'inspire du même concept que Wong *et al.*¹³¹ ont utilisé pour le transport des phonons dans l'espace réel. Nous simulons uniquement les déviations des populations par rapport à une distribution à l'équilibre thermodynamique.

Dans le MC espace réciproque quand nous simulons que les particules de déviation, la distribution à l'équilibre thermodynamique est la distribution de Bose-Einstein à la température du cristal. Cette dernière peut être perturbée, par exemple, par l'émission de phonons chauds via la relaxation des porteurs de charges. Pour les cas particuliers simulés dans l'espace réciproque, ce sont en général seulement les phonons LO de centre de zone qui voient leurs populations perturbées initialement (MC phonons) ou tout au long de la simulation (couplage MC phonon et MC porteurs de charge). Pour les simulations dans l'espace réel, où on étudie le transport des phonons avec des applications de transfert de chaleur, et de conductivité thermique, la température du cristal varie au cours du temps et est fonction de l'espace. De fait, on se trouve dans une configuration différente de la précédente, ce qui pose problème.

Néanmoins, l'idée avancée par Wong *et al.*¹³¹ nous permet de pallier au problème ci-dessus, et de simuler le transport des phonons dans l'espace réel et l'espace réciproque en ne modélisant que des particules de déviation. Cela consiste à fixer une température référence au-dessus de laquelle les phonons sont initialisés pour tous les modes de polarisation et les vecteurs d'onde. Ainsi, seules les phonons représentant une déviation positive par rapport à la distribution d'équilibre thermodynamique à cette température de référence sont simulés, et la température ne descend pas en dessous de cette température de référence.

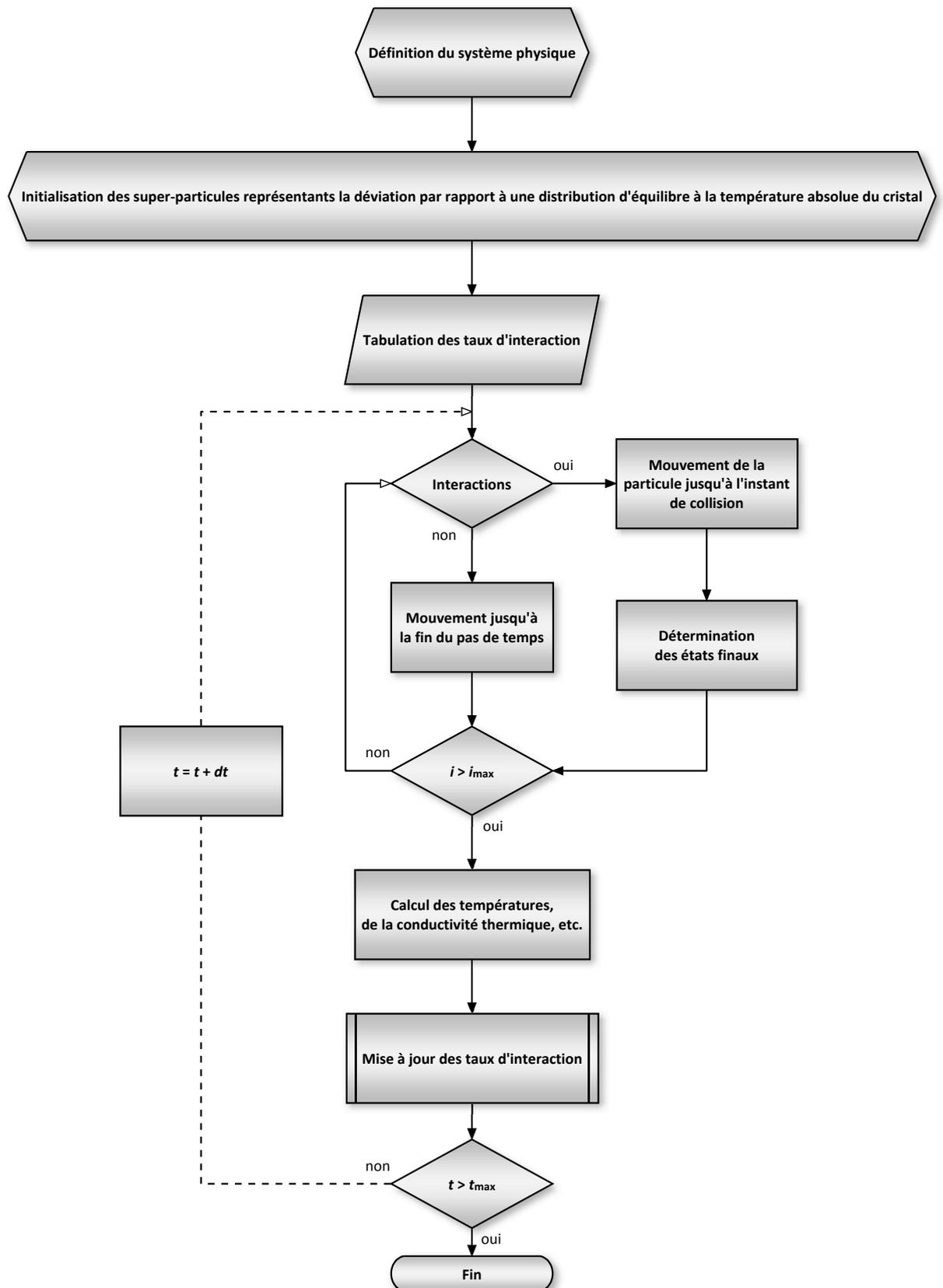


Figure 28. Organigramme de l'algorithme du solveur MC modélisant la déviation par rapport à une distribution d'équilibre à une température donnée absolue dans le cristal.

Cette approche a l'avantage de minimiser la demande de ressources numériques comparé au code MC modélisant la totalité des populations, que ce soit en capacité de stockage et de mémoire ou en temps de processeurs central et de calcul. De plus, cette approche permet une réduction du bruit statistique dû à la nature stochastique de la modélisation particulière MC.

Pour des simulations de conductivité thermique, nous fixons les conditions limites adéquates, par exemple les faces isothermes aux limites du domaine de simulation. Ces conditions aux limites vont engendrer un gradient de température dans la structure. Dans ce cas de figure, la température référence est prise égale à celle de la face isotherme limite la plus froide.

Dans la section suivante, nous procédons à la validation de notre solveur MC par des calculs de conductivité thermique dans des matériaux massifs, et de profil de température en régime balistique et en régime de diffusion. Avec une discussion des résultats obtenus.

VII.4.a. Résultats

Dans cette section nous présenterons quelques résultats préliminaires de simulations.

VII.4.a.i. Conductivité thermique en fonction de la température et coefficients de couplage anharmonique

Pour valider le code MC, nous commençons par comparer les valeurs de la conductivité thermique dans le Silicium tirées de nos simulations, en fonction de la température, avec des données expérimentales.

L'ajustement des coefficients de couplage anharmonique des modes de phonons optiques est effectué en utilisant l'approche explicitée précédemment dans la section V.1. Cependant, ce qui a été mentionné à propos des modes acoustiques n'est plus du tout valide pour les applications du présent chapitre. Les modes acoustiques étant les principaux vecteurs de la chaleur, à cause leurs grandes vitesses de groupe.

En Figure 29 nous présentons l'évolution de la conductivité thermique en fonction de la température dans Si. Les mesures expérimentales sont des résultats de Glassbrenner & Slack.¹³² Pour nos simulations nous avons utilisé un coefficient de couplage anharmonique qui permet d'ajuster la conductivité thermique extraite de la simulation MC à la valeur expérimentale de 300 K. Il est conservé constant pour les simulations aux autres températures. En première approche, notons, que la valeur du coefficient de couplage anharmonique est trouvée en tâtonnant d'une manière empirique à cause de l'absence de mesures expérimentales donnant les temps de vie des modes acoustiques comme c'est le cas pour les modes optiques. De plus, les coefficients de couplage anharmonique des modes LA et TA sont considérés comme égaux.

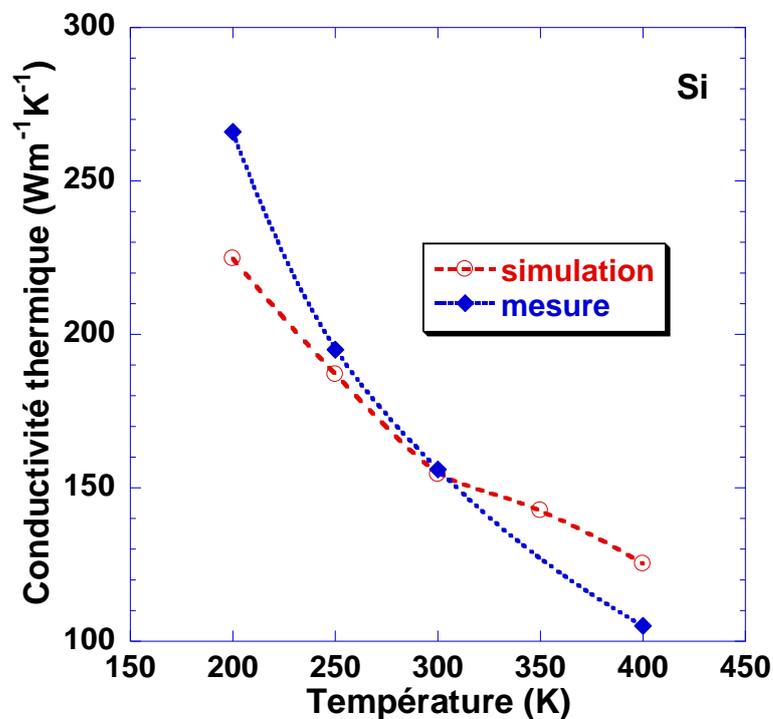


Figure 29. Comparaison entre les mesures expérimentales de Glassbrenner & Slack¹³² et résultats de simulation de la conductivité thermique dans le Silicium en fonction de la température. Le coefficient de couplage anharmonique est ajusté à 300 K à la valeur expérimentale de la conductivité thermique, et est conservé pour les simulations aux autres températures.

Nous retrouvons le même comportement général de la conductivité thermique mesurée, à savoir : elle évolue inversement proportionnellement à la température. Dès que l'on s'éloigne de 300 K, la différence, entre les valeurs expérimentales et ceux extraites des simulations, augmente. On garde, tout de même, un accord raisonnable. Evidemment, il serait possible de retrouver les valeurs expérimentales de la conductivité thermique en

ajustant le coefficient de couplage anharmonique des modes acoustiques à chaque température. D'ailleurs c'est ce qu'il faut faire, pour l'ajustement de ces constantes de Grüneisen acoustiques pour faire des études de transport de phonons à des températures différentes.

VII.4.a.ii. Transport à température ambiante et en régime de diffusion

Regardons maintenant les profils de température des simulations en régime permanent. En Figure 30 et Figure 31, nous pouvons observer les profils de température en régime permanent obtenues dans Si et GaAs, respectivement, autour de 300 K pour une différence de températures de 10 K des faces isothermiques d'un échantillon de 1 μm . A titre d'information un temps de calcul typique pour ce type de simulation est de ~ 40 heures sur une unité centrale récente avec une parallélisation du code et des tâches répartis sur 4 processeurs.

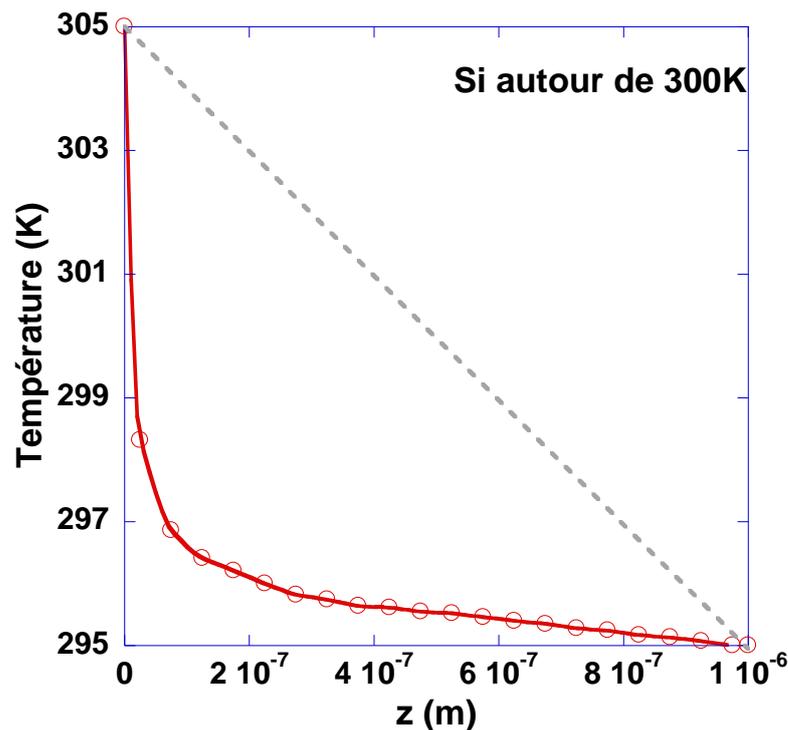


Figure 30. Profil de température dans le silicium autour de 300 K, avec une différence de température de 10 K imposée aux conditions aux limites. Domaine de simulation long de 1 μm , et des dimensions latérales de 0.5 μm . Avec la droite avec les tirets gris représentant la prédiction de l'équation de conduction de la chaleur d'un profil de température linéaire entre les deux températures des conditions aux limites.

On peut remarquer que nous n'avons pas des profils de température linéaires comme le prévoit l'équation de conduction de la chaleur. On pourrait argumenter que les dimensions du domaine de simulation sont petites, et il y a des effets balistiques non négligeables qui se manifestent, et que ces dimensions ne sont pas assez grandes comparés au libre parcours moyen des phonons (~ 35 nm dans le Si,¹³³ et ~ 50 nm dans le GaAs¹³⁴). Mais nous pouvons voir en Figure 32 dans le cas du GaAs pour un barreau d'une longueur de $10\ \mu\text{m}$ que nous retrouvons le même comportement non-linéaire.

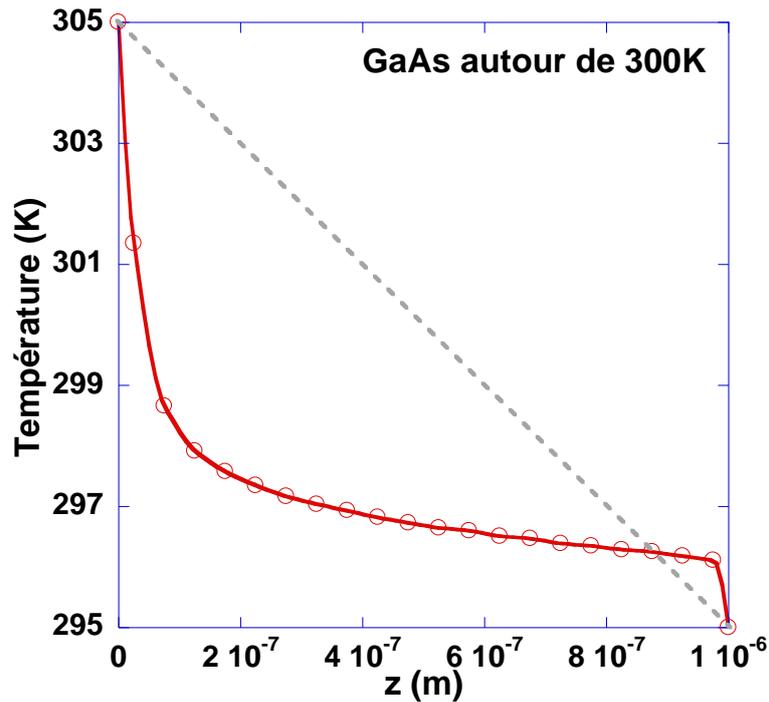


Figure 31. Profil de température dans l'arséniure de gallium autour de 300 K, avec une différence de température de 10 K imposée aux conditions aux limites. Domaine de simulation long de $1\ \mu\text{m}$, et des dimensions latérales de $0.5\ \mu\text{m}$. Avec la droite avec les tirets gris représentant la prédiction de l'équation de conduction de la chaleur d'un profil de température linéaire entre les deux températures des conditions aux limites.

Nous pouvons voir sur la Figure 30 et la Figure 31, que nous retrouvons un profil linéaire de température à une certaine distance de la face isothermique chaude d'où est injecté le flux de chaleur avec les super-particules de déviation selon les conditions aux limites. Cela contredit les résultats de calculs analytiques de l'équation de conduction de la chaleur, qui donne un profil linéaire en régime permanent sans sources. De telles solutions analytiques de l'équation de conduction de la chaleur sont adaptées pour des phénomènes macroscopiques. La nature non-linéaire des interactions anharmoniques, surtout au voisinage d'une perturbation (qui est ici l'injection d'un flux de chaleur à cause des conditions aux limites) semble de nature à induire un comportement non-linéaire avant

l'établissement d'une certaine linéarité au sein du domaine de simulation. Pour ça les courbes, de la Figure 30 et la Figure 31, nous semblent satisfaisantes.

De telles non-linéarités nous invite donc à de la prudence pour recourir sans stratégie à des modélisations de ce type pour dériver la conductivité thermique. La loi de Fourier, n'étant pas valide sur toute la longueur de l'échantillon, du moins dans la proximité immédiate de la source chaude.

Nous pouvons toutefois, considérer le domaine de simulation et le système physique qu'il représente, comme une boîte noire avec une fonction de transfert ; et les conditions imposées aux limites comme le signal d'entrée présenté à cette boîte noire. Dans le cadre d'une telle description, le flux moyen que nous extrayons d'une simulation devient la réponse de la fonction de transfert. Enfin, dans cette vision la conductivité thermique est le signal de sortie de cette boîte noire. On peut ainsi utiliser la loi macroscopique de Fourier pour décrire le comportement général de cette boîte noir, et en extraire un paramètre qui décrit le comportement général d'un matériau, appelé conductivité thermique.

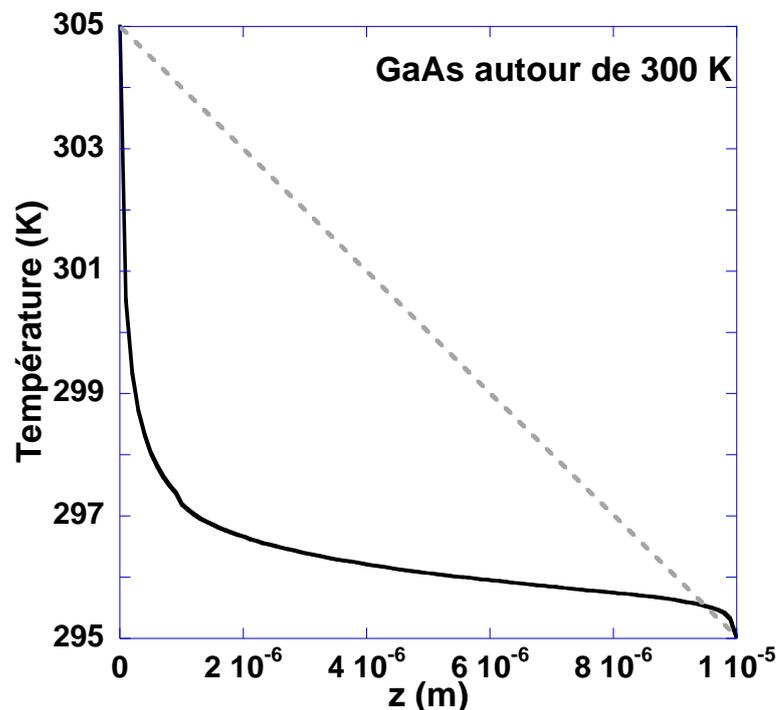


Figure 32. Profil de température dans l'arséniure de gallium autour de 300 K, avec une différence de température de 10 K imposée aux conditions aux limites. Domaine de simulation long de $10 \mu\text{m}$, et des dimensions latérales de $0.5 \mu\text{m}$. Avec la droite avec les tirets gris représentant la prédiction de l'équation de conduction de la chaleur d'un profil de température linéaire entre les deux températures des conditions aux limites.

Il serait très intéressant d'approfondir cette étude de la conductivité afin de dégager une méthodologie pour extraire, avec davantage de confiance, cette grandeur physique de travaux de modélisation tels que celui-ci. La méthodologie viserait notamment l'ajustement des constantes de Grüneisen acoustiques et la diffusivité des parois. Mais des contraintes du calendrier de ce travail de recherche, nous ont empêché de pousser plus avant.

VII.4.a.iii. Transport à basses températures et en régime balistique

A basse température, la nature du transport est différente, et il n'est plus gouverné par les interactions anharmoniques. On passe du régime de diffusion au régime balistique, à cause de l'allongement important du libre parcours moyen des phonons et de la diminution jusqu'à leur extinction des interactions anharmoniques (à températures très basses). Ainsi le choix des coefficients de couplage anharmonique n'a plus vraiment d'impact sur les résultats des simulations et à la limite nous pouvons conserver les valeurs utilisées à température ambiante.

En outre, à basse température, le concept théorique de conductivité thermique devient encore plus délicat. Un calcul de la conductivité thermique par inversion de la loi de Fourier ne peut plus être utilisé, parce que la loi macroscopique de Fourier n'est plus valable. On est la majorité du temps confronté à des situations de non-équilibre, et la moindre déviation à de telles températures induit un effet spectaculaire, à cause de la petitesse des nombres d'occupation moyens des phonons.

Nous ne présentons pas de calcul de conductivité thermique à basses températures. Nous pouvons, néanmoins, observer le profil d'énergies qui s'établit dans la structure.

Mazumder & Majumdar,⁶⁰ Lacroix *et al.*,⁶⁴ et Mittal & Mazumder⁷³ ont présenté des profils de températures en régime balistique. De telles approches semblent audacieuses, car la température n'a plus grand sens dans les conditions dont il est question dans cette sous-section. Mittal,⁴⁸ souligne le fait que la température n'a plus son sens conventionnel quand l'équilibre cesse d'exister, et qu'elle constitue, tout au plus, une représentation de l'énergie du système (à laquelle elle serait proportionnelle).

Les auteurs pré-cités ci-dessus obtiennent un profil linéaire de température quasi-constante dans les structures simulées à température cryogénique (en régime balistique). Comme le libre parcours moyen des phonons devient largement supérieur aux dimensions de la structure, les phonons voyagent de la face chaude à la face froide sans interagir. Ces auteurs comparent ainsi le régime balistique des phonons à celui observé pour les photons échangés entre deux plaques « noires » de températures différentes. Le transport de chaleur dans ces conditions, serait gouverné par la loi de Stefan-Boltzmann.⁶⁰ Dans ce cas, en régime permanent, ils ont théoriquement dérivé l'équation suivante pour déterminer la température constante qui doit s'établir dans le domaine de simulation^{60, 64}

$$T_{\text{balistique}} = \left(\frac{T_h^4 + T_c^4}{2} \right)^{1/4}. \quad (\text{VII.2.1})$$

Bien que la température ne soit plus une grandeur locale pertinente et que les pseudo-températures effectives extraites des simulations MC (voir sec. IV.6.c) supposent que les populations de phonons suivent des distributions de Bose-Einstein, Mazumder & Majumdar,⁶⁰ Lacroix *et al.*,⁶⁴ et Mittal & Mazumder,⁷³ arrivent à retrouver des profils linéaires de températures dans leurs domaines de simulation qui sont à T_{bal} prédit par l'équation dérivée de la loi de Stefan-Boltzmann.

Ces auteurs livrent également des conductivités thermiques en inversant la loi de Fourier. Cela même à des températures allant de quelques Kelvin jusqu'à quelques dizaines de Kelvin, où le transport majoritairement balistique. Il est remarquable de retrouver les valeurs des conductivités thermiques expérimentales.

Au-delà du problème lié à la température, dans la littérature on s'accorde à considérer qu'en régime balistique on doit retrouver un profil d'énergie quasi constant dans le domaine de simulation. Ceci est aussi valable pour les pseudo-températures si on les considère comme uniquement des variables de proportionnalité par rapport à l'énergie. Nous retrouvons ce comportement dans le Silicium autour de 10 K comme nous pouvons le voir en Figure 33, avec des parois complètement spéculaire (nous supposons que nous étudions des matériaux massifs), et un profil d'énergies normalisées quasi-constant. Le flux de phonons ne rencontrant pas « d'obstacles » (interactions avec les autres phonons, avec les impuretés, ou avec les parois) se propage d'une manière homogène, donnant ainsi ce profil d'énergies quasi-constant. La faible variation de l'énergie en fonction de la position qui

subsiste dans le domaine de simulation peut s'expliquer par la non-linéarité du transport balistique et la discontinuité aux conditions aux limites.

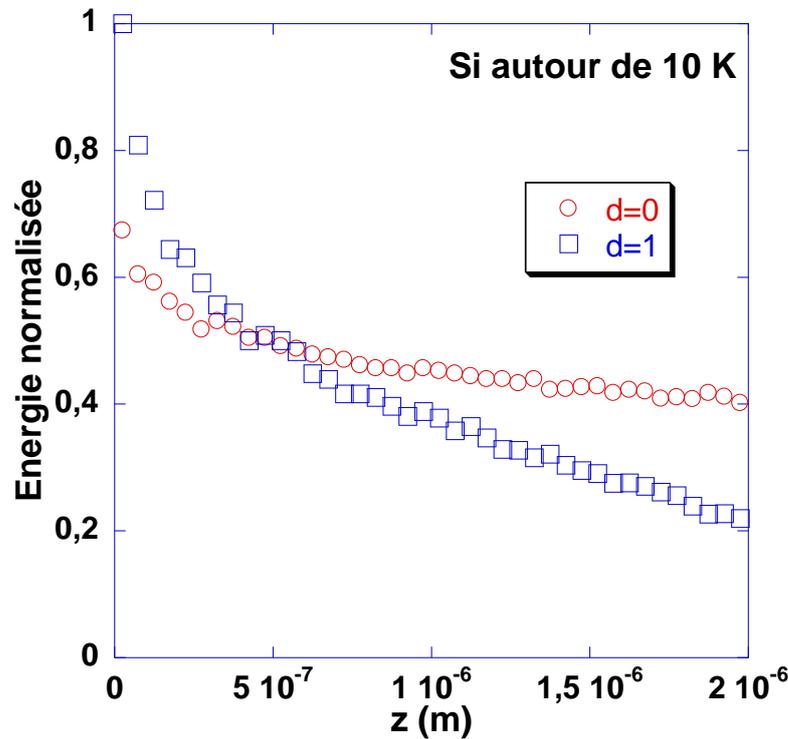


Figure 33. Profils d'énergie normalisée dans le Silicium autour de 10 K, avec parois latérales complètement spéculaires, *i.e.* $d=0$ (cercles rouges), et des parois latérales complètement diffusives, *i.e.* $d=1$ (carrés bleus). Les températures aux limites sont de 15 K à $z=0$ m, et de 5 K à $z=2 \times 10^{-6}$ m. Les dimensions latérales sont de $0.5 \mu\text{m} \times 0.5 \mu\text{m}$.

Mazumder & Majumdar,⁶⁰ ont introduits les interactions avec les parois dans le cadre de leurs études de films minces, en prenant l'hypothèse de relations de dispersions identiques à celles du matériau massif et de l'absence d'effets de quantification. Ayant intégré les interactions de surface dans notre code MC, nous avons également souhaité tester l'effet de ces interactions sur le profil d'énergies en régime balistique comme on peut le voir en Figure 33. Nous trouvons comme prédit dans la littérature un profil qui n'est plus du tout constant, car dans cette configuration, le flux de phonons n'est plus homogène sur toute la structure à cause des interactions avec les parois. Il en découle une « randomisation » de la direction de propagation des phonons qui percutent ces surfaces.

Le régime balistique n'est pas réservé aux basses températures où le libre parcours moyen des phonons devient très grand ; il peut exister aussi à températures ambiantes si la taille de l'échantillon devient petite ou comparable au libre parcours moyen des phonons. En

Figure 34 nous pouvons voir les profils d'énergie normalisée dans des barreaux de silicium de différentes longueurs.

Pour un barreau de $1\ \mu\text{m}$ de long nous observons le comportement normal dont nous avons déjà parlé dans la sous-section précédente. Pour un barreau deux fois plus petit, le comportement reste quasi-identique. Cependant, dès $200\ \text{nm}$ nous pouvons constater que le profil d'énergies n'est même plus linéaire par partie, comme c'était le cas, avec une forte décroissance initiale quasi-linéaire suivie par une décroissance quasi-linéaire d'une pente beaucoup plus faible. En effet, des changements abrupts d'énergie, entre les cellules du domaine de simulation, apparaissent. On commence à sentir les effets de certains des phonons qui deviennent balistiques. Néanmoins, le profil général reste proche d'un profil linéaire par partie. En revanche, pour un barreau de $50\ \text{nm}$ on observe un changement radical du comportement du profil d'énergies qui devient quasi-constant (mais bruité) dans les cellules. Ce comportement est voisin de celui observé à basse température en régime balistique. Le libre parcours moyen des phonons dans le silicium à $300\ \text{K}$ est au voisinage de $35\ \text{nm}$.¹³³

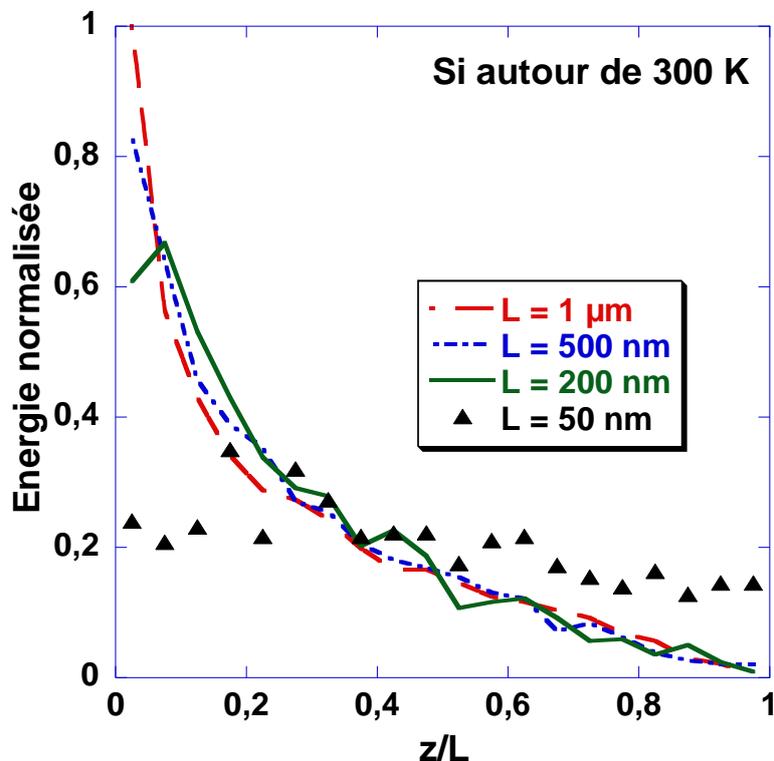


Figure 34. Profils d'énergie normalisée dans des barreaux de Silicium de longueur de $1\ \mu\text{m}$ (tirets alternés de grandes tailles en rouge), de $500\ \text{nm}$ (tirets alternés de petites tailles en bleu), de $200\ \text{nm}$ (trait continu en vert), et de $50\ \text{nm}$ (triangles remplis en noir) autour de $300\ \text{K}$. Les températures aux limites sont de $305\ \text{K}$ à $z/L=0$, et de $295\ \text{K}$ à $z/L=1$. Les dimensions latérales sont de $0.5\ \mu\text{m}\times 0.5\ \mu\text{m}$.

VIII Conclusion



e contexte de recherche actuel et l'intérêt majeur que constitue l'étude de la dynamique et du transport des phonons, ainsi que l'étude de la dynamique simultanée et couplée des systèmes de phonons et de porteurs de charge ont été présentés au début de ce manuscrit. Ensuite nous avons montré que l'équation de transport de Boltzmann (ETB) constitue une approche semi-classique très adaptée pour effectuer ces études.

Pour résoudre l'ETB des phonons, la méthode stochastique Monte Carlo (MC) a été retenue. Cette dernière est reconnue pour être la plus adaptée pour faire des études de dynamique de phonons et de transfert de chaleur pour des configurations hors-équilibre et multi-échelles aussi longtemps que le transport peut être considéré comme semi-classique. L'état de l'art de ces approches MC pour la résolution de l'ETB des phonons a été présenté.

Les approches MC phonons présentées dans la littérature se limitent à un modèle des interactions anharmoniques très approximatif et physiquement limité : l'utilisation de l'approximation de temps de relaxation (ATR). De plus, des relations de dispersion des phonons linéaires sont souvent considérées. Enfin, les lois de conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie ne sont pas rigoureusement implantées.

Pour remédier à ces problèmes, nous avons développé une théorie généralisée de Ridley pour les processus anharmoniques à trois-phonons. Ainsi nous avons pu effectuer le calcul de tous les taux d'interactions individuels à trois-phonons, Normaux et *Umklapp*. Ceux-là sont mis en œuvre directement dans le code MC. Ainsi nous pouvons faire interagir les super-particules de simulation directement via la règle d'or de Fermi. Des relations de dispersion non-linéaires des phonons sont ajustées aux diagrammes de dispersion expérimentaux, et utilisées dans nos calculs.

Nous avons présenté l'étude de la dynamique des phonons dans l'espace réciproque, grâce à des calculs de taux d'interaction individuels tirés de la théorie généralisée de Ridley et à des simulations MC.

Nous avons présenté une méthode pour ajuster les coefficients de couplage anharmonique, utilisés par la théorie généralisée de Ridley et représenté par les constantes de Grüneisen, pour effectuer les simulations MC. En donnant en plus une méthode pour étudier la dépendance des temps de vie de phonons en fonction de la température à travers l'approximation du *single mode relaxation time*.

Nos simulations MC de la dynamique des phonons longitudinaux optiques (LO) de centre de zone nous ont montré pleinement les limites du cadre de l'ATR utilisée usuellement dans les codes MC phonons et porteurs de charge.

L'étude des mécanismes de relaxation anharmoniques des phonons LO de centre de zone de Brillouin, nous montre que le canal de Vallée-Bogani est négligeable dans les matériaux III-V étudiés, contrairement à ce que certains auteurs rapportaient parfois.

D'autre part, une comparaison des différents canaux de relaxation anharmoniques entre les matériaux III-V étudiés, nous a mené à penser que les temps de vie des phonons LO de centre de zone rapportés dans la littérature pour l'InAs et le GaSb sont largement sous-estimés.

Un couplage de deux codes MC indépendant, un traitant les porteurs de charge, et l'autre les phonons, nous permet d'étudier la dynamique couplée de ces deux systèmes de (pseudo-) particules physiques. Nous en avons conclu que l'ATR n'est valide pour traiter la dynamique des phonons LO dans un MC porteurs que lorsque la perturbation engendrée par la relaxation de porteurs de charges chauds sur la population de phonons LO est modérée. Dans les autres cas, l'ATR surestime l'accumulation de phonons LO et surestime donc le ralentissement de la relaxation des porteurs photo-générés dû à la ré-absorption des phonons LO émis (« phonon bottleneck »).

L'étude d'expériences pompe-sonde dans différents régimes de densités de paires électron-trou photo-générées a permis de dégager des tendances vis-à-vis des effets d'accumulation de phonons LO connus sous le nom de « phonons chauds » et vis-à-vis des effets complexes d'écrantage/anti-écrantage de l'interaction porteurs de charges-phonons optiques polaires menant à l'hybridation de mode de phonons LO et de plasmons.

Nous avons enfin développé un code MC phonons pour l'étude du transport des phonons et ainsi de la chaleur, résolvant l'ETB dans l'espace réelle et l'espace réciproque simultanément. Trois versions de solveurs MC sont présentées. Deux d'entre elles n'ont pas abouti à cause de problème de variance, et de convergence. Une des trois versions a permis d'obtenir des résultats préliminaires portant sur la conductivité thermique et des profils de températures ainsi que les régimes de transport. Les illustrations ont été entreprises dans le Silicium et l'Arséniure de Gallium. Nous trouvons des profils de températures en régime de diffusion qui ne sont pas linéaires comme prédit l'équation analytique de conduction de la chaleur. Nous identifions le régime balistique à basse température, par des profils d'énergies quasi-constant dans les structures.

L'approfondissement de l'étude du transport des phonons dans l'espace réel en perfectionnant le code MC nous paraît indispensable. Une analyse plus poussée des résultats préliminaires obtenus et l'étude approfondie des résultats préliminaires est indispensable. Les contraintes de temps nous ont empêchées de pousser plus avant ces études. La résolution des problèmes rencontrés avec les deux autres versions de solveurs MC de l'ETB dans l'espace réciproque peut produire des solveurs MC très versatiles et utiles, qui peuvent s'appliquer à une multitude de problèmes physiques.

Nos solveurs sont encore évidemment perfectibles avec diverses améliorations possibles. Par exemple, plusieurs possibilités se présentent pour le code MC dédié au transport des phonons dans l'espace réel. Une parmi elle, réside le développement d'une méthodologie plus adaptée pour ajuster les coefficients de couplage anharmonique des modes acoustiques. En l'absence de mesures expérimentales directes grâce auxquelles on pourrait ajuster ces coefficients, on peut utiliser les expressions données dans la littérature pour les temps de vie des phonons acoustiques. Pour le code MC dédié à la dynamique des phonons dans l'espace réciproque, compléter la méthodologie d'ajustement des coefficients de couplage anharmonique des modes optiques pour envisager des études pertinentes à très basses températures peut être d'une grande utilité.

A un plus long terme, si la complexité et l'encombrement numérique qui en découleront sont acceptables, le calcul des taux d'interaction par une méthode *ab initio* pourrait être intégré au code afin d'améliorer la précision et la versatilité des solveurs. Il faut

garder à l'esprit, que quoi qu'il en soit il y aura toujours un paramètre (ou même des paramètres) à ajuster puisqu'il ne s'agit que de simulations numériques...

Les perspectives du travail effectué sont très vastes. Elles couvrent un grand nombre d'application. Le couplage, du solveur MC de l'ETB des phonons dans les espaces réciproque et réel, avec un solveur MC de l'ETB des porteurs de charge dans les espaces réciproque et réel, est l'une des perspectives envisagées par notre équipe de recherche. La simulation de basse dimensionnalité avec une prise en compte des effets de quantifications, était un des axes envisagés pour la présente thèse mais la nécessité de résoudre l'ETB dans l'espace réel pour modéliser le transport de la chaleur a pris le dessus. Mais ces études sont toujours dans le champ des objectifs à atteindre à moyen terme.

Avec des solveurs MC de l'ETB à basse dimensionnalité, ou même sans, on peut envisager la simulation de matériaux théoriques avec une recherche de la configuration de relations de dispersion la plus optimale pour réduire la relaxation des phonons LO de centre de zone, par exemple, ou pour améliorer la conductivité thermique pour mieux véhiculer la chaleur, ou encore, pour réduire cette même conductivité thermique pour améliorer la figure de mérite de dispositifs thermoélectriques. Il serait optimal de pouvoir mener des études simultanément sur les propriétés électroniques et phononiques de tels matériaux envisagés théoriquement ou pour ceux sur lesquels on ne dispose pas encore de connaissance poussée à cause de manque de mesures expérimentales. Pour cela le couplage de solveurs MC de l'ETB des phonons et des porteurs de charge, qui a été amorcé dans ce travail de thèse, est très prometteur.

Bibliographie

1. A. I. Hochbaum, R. Chen, R. D. Delgado, W. Liang, E. C. Garnett, M. Najarian, A. Majumdar and P. Yang, *Nature* **451** (7175), 163-167 (2008).
2. W. Cochran, *Critical Reviews in Solid State and Material Sciences* **2** (1), 1-44 (1971).
3. A. Einstein, *Annalen der Physik* **22**, 180-190 (1907).
4. P. Debye, *The Collected Papers of Peter JW Debye*, 650-696 (1912).
5. R. Peierls, *Annalen der Physik* **3**, 1055-1101 (1929).
6. R. Peierls, *Ann. Phys., Lpz* **4**, 121 (1930).
7. M. Blackman, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A-Mathematical and Physical Sciences* **148** (864), 365-383 (1935).
8. M. Blackman, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* **148** (864), 384-406 (1935).
9. M. Blackman, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* **159** (898), 416-431 (1937).
10. M. Blackman, in *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society* (Cambridge Univ. Press, 1937), Vol. 33, pp. 94-103.
11. E. W. Kellermann, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* **238** (798), 513-548 (1940).
12. E. Kellermann, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* **178** (972), 17-24 (1941).
13. B. Brockhouse and D. Hurst, *Physical Review* **88** (3), 542 (1952).
14. B. Brockhouse and A. Stewart, *Physical Review* **100** (2), 756 (1955).
15. B. Brockhouse, *Physical Review Letters* **2** (6), 256-258 (1959).
16. 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).
17. M. A. Strocio and M. Dutta, *Phonons in Nanostructures*. (Cambridge University Press, 2001).
18. G. Irmer, M. Wenzel and J. Monecke, *physica status solidi (b)* **195** (1), 85-95 (1996).
19. F. Vallée, *Phys. Rev. B* **49**, 2460-2468 (1994).
20. F. Vallée and F. Bogani, *Phys. Rev. B* **43**, 12049-12052 (1991).
21. P. G. Klemens, *Solid State Physics*. (Academic, New York, 1958).
22. P. Klemens, *Physical Review* **148** (2), 845 (1966).
23. B. Ridley and R. Gupta, *Physical Review B* **43** (6), 4939 (1991).
24. S. Barman and G. Srivastava, *Physical Review B* **69** (23), 235208 (2004).
25. B. K. Ridley, *Quantum processes in semiconductors*, 4th ed. (Clarendon Press Oxford, 1999).
26. G. P. Srivastava, *The Physics of Phonons*. (A. Hilger, 1990).
27. J. Ziman, *Electrons and Phonons: The Theory of Transport Phenomena in Solids*. (Clarendon Press, Oxford, 1960).
28. V. Preisler, R. Ferreira, S. Hameau, L. A. de Vaulchier, Y. Guldner, M. L. Sadowski and A. Lemaitre, *Phys. Rev. B* **72**, 115309 (2005).
29. W. Pötz and P. Kocevar, *Phys. Rev. B* **28**, 7040-7047 (1983).
30. C. L. Collins and P. Y. Yu, *Phys. Rev. B* **30**, 4501-4515 (1984).
31. E. M. Conwell and M. O. Vassell, *Electron Devices, IEEE Transactions on* **13** (1), 22 - 27 (1966).
32. D. von der Linde, J. Kuhl and H. Klingenberg, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 1505-1508 (1980).
33. J. C. Tsang, J. A. Kash and S. S. Jha, *Physica B+C* **134**, 184 - 188 (1985).
34. J. A. Kash, J. C. Tsang and J. M. Hvam, *Phys. Rev. Lett.* **54**, 2151-2154 (1985).
35. U. Wenschuh, E. Heiner and P. Fulde, *physica status solidi (b)* **173** (1), 221-227 (1992).
36. M. Asche and O. G. Sarbei, *physica status solidi (b)* **141** (2), 487-491 (1987).
37. J. H. Collet, *Phys. Rev. B* **39**, 7659-7665 (1989).
38. C. V. Shank, R. L. Fork, R. Yen, J. Shah, B. I. Greene, A. C. Gossard and C. Weisbuch, *Solid State Communications* **47** (12), 981 - 983 (1983).
39. R. J. Seymour, M. R. Junnarkar and R. R. Alfano, *Solid State Communications* **41** (9), 657 - 660 (1982).
40. W. W. Rühle, K. Leo and E. Bauser, *Phys. Rev. B* **40**, 1756-1761 (1989).
41. H. M. van Driel, *Phys. Rev. B* **19**, 5928-5932 (1979).
42. A. Debernardi, S. Baroni and E. Molinari, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1819-1822 (1995).
43. P. Lugli, P. Bordone, L. Reggiani, M. Rieger, P. Kocevar and S. M. Goodnick, *Phys. Rev. B* **39**, 7852-7865 (1989).
44. S. I. Association and others, (<http://public.itrs.net/>, 2011).

45. F. J. Pollack, presented at the Proceedings of the 32nd annual ACM/IEEE international symposium on Microarchitecture, 1999 (unpublished).
46. A. Lidow and G. Sheridan, in *Applied Power Electronics Conference and Exposition, 2003. APEC'03. Eighteenth Annual IEEE* (IEEE, 2003), Vol. 1, pp. 3-9.
47. K. Banerjee, M. Pedram and A. H. Ajami, in *Proceedings of the 2001 international symposium on Physical design* (ACM, 2001), pp. 230-237.
48. A. Mittal, The Ohio State University, 2011.
49. J.-Q. Wang, Z.-Q. Gu, M.-F. Li and W.-Y. Lai, *Phys. Rev. B* **46**, 12358-12364 (1992).
50. S. G. Volz and G. Chen, *Phys. Rev. B* **61**, 2651-2656 (2000).
51. T. Wang, The Ohio State University, 2007.
52. A. S. Henry and G. Chen, *Journal of Computational and Theoretical Nanoscience* **5** (2), 141-152 (2008).
53. J. A. Pascual-Gutierrez, J. Y. Murthy and R. Viskanta, *Journal of Applied Physics* **106** (6), 063532-063532 (2009).
54. F. H. Stillinger and T. A. Weber, *Physical Review B* **31** (8), 5262 (1985).
55. J. Tersoff, *Physical Review B* **37** (12), 6991 (1988).
56. J. F. Justo, M. Z. Bazant, E. Kaxiras, V. Bulatov and S. Yip, *Physical Review B* **58** (5), 2539 (1998).
57. M. P. Allen and D. J. Tildesley, *Computer simulation of liquids*. (Oxford university press, 1989).
58. P. K. Schelling, S. R. Phillpot and P. Keblinski, *Physical Review B* **65** (14), 144306 (2002).
59. D. G. Cahill, W. K. Ford, K. E. Goodson, G. D. Mahan, A. Majumdar, H. J. Maris, R. Merlin and S. R. Phillpot, *Journal of Applied Physics* **93**, 793 (2003).
60. S. Mazumder and A. Majumdar, *Journal of Heat Transfer* **123** (4), 749-759 (2001).
61. C. Tien, A. Majumdar and F. Gerner, *Microscale Energy Transport*. (Taylor and Francis, Washington, DC, 1998).
62. J. A. Pascual-Gutierrez, PURDUE UNIVERSITY, 2010.
63. Y. Chen, D. Li, J. R. Lukes and A. Majumdar, *Journal of Heat Transfer* **127** (10), 1129-1137 (2005).
64. D. Lacroix, K. Joulain and D. Lemonnier, *Phys. Rev. B* **72**, 064305 (2005).
65. C. Jacoboni and P. Lugli, *The Monte Carlo Method for Semiconductor Device Simulation*. (Springer-Verlag, 1989).
66. G. Bird, *Molecular gas dynamics and the direct simulation of gas flows*. (Oxford, United Kingdom: Clarendon Press(Oxford Engineering Science Series), 1995).
67. T. Klitsner, J. VanCleve, H. E. Fischer and R. Pohl, *Physical Review B* **38** (11), 7576 (1988).
68. R. Peterson, *Journal of Heat Transfer* **116** (4), 815-822 (1994).
69. M. G. Holland, *Phys. Rev.* **132**, 2461-2471 (1963).
70. M. S. Jeng, R. Yang, D. Song and G. Chen, *Journal of Heat Transfer* **130**, 042410 (2008).
71. Q. Hao, G. Chen and M.-S. Jeng, *Journal of Applied Physics* **106** (11), 114321 (2009).
72. J.-P. M. Péraud and N. G. Hadjiconstantinou, *Phys. Rev. B* **84**, 205331 (2011).
73. A. Mittal and S. Mazumder, *Journal of Heat Transfer* **132**, 052402 (2010).
74. R. Biswas and D. R. Hamann, *Phys. Rev. B* **36**, 6434-6445 (1987).
75. J. R. Drabble and H. J. Goldsmid, *Thermal conduction in semiconductors*. (Pergamon Press New York, 1961).
76. S. Barman and G. Srivastava, *Applied Physics Letters* **81**, 3395 (2002).
77. D. Strauch and B. Dorner, *Journal of Physics: Condensed Matter* **2** (6), 1457 (1990).
78. N. Orlova, *physica status solidi (b)* **119** (2), 541-546 (1983).
79. M. K. Farr, J. G. Traylor and S. K. Sinha, *Phys. Rev. B* **11**, 1587-1594 (1975).
80. M. Hass and B. W. Henvis, *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **23** (8), 1099 - 1104 (1962).
81. P. H. Borchers, G. F. Alfrey, A. D. B. Woods and D. H. Saunderson, *Journal of Physics C: Solid State Physics* **8** (13), 2022 (1975).
82. G. Dolling, (IAEA, Chalk River, Vienna, 1963), Vol. 2, pp. 37.
83. W. Weber, *Phys. Rev. B* **15**, 4789-4803 (1977).
84. R. Peierls, *Quantum Theory of Solids*. (Clarendon Press, Oxford, 1955).
85. N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid state physics*. (Saunders College, 1976).
86. D. K. Ferry, *Phys. Rev. B* **9**, 4277-4280 (1974).
87. R. Cusco, E. Alarcon-Llado, J. Ibanez, L. Artus, J. Jiménez, B. Wang and M. J. Callahan, *Phys. Rev. B* **75**, 165202 (2007).
88. B. K. Ridley, *Journal of Physics: Condensed Matter* **8** (37), L511 (1996).
89. J. A. Kash, J. M. Hvam, J. C. Tsang and T. F. Kuech, *Phys. Rev. B* **38**, 5776-5779 (1988).
90. IOFFE, www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/index.html.
91. S. Adachi, *Physical Properties of III-V Semiconductor Compounds: InP, InAs, GaAs, GaP, InGaAs, and InGaAsP*. (John Wiley & Sons, 1992).
92. C. Jacoboni and L. Reggiani, *Rev. Mod. Phys.* **55**, 645-705 (1983).

93. W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling and B. P. Flannery, *Numerical recipes in Fortran 77: the art of scientific computing*, 2nd ed. (Press Syndicate of the University of Cambridge, 1992).
94. N. G. Hadjiconstantinou, G. A. Radtke and L. L. Baker, Arxiv preprint arXiv:0905.2218 (2009).
95. G. Chen, T. Zeng, T. Borca-Tasciuc and D. Song, *Materials Science and Engineering: A* **292** (2), 155-161 (2000).
96. G. Chen, *International Journal of Thermal Sciences* **39** (4), 471 - 480 (2000).
97. G. Conibeer, D. König, M. Green and J. Guillemoles, *Thin Solid Films* **516** (20), 6948-6953 (2008).
98. S. Usher and G. P. Srivastava, *Phys. Rev. B* **50**, 14179-14186 (1994).
99. E. Tea and F. Aniel, *Journal of Applied Physics* **109** (3), 033716 (2011).
100. E. Tea, Université Paris-Sud, 2011.
101. W. Fuhs and J. Stuke, *physica status solidi (b)* **27** (1), 171-184 (1968).
102. A. Kumar, R. Misra, S. Goel and S. Tripathi, *Revue de Physique Appliquée* **25** (3), 265-268 (1990).
103. H. Hamzeh, E. Tea and F. Aniel, in *Materials Research Society Symposium Proceedings*, edited by S. Shinde, G. P. Srivastava, J. Khurgin and Y. J. Ding (Materials Research Society, Boston, MA 2009), Vol. 1221, pp. CC07-09.
104. E. D. Grann, K. T. Tsen and D. K. Ferry, *Phys. Rev. B* **53**, 9847-9851 (1996).
105. P. Maly, A. Maciel, J. Ryan, N. Mason and P. Walker, *Semiconductor Science and Technology* **9**, 719 (1994).
106. A. Debernardi, *Physical Review B* **57** (20), 12847 (1998).
107. G. P. Srivastava (private communication)
108. G. Dolling and J. L. T. Waugh, *Normal Vibrations in Gallium Arsenide*. (Pergamon, New York, 1965).
109. K. Kunc, M. Balkanski and M. A. Nusimovici, *physica status solidi (b)* **72** (1), 229-248 (1975).
110. P. A. Temple and C. E. Hathaway, *Phys. Rev. B* **7**, 3685-3697 (1973).
111. J. Menéndez and M. Cardona, *Phys. Rev. B* **29**, 2051-2059 (1984).
112. W. A. Harrison, *Phys. Rev.* **104**, 1281-1290 (1956).
113. M. Lundstrom, *Fundamentals of Carrier Transport*. (Cambridge University Press, 2009).
114. J. L. Birman, M. Lax and R. Loudon, *Phys. Rev.* **145**, 620-622 (1966).
115. E. Tea, H. Hamzeh and F. Aniel, *Journal of Applied Physics* **110** (11), 113108 (2011).
116. D. A. Garanin, *Phys. Rev. B* **75**, 094409 (2007).
117. B. B. Varga, *Phys. Rev.* **137**, A1896-A1902 (1965).
118. M. E. Kim, A. Das and S. D. Senturia, *Phys. Rev. B* **18**, 6890-6899 (1978).
119. P. Kocevar, *Physica B+C* **134**, 155 - 163 (1985).
120. H. Hamzeh and F. Aniel, *Journal of Applied Physics* **109**, 063511 (2011).
121. N. D. Mermin, *Phys. Rev. B* **1**, 2362-2363 (1970).
122. J. R. Meyer and F. J. Bartoli, *Phys. Rev. B* **28**, 915-926 (1983).
123. R. W. Stimets and B. Lax, *Phys. Rev. B* **1**, 4720-4735 (1970).
124. P. Langot, N. Del Fatti, D. Christofilos, R. Tommasi and F. Vallée, *Phys. Rev. B* **54**, 14487-14493 (1996).
125. W. Z. Lin, L. G. Fujimoto, E. P. Ippen and R. A. Logan, *Applied Physics Letters* **50** (3), 124-126 (1987).
126. D. W. Bailey, C. J. Stanton and K. Hess, *Phys. Rev. B* **42**, 3423-3434 (1990).
127. S. Zollner, S. Gopalan and M. Cardona, *Applied Physics Letters* **54** (7), 614-616 (1989).
128. S. Zollner, S. Gopalan and M. Cardona, *Journal of Applied Physics* **68** (4), 1682-1693 (1990).
129. L. Nikitina, S. Obukhov and V. Tyuterev, *Russian Physics Journal* **52**, 742-748 (2009).
130. N. G. Hadjiconstantinou, G. A. Radtke and L. L. Baker, *Journal of Heat Transfer* **132** (11) (2010).
131. B. T. Wong, M. Francoeur and M. P. Mengüç, *International Journal of Heat and Mass Transfer* **54** (9-10), 1825 - 1838 (2011).
132. C. J. Glassbrenner and G. A. Slack, *Phys. Rev.* **134**, A1058-A1069 (1964).
133. L. Weber and E. Gmelin, *Applied Physics A: Materials Science & Processing* **53**, 136-140 (1991).
134. J. S. Blakemore, *Journal of Applied Physics* **53** (10), R123-R181 (1982).