

Résumé

Les cristaux mixtes semi-conducteurs $A_{1-x}B_xC$ de structure cubique (zinc-blende) ou hexagonale (wurtzite) sont intéressants pour l'optoélectronique, en cela qu'ils offrent la possibilité d'ajuster finement en fonction de la composition x la bande interdite et les paramètres du réseau. Plus fondamentalement, ces alliages sont les systèmes désordonnés les plus simples que l'on puisse imaginer. À ce titre, ce sont des systèmes idéaux pour étudier les effets du désordre sur les propriétés physiques, notamment la dynamique de réseau. C'est dans ce contexte que le modèle de percolation a été développé, pour expliquer comment le désordre influence la dynamique du réseau. Ce modèle suggère que la vibration d'une liaison chimique donnée, $A-C$ ou $B-C$, est sensible à son environnement local et produit deux modes optiques différents, selon qu'elle se trouve en environnement 'identique' ou 'étranger'. Ce comportement serait intrinsèque aux alliages à substitution aléatoire. Le modèle de percolation a prouvé son efficacité pour expliquer la dynamique du réseau sur l'ensemble des alliages semi-conducteurs cubiques étudiés jusqu'à présent.

Dans ce travail, le modèle de percolation est évalué de manière critique par rapport au comportement vibrationnel de trois systèmes de référence : $GaAs_{1-x}P_x$ et $Cd_{1-x}Be_xTe$ de structure zinc-blende ainsi que $Zn_{1-x}Mg_xS$ de structure wurtzite. Chacun de ces systèmes pose un défi majeur pour le modèle. La première version du modèle, qui limite la sensibilité des vibrations à l'environnement premiers voisins, a montré ses limites pour $GaAs_{1-x}P_x$, où les spectres de la partie imaginaire de la fonction diélectrique relative $\Im\{\epsilon_r(\omega, x)\}$ (équivalents aux modes de vibrations transversales TO) publiés récemment par Zollner *et al.* [Appl. Phys. Lett. 123, 172102 (2023)] indiquent que cette approche ne décrit pas fidèlement les intensités des pics de vibration. Il est nécessaire d'étendre la sensibilité aux seconds voisins pour ce système. Le cristal mixte $Cd_{1-x}Be_xTe$ présente un contraste très marqué entre les propriétés physiques de ses constituants, $CdTe$ et $BeTe$. Nous examinons ici si le modèle de percolation s'applique encore en situation de contraste très fort, ou pas. L'étude mécanique/vibratoire à l'échelle microscopique de la liaison chimique de $Cd_{1-x}Be_xTe$ s'accompagne d'une étude mécanique à l'échelle macroscopique, portant sur le module de compressibilité. Enfin, le cristal mixte $Zn_{1-x}Mg_xS$ de structure wurtzite est utilisé pour déterminer comment le modèle de percolation, initialement établi pour expliquer les spectres de vibration des systèmes cubiques, s'applique à des systèmes moins symétriques. Ce test est essentiel pour valider la transférabilité du modèle et son universalité.

Afin d'explorer la dynamique de réseau des cristaux mixtes étudiés, couvrant les phonons et phonon-polaritons, des techniques expérimentales avancées ainsi que des approches théoriques ont été déployées. La diffusion Raman a été réalisée en conditions ambiantes ainsi

qu'en conditions extrêmes de température et de pression. La diffusion inélastique de neutrons a été effectuée avec de grands monocristaux sur la ligne de faisceau IN8 de l'Institut Laue-Langevin (ILL) à Grenoble. La diffraction des rayons X sous pression a été mise en œuvre sur la ligne de faisceau PSICHÉ du synchrotron SOLEIL à Paris. Enfin, des calculs *ab initio* ont été réalisés à l'aide du code DFT SIESTA sur de larges supercellules construites à substitution aléatoire selon l'approche SQS.

Les trois systèmes étudiés, malgré leurs caractéristiques spécifiques (sensibilité des vibrations à l'environnement local, fort contraste entre propriétés physiques des liaisons et symétrie hexagonale), ont tous révélé un comportement de type percolation. Ce résultat renforce le statut du modèle en tant que descripteur générique de la dynamique de réseau des cristaux mixtes désordonnés.