



REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE



UNIVERSITE ABOU-BEKR BELKAID - TLEMCCEN

MEMOIRE

Présenté à :

FACULTE DES SCIENCES – DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

Pour l'obtention du diplôme de :

MASTER EN PHYSIQUE

Spécialité : Physique théorique

Par :

Mr Abderrahim miloud

Sur le thème

Contribution à l'étude du transport quantique dans quelques nanostructures 2D

Soutenue publiquement le 28/06/2018 devant le jury composé de :

Mme BEDRANE Zeyneb	MCA à l'Université de Tlemcen	Présidente
Mr OUAHRANI Tarik	Professeur à l'école supérieure en sciences appliquées de Tlemcen	Encadreur
Mr BOUFATAH Réda Mohammed	MAA à l'Université de Tlemcen	Examineur

*Laboratoire de Physique Théorique (LPT)
13000 Tlemcen - Algérie*

Remerciements

En achevant ce modeste travail je remercie Dieu, qui m'a donné le courage et la force de mener ce travail pour l'obtention du diplôme de master 2 en physique théorique

J'aimerais exprimer mes vifs remerciements à mon encadreur **OUAHRANI Tarik** Professeur à l'école supérieure en sciences appliquées pour son orientation et ces conseils, qu'il a su me prodiguer pendant l'évolution de mon travail. Je le remercie aussi pour sa disponibilité permanente, sa patience, sa générosité.

Je remercie aussi Mme BEDRANE Zeyneb Maître de conférences classe B à l'université de Tlemcen, pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury de cette mémoire.

Mes remerciements les plus chaleureux s'adressent à Mr BOUFATAH Réda Mohammed Maître assistant classe A à l'université de Tlemcen, d'avoir accepté d'examiner ce travail et de faire partie de ce jury.

Je suis reconnaissant à l'ensemble des enseignants de la FACULTE DES SCIENCES– DEPARTEMENT DE PHYSIQUE. Qui ont contribué à ma formation avec beaucoup de dévouement et de compétence.

Les remerciements seraient incomplets sans adressés mes plus sincères à tous ceux ou celles qui de près ou de loin apporter leurs aides et encouragements, qui 'ils trouvent ici l'expression de ma profonde gratitude

DEDICACE

Avant que j'écrive quoi que ce soit, il faut savoir que mes dédicaces vont être un peu longues, il y a tellement de personne que j'apprécier, donc je vais essayer d'être le plus bref que possible.

Pour commencer, je prends le temps de remercier Dieu le tout puissant de m'avoir donné la force et courage pour terminer mes études.

Je dédie ce modeste travail comme preuve de respect, et de reconnaissance à mes chers parents, aucune dédicace ne saurait exprimer mon respect, mon amour éternel et ma considération pour les sacrifices que vous avez consenti pour mon instruction et mon bien être. Je vous remercie pour tout le soutien et l'amour que vous me portez depuis mon enfance et j'espère que votre bénédiction m'accompagne toujours. Que ce modeste travail soit aussi l'exaucement de vos vœux tant formulés, le fruit de vos innombrables sacrifices. Puisse Dieu, le Très haut, vous accorde santé, bonheur et longue vie.

Ce travail est dédié à mon frère « MOHAMMED », qui m'a poussé et motivé dans mes études.

Je dédie ce travail à mes amis, je te remercie pour ton encouragement, je te souhaite du succès à tes étude, de bonheur, de la santé, toute affection pour ton admirable famille.

A. Miloud

SOMMAIRE

INTRODUCTION.....	1
CHAPTRE 01 :	
1.1 Introduction a domaine 2D.....	5
1.2 Synthèse des matériaux 2D.....	9
1.3. Applications.....	11
1.3.1 Les promesses de l'optoélectronique.....	13
CHAPTRE 02 :	
2.1. Théorie de la densité fonctionnelle (DFT)	14
2.1.1. Équations de Kohn et Sham.....	15
2.1.2. Approximation de la densité locale (LDA).....	15
2.1.3. Approximation du gradient généralisé (GGA)	16
2.2. Transport quantique : approche par fonctions de Green hors équilibre.....	17
2.2.1 Introduction à la théorie	17
2.2.2 Description des nano devices à l'intérieur de NEGF.....	18
2.2.3 self-énergies ou comment résoudre le couplage avec des électrodes	18
2.2.4 Comment faire face aux systèmes de limites ouvertes	18
2.2.5 Expressions utilisées dans le code TranSIESTA.....	19
2.2.6 Calcul de la matrice de densité.....	19
2.2.6.1 A l'équilibre	20
2.2.6.2 Au non-équilibre	20
2.2.7 Calcul du courant dans un nano dispositif	21
2.2.7.1 Procédure de calcul	22
2.3. Siesta	23
2.3.1 Principales caractéristiques de siesta	25
2.3.2TranSIESTA	26
CHAPTRE 03 : Résultats et discussions	
3.1. Préambule de nos paramètres de calculs	28
3.2. Propriétés structurelles et électroniques des composés étudiés.....	29

3.2.1. <i>Structures planes non ondulées (no buckled)</i>	30
3.2.1.1 cas de graphène.....	32
3.2.2. <i>Structures planes ondulées (no buckled)</i>	33
3.2.2.1 cas de silicène	32
3.2.2.2 Cas du Sténane ..	35
3.2.2.1 cas <i>du Phosphorène</i>	37
3.3. Étude de la structure bidimensionnelle du carbure de silicium sous contrainte.....	38
3.3.1. Structure sous contraint.....	38
3.3.2 Propriétés électronique sous contraintes.....	42
3.3.3 Transport quantique sous contraintes	43
Conclusion	74

Introduction

L'exfoliation du graphite en feuillets bidimensionnels (2D) de graphène en 2004 [1], [2] a mis au jour un matériau remarquable de par ses propriétés mécaniques, chimiques et électroniques. Ces dernières, incluant notamment une excellente mobilité (plus de $105 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ à température ambiante) et une structure de bande linéaire portant des fermions de Dirac, offrent un renouvellement de la physique fondamentale de la matière condensée [3], [4], offrant de nombreuses perspectives d'applications [5]–[7]. Par exemple, la dispersion électronique en forme de cône de Dirac du graphène a permis de mettre en évidence un effet Hall quantique exotique à température ambiante [8], [9], ou bien encore une absorption optique constante sur une très large gamme d'énergie [10]. Cependant, l'absence de bande interdite dans la structure électronique du graphène limite ses applications en optoélectronique et en électronique, comme par exemple pour les transistors logiques nécessitant un rapport de courant électrique « on/off » élevé et un gain de tension supérieur à 1 [7], [11], [12]. Néanmoins, le graphène n'est que le représentant d'une famille plus large de matériaux lamellaires, pouvant être isolés en feuillets 2D [13]–[15]. Depuis l'impact généré par ces découvertes, la communauté scientifique a réussi à isoler et synthétiser divers matériaux à l'échelle d'un feuillet d'épaisseur atomique. L'étude de leurs propriétés est aujourd'hui un sujet de recherche porteur avec de nombreux résultats scientifiques dans plusieurs domaines de recherches. Parmi ces matériaux figurent les dichalcogénures à métaux de transition comme le disulfure de molybdène (MoS_2) ou le séléniure de tungstène (WSe_2), qui sont des semi-conducteurs avec une bande interdite dans le visible [16]–[18]. Par ailleurs, la bande interdite de ces matériaux présente la particularité de dépendre du nombre de couches (aussi bien sa valeur, que sa nature directe ou indirecte) [19], [20]. La variété des matériaux étudiés comprenant des isolants, des semi-conducteurs et des métaux, il est possible d'envisager de nouvelles opportunités expérimentales [21], [22]. Pour autant cette technologie est encore jeune et plusieurs aspects restent à explorer.

Un des aspects de ces matériaux 2D qui suscite une attention particulière est leur sensibilité aux perturbations extérieures via des interactions hors plan. D'un point de vue expérimental, le confinement d'électrons dans une épaisseur de quelques plans atomiques permet d'avoir un plus grand contrôle sur leur comportement mais les rends également sensibles à certains facteurs extérieurs. Ceci représente à la fois l'un des avantages majeurs de l'utilisation des matériaux

2D mais également son inconvénient principal lorsqu'il s'agit de les intégrer dans des dispositifs. Un type de matériaux qui semblent promoteur, les monocouches en nid d'abeilles, spécialement à base de carbure de silicium. Du fait que ce matériau possède une nature semi-conductrice, il est tout à fait possible de modéliser sa bande interdite ce qui nous permet de construire à partir de lui des dispositifs contrôlables. Plusieurs études ont montré que le gap est sensible à l'application de contraintes extérieures, de température, de champ électrique ou même au désordre structurel ou dopage électronique [23, 24, 25]. Par exemple, des efforts ont été faits dans ce domaine en appliquant des pressions le long des directions Zigzag et armchair dans le travail [25]. Le but de cette application est d'augmenter la mobilité des porteurs et de la conductivité électrique [26]. Dans ce contexte nous présentons dans ce mémoire une étude basée sur des calculs *ab initio* dans le contexte de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT). Nous simulons des contraintes uniaxiales sur un composé SiC-2D de type monocouches en nid d'abeilles. Nous avons choisi de calculer ces propriétés électroniques et de transports par le biais de l'approche par fonctions de Green hors équilibre.

Le premier chapitre de cette thèse est consacré à une présentation bibliographique sur les matériaux 2D en général et en particulier et leurs applications les plus répandues. Le second chapitre présente les méthodes *ab initio* ayant permis l'étude de la structure électronique du matériau étudié. La théorie de la fonctionnelle de densité et les différentes approximations utilisées dans cette thèse seront décrites, une présentation assez brève de l'approche par fonctions de Green hors équilibre est aussi donnée. Le troisième chapitre expose les résultats de l'étude *ab initio* des propriétés structurales, électroniques et de transport avec et sans application de contraintes uni-axiales. Enfin, une conclusion générale reviendra sur les principaux résultats obtenus dans ce travail

Références

- [1] K. S. Novoselov *et al.* **306** (2004) 669.
- [2] K. S. Novoselov *et al.*, *Nature*, **438** (2005) 200.
- [3] A. Iagallo *et al.*, *Semiconductor Science and Technology*, **30** (2014) 6.
- [4] J. Jobst *et al.* *Phys. Rev. B*, **81** (2010) 195434
- [5] A. K. Geim and K. S. Novoselov, *Nat. Mater.*, **6** (2007) 183
- [6] M. Jang and H. Kim, "Graphene field effect transistor without an energy gap," (2013)
- [7] A. Tejada and P. G. Soukiassian, *J. Phys. D Appl. Phys.*, **47** (2014) 90201.

- [8] B. Hunt *et al.*, *science* , **340** (2013) 1427
- [9] V. P. Gusynin and S. G. Sharapov, *Phys. Rev. Lett.*, **95** (2005) 146801.
- [10] K. F. Mak, L. Ju, F. Wang, and T. F. Heinz, *Solid State Commun.*, **152** (2012) 1341
- [11] S. Das and J. Appenzeller, *IEEE Trans. Nanotechnol.*, **10** (2011) 1098 .
- [12] M. Lemme, *Diffus. defect data. Solid state data. Part B*, (2010) 12.
- [13] G. R. Bhimanapati *et al.*, *ACS Nano*, **9** (2015) 11509
- [14] S. Z. Butler *et al.*, *ACS Nano*, **7** (2013) 2898
- [15] M. Li, C. Chen, Y. Shi, and L. Li, *Material today* ,**19** (2016)322.
- [16] M. Chhowalla, H. S. Shin, G. Eda, L.-J. Li, K. P. Loh, and H. Zhang, *Nat. Chem.*,**5** (2013) 275
- [17] M. Bernardi, M. Palummo, and J. C. Grossman, *Nano Lett.*, **13** (2013) 3670
- [18] M. Bernardi, M. Palummo, and J. C. Grossman, *Nano Lett.*, **10** (2013)
- [19] Y. Zhang *et al* *Nat. Nanotechnol.*, **9** (2014) 111
- [20] R. Coehoorn, C. Haas, and R. a. De Groot, *Phys. Rev. B*, **35** (1987) 6203
- [21] P. Ajayan, P. Kim, and K. Banerjee, *Phys. Today*, **69** (2016) 44.
- [22] A. Wander, F. Schedin, P. Steadman, A. Norris, R. Mc-Grath, T. S. Turner, G. Thornton, N. M. Harrison *Phys.Rev. Lett.* **86** (2001) 3811
- [23] Y. Miyamoto, B. D. Yu, *Appl. Phys. Lett* . **80** (2002) 586
- [24] C. Tusche, H. L. Meyerheim, J. Kirschner, *Phys. Rev. Lett.*
- [25] H. Zhou, X. Lin, H. Guo, S. Lin, Y. Sun, Y. Xu, *J. Semicond.***38** (2017) 033002
- [25] S. E. Thompson *et al.*, *IEEE Trans. Electron. Devices.* **51** (2004) 1790

Chapitre 1

Depuis l'avènement de la technologie 2D et que le graphène a été isolé expérimentalement en 2004 par Geim et Novoselov [1], les investigations sur ce type de matériau se multiplient dans l'espoir de créer des systèmes nanoélectroniques permettant de l'utiliser à son plein potentiel et de tirer parti de ses propriétés uniques en ce qui concerne le transport électronique et le photovoltaïque. Pour ce faire, il peut être combiné à d'autres matériaux bidimensionnels au sein de structures soit restant planaires soit multicouches, afin d'accéder à un degré de contrôle sur les propriétés du système. Le graphène est un plan unique d'atomes de carbone en arrangement nid d'abeilles. Il peut être considéré comme un monoplan de graphite ou comme la limite infinie des hydrocarbures aromatiques polycycliques. Dans la littérature scientifique, le graphène est la dernière découverte de la famille des allotropes de l'élément du carbone C. Ce groupe est constitué entre autres par les arrangements cristallographiques naturelles que sont le diamant, le graphite, la lonsdaleite ou le carbone amorphe et aussi par des nouveaux objets liés aux nanotechnologies comme les nanotubes, les fullerènes, la nanomousse et désormais le graphène. Ce système est l'unique forme bidimensionnelle des allotropes formé essentiellement de l'atome du carbone. Sa structure cristalline en nid d'abeilles le rapproche du graphite, des nanotubes de C et, dans une moindre mesure, des fullerènes. Sur la figure 1.1 nous montrons quelques exemples de forme allotropiques de l'élément C. Il est tout à fait naturel de noter que l'étude théorique du graphène a débuté bien avant la toute première réalisation expérimentale des dispositifs à la base de ce matériau. Effectivement, les travaux concernant les propriétés physico-chimiques du graphite, ou de ces formes en nanotubes de carbone ou de fullerènes avaient souvent comme préambule, l'étude d'un plan unique d'atomes de C idéal (structure en nid d'abeilles, plat, infini et isolé). Ces travaux avaient mis en avant certaines particularités de la structure électronique de ce système en forme bidimensionnel, dont l'existence n'apparaissait alors que purement hypothétique le long de calculs théoriques.

Cependant, la réalisation expérimentale du graphène en 2004 a donc suscité un vif intérêt de la part de la communauté de la physique de la matière du solide [2, 3, 4, 5]. Intérêt similaire à celui qui avait suivi la découverte des fullerènes en 1985 ou des nanotubes de carbone en 1991. On a montré durant les premières études expérimentales que le graphène possédait des propriétés physiques tout à fait remarquables et intéressantes, comme une grande longueur de cohérence de phase, des mobilités électroniques μ importantes pour un système en surface, ainsi qu'un

nouvel effet Hall quantique dit demi-entier, toujours visible à température ambiante. Plusieurs de ces caractéristiques ont d'ailleurs directement pour origine la structure électronique particulière préalablement étudiée en théorie de la physique du solide. Cette particularité permet d'espérer l'avènement de nouveaux dispositifs de taille nanométrique, pouvant exploiter les propriétés physique de ce système. Ce matériau apparaît donc à la fois comme un système physique intéressant du point de vue fondamental, mais aussi comme un candidat potentiel pour succéder aux technologies vieillissants basées essentiellement sur le silicium.

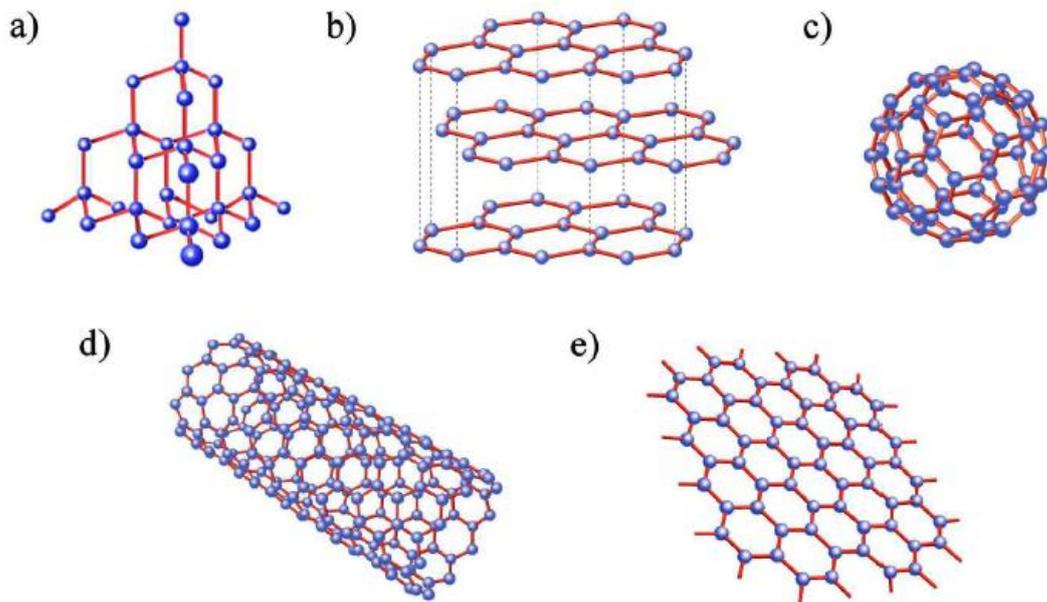


Figure. 1.1 : Structure cristalline de certains allotropes de l'élément carbone : (a) diamant ; (b) graphite ; (c) fullerène C60 ; (d) nanotube de carbone et (e) graphène. Le graphène peut être considéré comme la base de nombreux allotropes : le nanotube et le fullène peuvent être vus comme l'enroulement d'un plan de graphène et le graphite comme un empilement de plusieurs plans. Images issues de [6].

Au-delà des efforts fournis pour diffuser les vertus de cette structure en 2D, la méthode de synthèse de celui-ci a aussi permis d'isoler plusieurs autres matériaux lamellaires sous forme bidimensionnelle (2D), jusqu'alors étudiés dans leur forme tridimensionnelle [7], [8]. On peut citer parmi ces matériaux, les couches monoatomiques telles que le nitrure de bore hexagonal (h-BN)[9], mais également des couches dont le feuillet irréductible est composé de plusieurs plans atomiques. On peut en effet isoler des feuillets composés de 2, 3 ou 4 plans atomiques ayant des propriétés différentes les uns des autres, variant de composés à gap fermé à d'autre à large gap en passant par les semi-conducteurs et supraconducteurs (Figure 1.2). Un des

aspects de ces matériaux bidimensionnels qui suscite une amabilité particulière est leur susceptibilité aux perturbations extérieures via des interactions hors plan. D'un point de vue expérience au sein d'un laboratoire, le confinement d'électrons dans une épaisseur de quelques plans atomiques permet d'avoir un plus grand contrôle sur leur comportement mais les rends également sensibles à certains facteurs extérieurs. Ceci représente à la fois l'un des avantages majeurs de l'utilisation des matériaux 2D mais également son inconvénient principal lorsqu'il s'agit de les intégrer dans des dispositifs. De ce fait, le couplage des propriétés des matériaux bidimensionnels par leur empilement permet d'envisager la confection de dispositifs électroniques comme les transistor et optoélectroniques basés sur des structures complexes comme les hétérostructures à matériaux 2D [10], [11], [12].

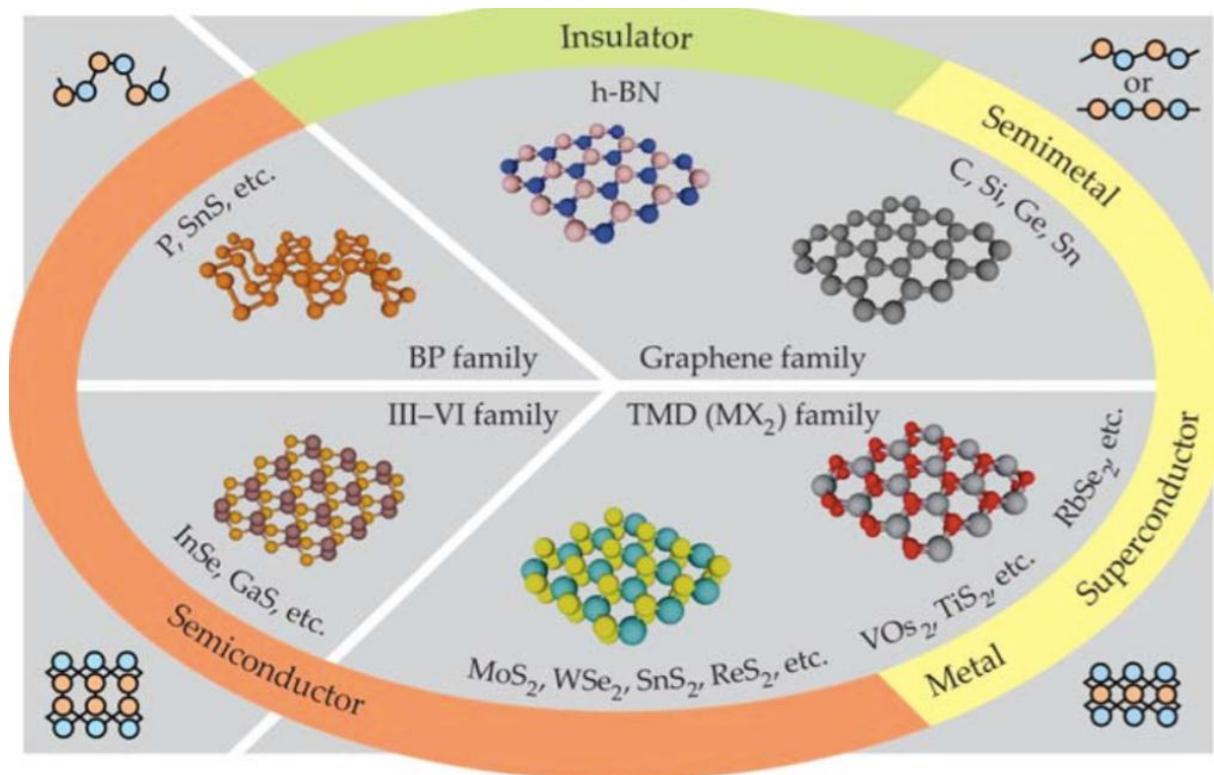


Figure 1.2 : Figure regroupant les matériaux bidimensionnels ayant été isolés à l'échelle d'un mono-feuillet. Cette famille de matériaux comprend le graphène et ses analogues d'une épaisseur atomique tel que le h-BN ; la famille du phosphore noir (BP) organisée sur 2 épaisseurs atomiques ; les semi-conducteurs de la famille des III-V ; et les TMDs. Les vues en coupes latérales de chaque famille sont représentées aux quatre coins de l'image.

1. Synthèse des matériaux 2D

La synthèse des matériaux 2D reste un défi technique et scientifique avec pour objectif d'obtenir des cristaux de hautes qualités, de larges dimensions latérales et d'épaisseurs contrôlables. Par exemple, l'exfoliation de la structure du graphène a permis par la suite d'isoler à l'échelle du

monofeuillet dite aussi monolayers plusieurs matériaux auparavant connus sous leur forme volumique, tels que le h-BN ou les TMDs. Le principe de l'exfoliation à l'aide d'un scotch réside dans la probabilité de séparer les couches d'un cristal volumique afin que toutes les couches restent sur le scotch sauf une, qui sera transférée sur le substrat désiré. La mensuration des cristaux monocouche ainsi obtenue dépend exclusivement de la qualité des cristaux et du type de matériaux (graphène, h-BN, TMDs...). Le taux de réussite de ce type de transfert est plus au moins mince et l'épaisseur est mal contrôlée. Des processus d'exfoliation plus élaborés ont permis d'étendre le taux de réussite et les tailles de cristaux tels que le PDMS permettant d'obtenir des hétérostructures efficacement avec un taux de réussite proche de 100% [13]. Cette technique exploite une association de films de carbonate de polypropylène (PPC) et de polydiméthylsiloxane (PDMS) chauffés et refroidis à différentes températures afin de prendre des arrangements cristallins en 2D puis de les déposer sur un autre substrat hôte voir par exemple la Figure 1.3.

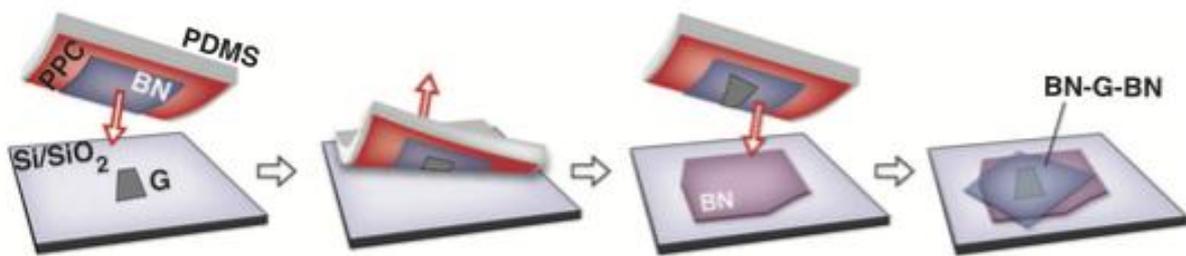


Figure 1.3 : Représentation schématique des étapes d'une technique d'exfoliation utilisant une association de films de carbonate de polypropylène (PPC) et de polydiméthylsiloxane (PDMS) tiré de réf [13].

Toutefois, même en utilisant cette technique, la taille des cristaux obtenue est relativement petite ($> 20 \mu\text{m}$). D'autres méthodes ont permis de contourner ce problème, la méthode la plus récente a permis par exemple d'exfolier sélectivement des cristaux mono-feuillet de TMD d'environ $500 \mu\text{m}$ de long [14]. Son principe est basé sur l'évaporation thermique de l'or sur un cristal volumique de TMD, créant ainsi des liaisons entre l'or et la couche supérieure du TMD choisi. Ces liaisons étant plus fortes que les interactions de vdW inter-feuillet, l'exfoliation permettra de récupérer uniquement la couche supérieure en conservant ses dimensions initiales [15].

2. Applications

Bien que le graphène soit imbattable pour transporter rapidement les électrons, il souffre d'un handicap majeur : contrairement aux matériaux dont sont faits les transistors de nos ordinateurs, il n'est pas semi-conducteur. De tels matériaux conduisent l'électricité dès qu'on apporte aux électrons qui les composent une certaine quantité d'énergie sous forme de chaleur, de lumière ou d'un champ électrique. Cette quantité d'énergie est connue sous le nom de « bande interdite » ou *gap* d'énergie. C'est elle qui permet « d'éteindre » et « d'allumer » à volonté les composants électroniques et de créer ainsi les 0 et les 1 du monde digital. Or, le graphène ne possède pas de *gap* et les efforts pour en créer une ne se sont pas révélés concluants jusqu'ici. Résultat : « *Aujourd'hui, très peu de monde croit encore à l'avènement d'une nouvelle électronique basée sur le graphène* ». C'est cette impasse qui a poussé de nombreux laboratoires à partir en quête de nouveaux matériaux qui soient aussi fins que le graphène mais qui, en outre, soient semi-conducteurs. L'enjeu est de taille : avec de tel matériaux 2D, il sera tout à fait possible d'affiner jusqu'aux dimensions de l'atome (ou presque) les canaux par lesquels, dans les transistors en particulier, transitent les électrons. Et donc repousser d'autant les limites de la miniaturisation, qui sont aujourd'hui sur le point d'être atteintes.

Dans cette course, un premier matériau a sorti son épingle du jeu : le silicène. Comme son nom l'indique, celui-ci est au silicium ce que le graphène est au carbone : c'est un feuillet d'une seule épaisseur d'atomes de silicium, organisés eux aussi en nid-d'abeilles. « *Mais à la différence du graphène, où tous les atomes sont dans le même plan, le réseau cristallin du silicène est légèrement ondulé. C'est cette caractéristique qui permet de le rendre semi-conducteur* », explique Guy Le Lay. S'ajoute à cela que dans le silicène, tout comme pour le graphène, les électrons sont extrêmement mobiles. Autre avantage, et pas des moindres : en tant que dérivé du silicium, le silicène pourrait s'intégrer naturellement à l'industrie électronique existante, qui repose essentiellement sur le silicium.

Reste que le silicène n'est pas dépourvu de défauts. À commencer par sa fabrication, qui est bien plus compliquée que celle du graphène. Pour obtenir du graphène, il suffit en effet de peler, à l'aide d'un simple ruban adhésif, du graphite, un matériau naturel – dont est faite la mine d'un crayon – composé d'un empilement de feuillets d'atomes de carbone. Mais le silicium ne présente pas à l'état naturel de structure identique à celle du graphite. La synthèse du silicène doit donc se faire de façon artificielle. Pour cela, il faut recourir à un procédé appelé épitaxie :

il consiste à faire s'évaporer, dans une enceinte sous ultravide, du silicium pur en le bombardant avec un faisceau d'électrons. Les atomes de silicium ainsi arrachés au bloc de matière viennent de déposer sur un substrat dont la structure cristalline les contraint à s'agencer selon le réseau en nid-d'abeilles. Tout est dans le choix du substrat. L'équipe de Guy Le Lay, qui fut l'une des premières à synthétiser du silicène en 2012, a choisi l'argent. Problème : l'argent est un métal et donc un conducteur d'électricité. Il viendrait donc immanquablement court-circuiter les circuits électroniques auxquels est destiné le silicène, le rendant *de facto* inutile.

S'il est vu aujourd'hui comme le fer de lance pour supplanter un jour le silicium des transistors, le silicène n'est pas le seul sur la liste. D'autres matériaux ont été synthétisés et sont eux aussi à l'étude. Parmi eux, le germanène, composé d'atomes de germanium, le stanène (fait d'étain), ou encore le phosphorene (fait de phosphore). Difficile encore aujourd'hui de dire lequel d'entre eux s'imposera. Autres matériaux pleins de promesses pour l'électronique de demain : les dichalcogénures de métaux de transition (ou DMT). De l'épaisseur de trois atomes, un feuillet de DMT est constitué d'atomes d'un métal de transition (comme le molybdène ou le tungstène) pris en sandwich entre des atomes de soufre ou encore de sélénium. La fabrication de ces matériaux est simple et identique à celle utilisée pour le graphène : elle consiste à détacher, avec un ruban adhésif, un feuillet à la surface d'un matériau naturel fait d'un empilement de couches.

Les promesses de l'optoélectronique

Dans un autre domaine de l'électronique, l'optoélectronique, qui s'intéresse aux dispositifs capables d'émettre ou d'absorber de la lumière, les DMT promettent en revanche de nombreuses applications. Car non seulement ces matériaux sont semi-conducteurs, mais qui plus est, ils interagissent avec la lumière de façon extrêmement efficace. « *Un seul feuillet de MoS₂ est capable d'absorber 15 % de la lumière qu'il reçoit. C'est dix fois plus que ce dont sont capables les matériaux actuels comme l'arséniure de gallium, qui sont pourtant dix fois plus épais* », note Xavier Marie, du Laboratoire de physique et chimie des nano-objets³, à Toulouse. Avec son équipe, il travaille actuellement à caractériser finement les propriétés optiques de plusieurs DMT.

L'extraordinaire capacité de ces nouveaux matériaux peut ensuite être utilisée pour leur faire convertir la lumière en électricité. Quand un photon frappe les atomes présents dans le cristal, son énergie est transférée à un électron qui peut alors franchir la bande interdite. Résultat : un

courant électrique est créé. Réciproquement, on peut transformer de l'électricité en lumière en injectant des électrons dans le feuillet de DMT.

Grâce à cette fantastique habileté à convertir la lumière en électricité et vice versa, les DMT sont promis à un brillant avenir. Ils pourraient permettre la réalisation de cellules photovoltaïques plus sensibles, de sources de lumière miniaturisées (LED, laser), ainsi que de photodétecteurs plus petits, pour les télécommunications par fibres optiques notamment. Ultraflexibles comme le graphène, ils pourraient également constituer les systèmes d'affichage de futurs écrans souples. Déjà, de nombreux prototypes ont été fabriqués et testés.

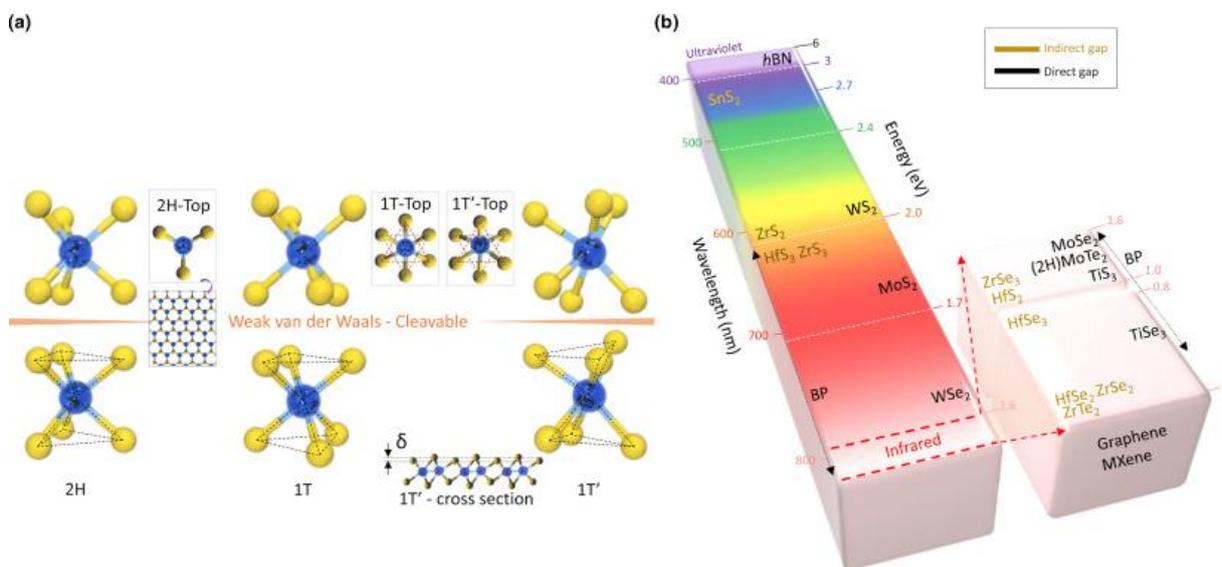


Figure 1.4 : (a) Structures typiques de dichalcogénures de métaux de transition stratifiés. Les structures 2H, 1T et 1T' clivables dans la TMD en couches sont représentées. (b) Band gap de matériaux en couches 2D variant de zéro bande interdite de graphène (couleur blanche) à bande large de hBN. La couleur de la colonne présente la longueur d'onde correspondante de la bande interdite, par exemple, la bande interdite pour MoS₂ (1,8 eV) est de couleur rouge et WS₂ (2,0 eV) est de couleur orange. Les matériaux à gap indirects sont représentés à gauche (SnS₂, ZrS₂, HfS₃, ZrS₃, ZrSe₃, HfS₂, HfSe₃, HfSe₂, ZrSe₂ et ZrTe₂) et les matériaux à bande interdite directe sont représentés sur le côté droit de la colonne (h-BN, WS₂, MoS₂, WSe₂, MoSe₂, 2H-MoTe₂, TiS₃ et TiSe₃). Image tirée de la réf [16].

Références

- [1] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, A. Firsov, *Science* **306** (2004), 666
- [2] C. Berger, Z. Song, X. Li, A.Y. Ogbazghi, R. Feng, Z. Dai, A.N Marchenkov, E.H. Conrad, P.N. First, W.A. de Heer, *J. Phys. Chem B* **108**, (2004) 19912
- [3] K.S. Novoselov, A.K. Geim, S.V. Morozov, D. Jiang, M.I. Katsnelson, I.V. Grigorieva, S.V. Dubonos, A.A. Firsov, *Nature* **438** (2005) 197
- [4] Y. Zhang, Y.-W. Tan, H.L. Stormer, P. Kim, *Nature* **438**(2005) 201
- [5] C. Berger, Z. Song, X. Li, X. Wu, N. Brown, C. Naud, D. Mayou, T. Li, J.Hass, A.N Marchenkov, E.H. Conrad, P.N. First, W.A. de Heer, *Science*, **312** (2006) 1191
- [6] J.-C. Charlier, X. Blase, S. Roche, *Rev. Modern Phys.*, **79** (2008) 677
- [7] A. K. Geim and K. S. Novoselov, *Nat. Mater.*, vol. 6, no. 3, pp. **183** (2007) 191.
- [8] G. R. Bhimanapati *et al ACS Nano* **9** (2015) 11539
- [9] L. Liu, Y. Feng, and Z. Shen, *Phys. Rev. B*, **68** (2003) 1–8.
- [10] C.-H. Lee *et al.*, *Nat. Nanotechnol.*, **9** (2014) 676
- [11] F. Wang *et al Nano Lett.*, **15** (2015) 7566.
- [12] J. Meng *et al. Nanoscale*, **7** (2015) 11611.
- [13] F. Pizzocchero *et al Nat. Commun.*, **7** (2016) 1894.
- [14] S. B. Desai *et al.*, *Adv. Mater*, **28** (2016) 4053.
- [15] J. Kim *et al. Science*, **342** (2013) 833.
- [16] W.Choi, N. Choudhary, G. HeeHan,J. Park, D. Akinwande,Y. Hee Lee, *Materials Today* **20** (2017)

Chapitre 2

1-Théorie de la densité fonctionnelle (DFT) :

En 1927, Thomas et Fermi [1,2] développent un premier modèle de la DFT. Il s'agit d'une approche statistique permettant d'obtenir une approximation de la distribution électronique autour d'un atome. Cependant, le modèle ne tient pas compte des termes d'échange et de corrélation électronique ; ceci et l'approximation statistique inhérente au modèle limitant le degré de précision de l'approche. En 1954, Gaspar [3] parvient à un résultat majeur, sensiblement semblable à la DFT moderne, à partir de l'approche de Hartree-Fock et Slater. L'article passe malheureusement inaperçu à l'ouest. Il faudra attendre le milieu des années 1960 pour que soient posées les bases théoriques de l'approche moderne de la DFT par Hohenberg, Kohn et Sham [4,5]

1-1 Équations de Kohn et Sham:

Étant donné que la forme de $T[\rho]$ et de $E_{\text{ncl}}[\rho]$ est inconnue, il est impossible de résoudre analytiquement l'équation de Schrödinger multi-électronique liée au système d'électrons en interaction. En 1965, Kohn et Sham proposent de réécrire la fonctionnelle $E[\rho]$ de la manière suivante :

$$F[\rho] = T_0[\rho] + J[\rho] + E_{\text{XC}}[\rho] \quad (2.1)$$

$T_0[\rho]$ est l'énergie cinétique d'un système d'électrons indépendants, et $J[\rho]$ est la contribution classique à la fonctionnelle de l'interaction électron-électron. Évidemment, T_0 n'est pas équivalente à l'énergie cinétique du système en interaction ; la différence des deux et la contribution non classique à l'interaction électron-électron composent un terme appelé énergie d'échange-corrélation E_{XC} :

$$E_{\text{XC}}[\rho] = (T[\rho] - T_0[\rho]) + (E_{\text{ee}}[\rho] - J[\rho]) \quad (2.2)$$

Autrement dit, contient la partie inconnue de la fonctionnelle universelle $F[\rho]$. On réécrit maintenant l'énergie totale du système en interaction :

$$\begin{aligned}
E[\rho] &= \int \rho(r) V_{Ne}(r) dr + T_0[\rho] + \frac{1}{2} \iint \rho(r_1) \rho(r_2) \frac{1}{r_{12}} dr_1 dr_2 + E_{xc}[\rho] \\
&= \sum_{i=1}^N \int \sum_{A=1}^M \frac{Z}{r_{1A}} |\Psi_i(r_1)|^2 dr_1 - \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \langle \Psi_i | \Delta^2 | \Psi_i \rangle + \sum_{i=1}^N \sum_{i < j}^N |\Psi_i(r_1)|^2 \frac{1}{r_{12}} dr_1 dr_2 + \\
&E_{xc}[\rho]
\end{aligned} \tag{2.3}$$

En appliquant le principe variationnel par rapport aux fonctions d'onde ψ_i , on arrive à un ensemble d'équations de Schrödinger mono électroniques appelées équations de Kohn et Sham :

$$(-\nabla^2 + V_S(r)) \psi_i = \epsilon_i \psi_i \tag{2.4}$$

V_S représente le potentiel local fictif de Kohn et Sham, dans lequel se déplacent les fermions indépendants :

$$V_S(r_1) = \int \rho(r_2) \frac{1}{r_{12}} dr_2 + V_{XC}(r_1) - Z_A/r_{1A} \tag{2.5}$$

La résolution des équations de Kohn et Sham permet d'obtenir la densité électronique exacte du système, et par extension son énergie exacte. Pour ce faire, il faut cependant que le potentiel d'échange-corrélation V_{XC} , la dérivée fonctionnelle de l'énergie d'échange-corrélation par rapport à la densité électronique, soit exact. La forme pas connue, plusieurs approximations ont été développées successivement.

1-2 Approximation de la densité locale (LDA):

La première approximation de la fonctionnelle d'échange-corrélation consiste à supposer le système comme étant un gaz uniforme d'électrons : un système dans lequel les électrons se déplacent dans une distribution de charges positives de manière à ce que l'ensemble soit neutre [5]. Il s'agit de l'approximation de la densité locale, ou local density approximation en anglais (LDA). Elle fut introduite indirectement par Slater en 1951 [6], avant que la DFT ne soit développée. Il fallut un certain temps avant que l'approximation introduite par Slater, une moyenne pondérée sur le terme d'échange de l'approche de Hartree-Fock, fut reconnue comme la LDA moderne. Les travaux de Gaspar sont également considérés comme absolument précurseurs.

Dans la LDA, l'énergie d'échange-corrélation s'écrit :

$$E_{xc}^{LDA} = \int \rho(r) E_{xc}(\rho(r)) dr \tag{2.6}$$

Avec $E_{xc}(\rho(r)) = E_x(\rho(r)) + E_c(\rho(r))$ l'énergie d'échange-corrélation, qu'on peut décomposer en deux parties. Il s'agit de l'énergie d'échange-corrélation par particule dans le cas d'un gaz uniforme d'électrons de densité $\rho(r)$. La forme exacte de l'énergie d'échange, $E_x(\rho(r))$, a été obtenue par Bloch et Dirac à la fin des années 1920. Elle s'écrit :

$$X(\rho(r)) = -3/4 ((3\rho(r))/\pi)^{1/3} \tag{2.7}$$

En revanche, l'expression exacte de l'énergie de corrélation est inconnue. Une forme analytique a été paramétrée par interpolation de valeurs obtenues par méthodes de Monte Carlo quantique. On peut étendre la LDA aux systèmes sans contrainte de spin ; l'approximation prend alors le nom de densité locale de spin (LSD, pour local spin densité). La fonctionnelle d'échange-corrélation distingue alors les densités de spin up et de spin down :

$$E_{XC}^{LDA} = \int p(r) E_{XC}(p^{up}(r), p^{down}(r)) dr \quad (2.8)$$

La LDA est exacte dans la mesure où la densité est élevée, ou lorsque la densité de charge varie lentement dans l'espace. Cette approximation donne d'excellents résultats, en dépit de sa très grande simplicité, notamment pour les matériaux faiblement corrélés comme les semi-conducteurs et les métaux simples. Ses inconvénients majeurs sont : une large surestimation de l'énergie de cohésion ou de l'énergie de liaison dans le cas des molécules, une sous-estimation systématique des longueurs de liaison, et une incapacité à décrire correctement les matériaux fortement corrélés comme les oxydes de métaux de transition.

1-2 Approximation du gradient généralisé (GGA):

Afin de se rapprocher de la description du système réel, il convient d'aller au-delà de la LDA. D'une manière logique, cela peut se faire en incluant plus d'information à propos de la densité de charge réelle. Par exemple, l'approximation du gradient généralisé (generalized gradient approximation en anglais, soit GGA) consiste à prendre en compte le gradient de la densité électronique, $\nabla\rho(r)$, afin de décrire les hétérogénéités de la densité de charge réelle. On inclut ainsi une correction non-locale, et les fonctions d'échange-corrélation dépendent alors à la fois de la densité en chaque point.

Dans l'approximation du gradient généralisée, l'énergie d'échange s'écrit généralement :

$$E_x^{GGA} = E_x^{LDA} - \int F(s) \rho^{4/3}(r) dr$$

$$S(r) = |\nabla\rho(r)| / \rho^{4/3}(r)$$

$S(r)$ est une grandeur adimensionnelle appelée gradient de densité réduit. Différentes approches sont considérées pour la fonction $F(s)$, basées sur l'énergie d'échange des gaz rares, ou sur un développement en fonctions rationnelles des puissances de s . Les fonctionnelles GGA permettent d'obtenir de très bons résultats dans la description de l'état fondamental de molécules.

2-Transport quantique : approche par fonctions de Green hors équilibre :

Introduction à la théorie :

Jusqu'à présent, la théorie semi-classique a suffi à décrire les phénomènes de transport dans les dispositifs utilisés par l'industrie électronique. Il s'agit d'une généralisation du modèle de l'électron libre aux potentiels périodiques dans l'espace. Les électrons y sont représentés en utilisant des ondes de Bloch, qui se déplacent entre deux collisions (avec des défauts, des phonons, etc.) selon les équations classiques du mouvement. L'équation du transport de Boltzmann est utilisée afin d'obtenir la fonction de distribution des particules hors-équilibre, souvent résolue par la méthode Monte-Carlo. Une autre approche, moins coûteuse mais également moins précise, est basée sur le modèle de dérive-diffusion. Ces méthodes sont performantes et prédictives pour beaucoup de matériaux, dont le silicium cristallin, clef de voûte du paradigme actuel de l'électronique. Cependant, l'approche semi-classique est généralement incapable de reproduire un certain nombre de phénomènes propres à la physique quantique, le plus connu d'entre eux étant probablement l'effet tunnel. De la même manière que pour le transport de chaleur, à l'échelle du nanomètre, le transport électronique ne peut plus être caractérisé uniquement par des considérations issues de la physique classiques. Plusieurs longueurs caractéristiques de l'électron sont du même ordre de grandeur que le nanomètre : son libre parcours moyen (1 - 1000 Å), sa longueur de cohérence de phase (distance moyenne sur laquelle l'électron conserve sa phase), et sa longueur de localisation, c'est-à-dire l'étendue spatiale des états propres dans un système désordonné. À cette échelle, de nouvelles propriétés de conduction électronique émergent. À nouveau, les porteurs d'énergie peuvent se propager dans le régime balistique ; la résistivité électronique n'est alors due qu'aux contacts du système avec d'autres matériaux. C'est par exemple le cas du graphène, à suffisamment basse température [6], ainsi que dans les transistors à très faible longueur de canal. D'autres effets, comme la localisation d'Anderson [7] dans les systèmes désordonnés ou des phénomènes d'interférence [8] lorsque la phase reste cohérente, peuvent également émerger. Pour modéliser ces phénomènes, il est nécessaire d'utiliser un modèle de transport prenant en compte les lois de la mécanique quantique. Dans cette partie, on va décrire un modèle centré sur l'utilisation

de fonctions de Green hors-équilibre (qu'on appellera par la suite NEGF, pour Non-Equilibrium Green's Function), en conjonction avec une description explicite de la structure électronique par DFT, en utilisant les bases de fonctions localisées de la sous-partie 1.3.3. L'approche NEGF consiste en un cadre général permettant de traiter le transport quantique dans des nanostructures. Strictement équivalent à l'approche de Landauer dans le régime balistique, il permet de modéliser explicitement la diffusion inélastique et les effets de corrélation forte, au niveau atomique. Elle naît des travaux de Martin et Schwinger [9], de Kadanoff et Baym [10], et de Keldysh [11], en théorie de la perturbation à N corps. On se basera principalement sur la description appliquée au transport quantique qu'en fait Datta [12]. Tout au long des développements qui suivront, on considérera un système constitué d'un canal central en contact avec deux électrodes, considérées comme semi-infinies. Les électrodes peuvent avoir des potentiels chimiques μ différents, ce qui aurait pour effet de générer un courant électrique dans le canal.

b/Description des nanodevices à l'intérieur de NEGF:

L'approche NEGF se base essentiellement sur la fonction de Green (GF) retardée (G^R) et la GF ($G^<$) avancée d'un système, également connu comme propagateur de particule, qui décrit la densité des états disponibles et comment les électrons occupent ces états, respectivement [13]. Dans un cadre DFT- NEGF, la GF retardée d'un système est obtenue en inversant l'Hamiltonien H et en utilisant les matrices de recouvrement S d'une densité électronique donnée, $G^R(E) = (E.S - H)^{-1}$.

c/self-énergies ou comment résoudre le couplage avec des électrodes :

Dans les théories macroscopiques, la relation entre les contacts et le dispositif est généralement fixée par la hauteur de la barrière Schottky dans le cas des métaux semi-conducteurs jonctions. Cependant, dans la théorie du transport microscopique, la densité d'états de l'électrode et leur occupation ainsi que le couplage entre l'électrode et l'appareil est requis. En particulier, à l'intérieur de NEGF, cette information est contenue dans l'énergie même de l'électrode retardée Σ^R . Le dispositif retardé GF G_D^R est écrit en termes de GF retardé de l'électrode isolée g^R (Eq. 2.27) et le problème de la description dans le couplage de dispositif aux réservoirs est réduit au calcul du contacter GF, ce qui n'est nécessaire à connaître qu'à proximité de l'appareil, simplifiant le calcul avec les méthodes de surface GF [14].

d/Comment faire face aux systèmes de limites ouvertes : dispositif et Hamiltonien de l'électrode :

Les GF peuvent décrire des systèmes non périodiques si seulement nous sommes capables de séparer l'Hamiltonien du système en deux sous-systèmes et d'écrire la partie non perturbée et l'interaction entre les deux sous-systèmes V , $H = H_0 + V$. Les expressions du hamiltonien non perturbé et l'interaction sont donc:

$$H = \begin{pmatrix} H_d & 0 \\ 0 & H_e \end{pmatrix} ; \quad V = \begin{pmatrix} 0 & V^- \\ V^+ & 0 \end{pmatrix} \quad (2.24)$$

H_e étant l'hamiltonien de l'électrode et H_d des sous-systèmes du dispositif. La GF non perturbé correspondante est calculée par :

$$G_0 = (EI - H_0)^{-1} = \begin{pmatrix} (EI - H_d)^{-1} & 0 \\ 0 & (EI - H_e)^{-1} \end{pmatrix} \quad (2.25)$$

Avec: $g^R = (EI - H_e)^{-1}$

À partir l'équation de Dyson :

$$G^R(E) = G_0(E) + G_0(E) \cdot V \cdot G^R(E) \quad (2.26)$$

Nous pouvons écrire la fonction GF retardée de la devise G_D^R seulement en termes de GF du réservoir isolé. En utilisant l'expression $G_{ED}^R = g^R V^+ G_D^R$:

$$G_D^R = [EI - H_D - V \cdot g^R \cdot V^+]^{-1} = [EI - H_D - \Sigma^R]^{-1} \quad (2.27)$$

Qui définit l'auto-énergie limite retardée:

$$\Sigma^R = V g^R V^+, \quad (2.28)$$

Comme l'effet de l'électrode sur la région de l'appareil.

En conclusion, les matrices non-hermitiennes $\Sigma_{R,L}(E)$ représentent le retard auto-énergies pour l'électrode gauche (L) et droite (R), et peut être considérée comme les taux d'e transfert des électrons de la région active dans l'électrode idéale semi-infinie, de sorte qu'un système quantique ouvert soit décrit par l'hamiltonien non hermétique $H_{ouvert} = H_0 + \Sigma_D(E) + \Sigma_R(E)$. Les matrices $\Gamma_{L,R}(E) = i [\Sigma_{L,R}(E) - \Sigma_{L,R}^+(E)]$ décrivent ainsi l'élargissement du niveau dû au couplage aux électrodes.

E/ Expressions utilisées dans le code TranSIESTA:

En raison de l'ensemble de bases finies utilisées dans le code TranSIESTA, l'Hamiltonien du système (Eq 2.29) est séparé en trois parties indépendantes : la région de contact(C), et les électrodes gauches (L) et droites (R).

$$H_{\text{TransIESTA}} = \begin{pmatrix} H_L + \sum_L & V_{lc} & 0 \\ V_{cl} & H_c & V_{cr} \\ 0 & V_{rc} & H_L + \sum_R \end{pmatrix} \quad (2.29)$$

L'utilisation de valeurs d'électrode massives dans les parties L, R est particulièrement important (Matrices hamiltonienne $H_{L,R}$ et l'auto énergies $\sum_{L,R}$) du système hamiltonien à partir d'un calcul précédent en volume et séparément des électrodes avec conditions aux limites périodiques, comme cela sera expliqué ci-dessous. Ceci correspondant à l'interaction entre la région de contact de l'électrode et l'hamiltonien de la région de contact, qui sont tous deux calculés explicitement avec le code TransIESTA GFs dans un système à frontière ouvert.

f/Calcul de la matrice de densité:

Le calcul de la matrice de densité est différent selon quand ce situ dans une situation d'équilibre ou non. C'est-à-dire à une tension de polarisation nulle, ou à une tension de non-équilibre, c-a-d. à biais fini.

1-À l'équilibre:

L'intégration de la fonction avancée GF sur les énergies détermine la densité matrice par,

$$D_{\mu\nu} = \frac{1}{2\pi i} \int dE G_{\mu\nu}(E) = \int_{-\infty}^{\infty} dE \rho_{\mu\nu}(E) f(E - \mu_F) \quad (2.30)$$

Où $f(E)$ est la fonction de distribution du système, μ_F est le potentiel chimique. La matrice de densité spectrale peut être écrite comme:

$$P(E) = -1/\pi \text{Im} [G^R(E + i\delta)] \quad (2.31)$$

Dans le régime de transport cohérent, c'est-à-dire quand un électron-phonon ou un phonon- l'interaction phonon n'est pas prise en compte, $G^<(E)$ peut être exprimée seulement en termes de $G^R(E) = [E.S - H - \sum_L(E) - \sum_R(E)]^{-1}$. Pour un ensemble de base finie donné $\phi(r)$, la matrice de densité dans l'espace réel est

$$P(r) = \sum_{\mu\nu} D_{\mu\nu} \phi_{\mu}(r) \phi_{\nu}(r) \quad (2.32)$$

2-Au non-équilibre :

Quand une tension de polarisation finie est appliquée, une différence entre le potentiel électrochimique gauche (μ_L) et droit (μ_R) apparaît et un courant circule conduisant à une situation de non-équilibre. Une description du potentiel électrostatique est alors nécessaire. Dans le code TranSIESTA, il est écrit comme :

$$V_H(r) = \varphi(r) + a \times r + b$$

Où $\varphi(r)$ est une solution de l'équation de Poisson pour une densité d'électron donnée.

Le terme linéaire est déterminé par des conditions aux limites imposantes : l'électrode gauche est à une tension $+V_b/2$ et l'électrode droite à $-V_b/2$, le biais appliqué étant donné par $eV_b = \mu_L + \mu_R$. Ainsi, le terme linéaire est $V_b/L (z-L/2)$, L étant la distance entre électrodes.

Les états de diffusion de l'électrode gauche, similaires pour électrode droite, peut être écrites en fonction de la fonction d'onde d'équilibre $\Psi^0_L(r)$ par :

$$\Psi_L(r) = \Psi^0_L(r) + \int dy G^R(x,y) V_L \Psi^0_L(y) \quad (2.34)$$

Maintenant, l'expression de la matrice de densité hors équilibre est :

$$D_{\mu\nu} = \int_{-\infty}^{\infty} dE p_{\mu\nu}^L(E) f(E - \mu_L) + p_{\mu\nu}^R(E) f(E - \mu_R) \quad (2.35)$$

Où la matrice de densité spectrale est définie par :

$$P_{\mu\nu}^L(E) = [G^R 1/\pi \text{Im}[\Sigma_L] (G^R)^+]_{\mu\nu} \quad (2.36)$$

$$Et : \Gamma_L = \text{Im}[\Sigma_L]$$

Calcul du courant dans un nanodispositif :

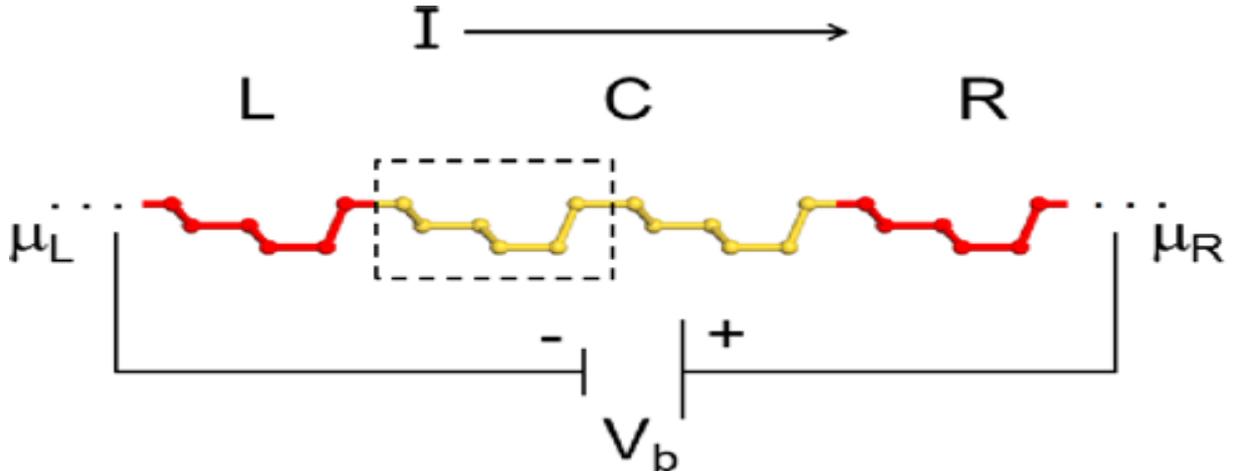
TranSIESTA calcule la diffusion élastique par un potentiel lié à la région centrale du dispositif. Il ne traite pas la diffusion inélastique due à l'interaction l'électron-électron, c'est-à-dire le blocage de Coulomb, impuretés de phonons ou autres centres de diffusion non élastiques.

Le formalisme de Landauer voit la conductance d'un dispositif quantique comme une probabilité de transmission à travers par cette région [15,16]. De plus, il suppose que les électrons sont des particules non-interactives, et que les électrodes sont formé de systèmes cristallin parfait, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de diffusion à l'intérieur des conducteurs, et que les électrons incidents se diffuse à partir de l'électrode gauche (droite) en équilibre thermique vers le réservoir d'électrons gauche (droite), et qu'il n'y a pas de rétrodiffusion conduit à l'interface.

Ainsi, sous le formalisme de Landauer-Buttiker, les spectres de transmission sont:

$$T(E) = \text{Tr}[t^+ t] \quad (2.37)$$

t étant la matrice de transmission càd : $\Psi_{out} = t \Psi_{in}$



En raison d'une tension de polarisation appliquée, le courant circule de la gauche vers la droite de l'électrode, est lié à la probabilité d'avoir une transmission dans le biais fenêtre $\mu_L - \mu_R$:

$$\begin{aligned}
 I(V_b) &= \frac{2e}{h} \left[\int dE \left(-\frac{\partial f}{\partial E} \right) T(E, V_b) \right] (\mu_L - \mu_R) \\
 &= \frac{2e}{h} \int dE (f_L(E) - f_R(E)) T(E, V_b)
 \end{aligned} \tag{2.38}$$

Où la dérivée de la distribution de Fermi à l'équilibre $f(E - E_F)$ est approximée par :

$$\frac{\partial f}{\partial E} = -\frac{f(E - \mu_L) - f(E - \mu_R)}{\mu_L - \mu_R} \text{ et } f_{R,L}(E) = f(E - \mu_{L,R}) \text{ sont les fonctions de distribution de Fermi-Dirac de gauche et de droite respectivement}$$

Dans le NEGF, le coefficient de transmission est calculé à partir de l'auto-énergie et la GF du système fini par:

$$\begin{aligned}
 t(E) &= (\text{Im} [\Sigma_R(E)])^{1/2} G^R(E) (\text{Im} [\Sigma_L(E)])^{1/2} \\
 &= (\Gamma_R(E))^{1/2} G^R(E) (\Gamma_L(E))^{1/2}
 \end{aligned} \tag{2.39}$$

Procédure de calcul:

Par définissant une région finie avec une partie des électrodes gauche et droite et la région de contact, la GF du système fini peut être écrit comme :

$$G(E) = \begin{pmatrix} E.S - Hl - \Sigma_l & -Vlc & 0 \\ -Vcl & E.S - Hc & -VcR \\ 0 & -VRc & E.S - HR - \Sigma_R \end{pmatrix}$$

Où :

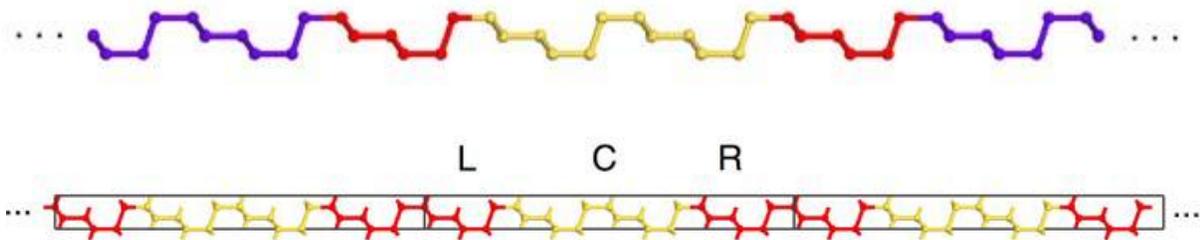
$$\begin{aligned}\sum_L &= V_L g^R_L V_L^+ \\ \sum_R &= V_R g^R_R V_R^+\end{aligned}\tag{2.40}$$

Sont les auto-énergies des pistes qui décrivent le couplage de l'atome explicite utilisé dans le calcul du système fini à la partie restante de l'électrode semi-infinie à travers l'électrode de surface non perturbée GF $g^R_{L,R}$,

Avec les considérations expliquées dans la section suivante, les interactions V_L et V_R utilisés pour construire les auto-énergies $\sum_{L,R}$ ne sont liés qu'à l'action entre l'électrode en volume et les atomes d'électrode qui sont explicitement dans la région finie, pas avec les atomes de la région de contact. Ainsi, seuls les atomes de l'électrode sont impliqués, et ces quantités peuvent être calculées à partir d'un calcul en volume, une tâche beaucoup plus facile.

L'autre terme nécessaire pour calculer $\sum_{L,R}$, l'électrode de surface non perturbée GF $g^R_{L,R}$, est également pris dans la première étape de la procédure TranSIESTA, on un calcul en volume est effectué. Les auto-énergies sont calculées à partir de ce calcul en coupant les électrodes infinies en volume en deux systèmes semi-infinis et en utilisant une construction idéale ou une méthode itérative [17] pour calculer les interactions.

Ensuite, dans la deuxième étape, un cycle SCF de la région finie est calculé, et l'Hamiltonien de la région finie (eq 2.29) est obtenu à partir de la fonction GF par une diagonalisation normale. la matrice de densité est obtenue à partir de l'eq 2.30 et 2.35, qui recommence le cycle SCF. Enfin, la fonction de transmission est obtenue avec un outil post-traité, TBTrans [20], qui utilise les auto-énergies des électrodes et le GF de tout le système (Eq 2.39).



En conclusion, les principales étapes d'un calcul de transport à l'intérieur de Le code TranSIESTA sont :

-Définition du système: électrodes + région de contact

-Calcul des limites périodiques des électrodes globales (gauche et droite): $H_L, R, \text{Matr } L, R$ et les matrices de chevauchement S_L, R sont calculées à partir de l'équation K-S à l'équilibre. L'Hamiltonien et les valeurs de matrice de densité (DM) pour les électrodes du système fini sont fixées à ces valeurs globales (c).

-Le calcul aux limites ouvertes du système fini L-C-R: H_C, V_{LC} et V_{CR} sont calculés dans une approche super cellulaire (voir Fig. 2.3). La matrice de densité hors équilibre $D_{\mu\nu}$ est calculée à partir des coefficients hors équilibre,

(a) lecture les données de l'électrode

(b) Construire H à partir de la matrice de densité en utilisant des équations K-S

(c) résoudre le problème ouvert en utilisant le formalisme GF

(d) construire une nouvelle matrice, densité

(e) répéter les étapes du cycle SCF (b) à (d) jusqu'à la convergence.

-Calcul du transport, outil de post-traitement TBTrans: calcul du courant de l'électron à la tension de polarisation V_b en utilisant l'équation Eq. 2,38 et Eq. 2,39

3/siesta:

Afin d'utiliser la DFT pour les calculs numériques, il faut prendre en compte de nombreux détails techniques et d'autres approximations liées à la mise en œuvre. Outre l'inévitable approximation pour la fonction X_c discutée ci-dessus, certains des principaux aspects du code SIESTA (Initiative espagnole pour les simulations électroniques avec des milliers d'atomes), utilisés dans ce travail, sont brièvement décrits ci-dessous [18, 19,20].

Pour résoudre des équations différentielles telles que les équations de Kohn-Sham, il faut spécifier des conditions aux limites appropriées (BCs). Dans SIESTA, comme dans de nombreux autres codes DFT, on utilise BC périodiques correspondant à une super cellule avec une périodicité dans les trois dimensions. C'est pratique pour traiter des systèmes infinis tels que les cristaux, mais peut également gérer des systèmes finis en rendant la super cellule suffisamment grande pour séparer les objets. Le cadre de la l'approche super cellule est le théorème de Bloch, qui stipule que pour un

système périodique, l'électronique la fonction d'onde peut être écrite en tant que produit d'une partie en forme d'onde et d'une partie de cellule-périodique, c'est-à-dire :

$$\Psi_{j,k}(r) = e^{ikr} u_{j,k}(r) \quad (2.37)$$

Où j est un indice de bande discrète et k un vecteur de réseau réciproque appartenant à la première zone de Brouillon (ZB) correspondant à la super cellule. Le théorème permet de cartographier le problème de valeur propre KS dans l'espace réciproque, où l'on peut obtenir séparément pour chaque k -point un ensemble discret d'états propres de l'Hamiltonien. La valeur d'attente de l'opérateur d'un corps \hat{O} est alors calculée

$$\langle \hat{O} \rangle = \frac{1}{\Omega_{BZ}} \int_{BZ} dk \hat{O}(k) = \sum_{k \in BZ} W_k \hat{O}(k) \quad (2.38)$$

Où l'intégrale sur la première zone de Brouillon (ZB), avec le volume Ω_{BZ} , est approchée, pour des raisons pratiques, d'une somme sur k -points avec les facteurs de poids w_k (en additionnant un). Dans SIESTA, cet échantillonnage BZ discret est basé sur ce que l'on appelle le Monkhorst-Pack [22]. Notez à ce point que plus la super cellule est grande, plus la ZB correspondante est petite. Pour des super cellules suffisamment grandes, cet échantillonnage BZ devient moins critique et utiliser seulement le point Γ pourrait être une approximation raisonnable. Dans la plupart des implémentations DFT, on utilise des pseudo potentiels pour se débarrasser des électrons du noyau. L'idée est de remplacer le potentiel atomique réel et les électrons chimiquement inertes avec un potentiel effectif (le pseudo potentiel) qui fournit la même description pour les électrons de valence. En conséquence, les calculs se simplifient car il suffit de résoudre le calcul pour la structure électronique de valence. Dans SIESTA, on utilise généralement des pseudo potentiels de conservation de la norme selon le paramétrage de Troullier-Martins [23]. Pour une solution numérique des équations de Kohn-Sham, on choisit généralement une base finie pour représenter les fonctions d'onde. Dans SIESTA, on utilise des orbitales localisées de type atomique qui garantissent la matrice hamiltonienne et de chevauchement doit être clairsemée. Pour chaque atome qu'on positionne à R_I on définit un ensemble d'orbitales centrées sur l'atome

$$\Phi_{l,m}(r) = \phi_{l,m}(r_I) Y_{lm}(r_I) \quad (2.39)$$

Où $\phi_{l,m}(r_I)$ et $Y_{lm}(r_I)$ sont des composantes radiales et angulaires, respectivement. Les distances sont commodément écrites en termes de $r_I = r - R_I$ et le moment angulaire est marqué par l, m . Avec une base multiple, il y aura plusieurs orbitales (étiquetées n) correspondant au même moment angulaire mais avec une dépendance radiale différente. Les orbitales de base sont strictement confinées en ce sens qu'elles sont nulles au-delà d'un certain rayon (qui peut être différent pour

chacune des fonctions radiales). Ce rayon de coupure est généralement spécifié indirectement en termes d'énergie de confinement. La base SIESTA implique que le calcul de la matrice de chevauchement et de la plupart des éléments matriciels de l'hamiltonien est des intégrales à deux centres, qui sont effectivement calculés dans l'espace de Fourier où la convolution devient un produit simple. Cependant, la densité et certains éléments de la matrice hamiltonienne sont calculés sur une grille de l'espace réel. La finesse de cette grille est commodément décrite par une énergie «cutoff»

Les principales caractéristiques de siesta sont :

- Il utilise la méthode fonctionnelle de densité cohérente Kohn-Sham standard dans l'approximation de densité locale (LDA) ou l'approximation générale de gradient (GGA)
- Il utilise des pseudo-potentiels conservateurs de normes dans leur forme totalement non locale.
- Il utilise l'orbitale atomique comme un ensemble de base permettant une polarisation multi-zêta et des moments angulaires illimitée et des orbitales hors site.
- Projette les fonctions et la densité de l'onde électronique sur une grille de l'espace réel afin de calculer les potentiels de Hartree et de corrélation d'échange.
- Des simulations avec plusieurs centaines d'atomes sont réalisables avec des postes de travail modestes.

Il fournit régulièrement l'énergie totale et partielle, les forces atomiques, le Tenseur de contrainte, le moment dipolaire électrique, la structure de bande, la densité électronique et les populations atomiques, orbitales et de liaison.

3-1/TranSIESTA :

TRANSIESTA fournit la capacité de modéliser les systèmes de frontière ouverts où le transport d'électrons balistiques. En utilisant TRANSIESTA, on peut calculer des propriétés de transport électronique telles que les conductances de polarisation nulles et la caractéristique I-V d'un système nanométrique en contact avec deux électrodes à différents potentiels électrochimiques. La méthode est basée sur une fonction de Green de non équilibre (NEGF), qui est construite en utilisant la théorie fonctionnelle de la densité Hamiltonien obtenu à partir d'une densité électronique donnée. Une nouvelle densité est calculée en utilisant le formalisme NEGF, qui ferme le cycle auto-cohérent de la DFT. La version actuelle de Siesta [24] inclut la possibilité d'effectuer des calculs

de propriétés de transport nanoélectroniques dans une combinaison de matériel et de logiciel. Un biais fini peut être appliqué entre les deux conducteurs.

En bref, les calculs utilisant TranSIESTA impliquent d'abord l'élucidation de la densité électronique du dispositif à partir l'hamiltonienne et de la DFT en utilisant les fonctions de la technique de Green suivies de calculs président.

Références

- [1] L. H. Thomas, *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*, **23** (1979) 548.
- [2] E. Fermi, *Rend. Accad. Naz. Lincei* **6** (1927) 602
- [3] R. Gáspár, *Acta Physica Academiae Scientiarum Hungaricae* **3** (1954) 263.
- [4] P. Hohenberg , W. Kohn, *Physical review* **136** (1964) 864.
- [5] W. Kohn et L. J. Sham, *Physical review* **140** (1965) 1133.
- [6] K. Bolotin, K. Sikes, J. Hone, H. Stormer, et P. Kim, *Physical review letters* **101** (2008) 968
- [7] P. W. Anderson, *Physical review* **109** (1958) 1492.
- [8] A. Bachtold, C. Strunk, J.-P. Salvetat, J.-M. Bonard, L. Forró, T. Nussbaumer, et C. Schönberger *Physical Review*, **397** (1999) 673,.
- [9] P. C. Martin et J. Schwinger, *Physical Review* **115** (1959) 1342,.
- [10] L. P. Kadanoff et G. A. Baym, *Quantum statistical mechanics* (1962).
- [11] L. V. Keldysh, *Sov. Phys. JETP* **20** (1018) 1965.
- [12] S. Datta, *Quantum transport : atom to transistor* (2005).
- [13] H. Haug and A. Jauho. *Quantum Kinetics in Transport and Optics of Semiconductors*. Solid-State Sciences. Springer, (2007).
- [14] U. Aeberhard. *J. Comput. Electron*, **10** (2011) 394.

- [15] S. Datta. *Electronic Transport in Mesoscopic Systems*. Cambridge Studies in Semiconductor Physics and Microelectronic Engineering. Cambridge University Press (1997).
- [16] M. Büttiker, Y. Imry, R. Landauer and S. Pinhas. *Phys. Rev. B*, **31** (1985) 6207.
- [17] M. P. L. Sancho, J. M. L. Sancho and J. Rubio. *Metal Physics*, **14** (1984) 1205.
- [18] P. Ordejon, E. Artacho, and J. M. Soler. *Phys. Rev. B*, **53** (1996) 1444
- [19] J. M. Soler, E. Artacho, J. D. Gale, A. Garcia, J. Junquera, P. Ordejon, and D. Sanchez-Portal. *J. Phys.:Condens. Matter*, **14** (2002) 2779.
- [20] E. Artacho, E. Anglada, O. Diéguez, J. D. Gale, A. Garcia, J. Junquera, R. M. Martin, P. Ordejon, J. M. Pruneda, D. Sanchez-Portal, and J. M. Soler. *J. Phys.: Condens. Matter*, **20**, (2008) 064208 .
- [21] H. J. Monkhorst and J. D. Pack. *Phys. Rev. B*, **13** (1976) 5192.
- [22] N. Troullier and J. L. Martins. *Phys. Rev. B*, **43** (1991) 1993.
- [23]. User's Guide SIESTA (2009).
- [24] M. Brandbyge, J.-L. Mozos, P. Ordejon, J. Taylor and K. Stokbro. *Phys. Rev. B* **65** (2011) 65401

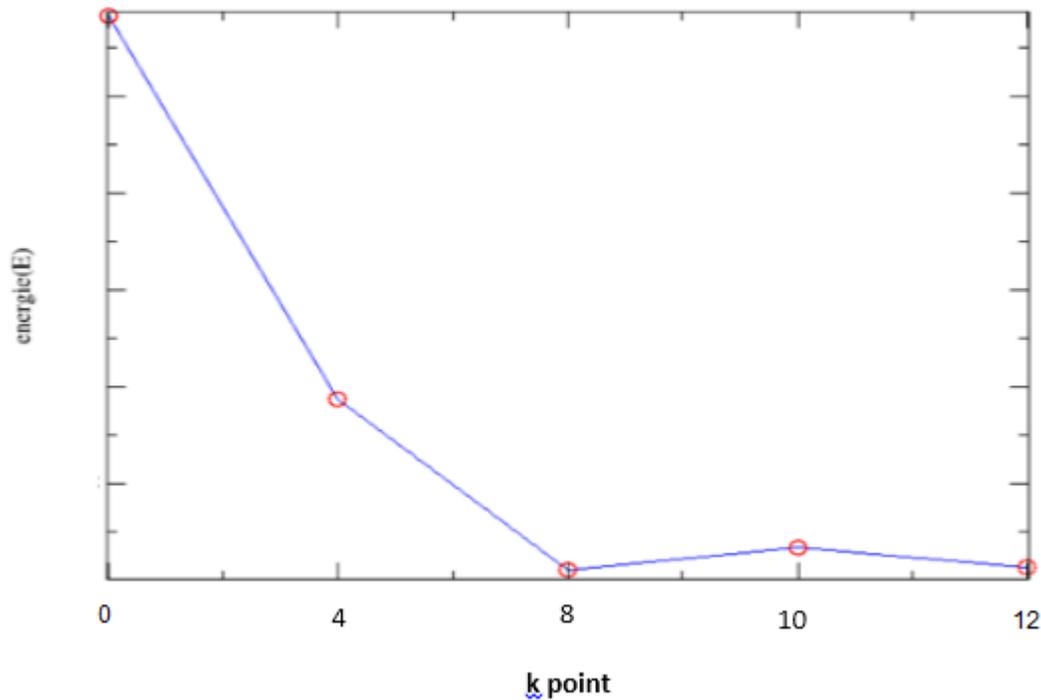
Chapitre 3 :

Les structures lamellaires faisant l'objet de notre mémoire sont de forme monocouche dite en anglais *monolayer*. On s'intéressera pas aux structures dichalcogénures à métaux de transition MX_2 ; mais seulement aux structures à forme en nid d'abeille. Ce choix est dû au fait que la famille MX_2 est très largement étudiée dans la littérature, et que le principal challenge de notre contribution est de trouver un matériau qui change de valeur de gap à disposition, et qu'il soit facilement synthétisé et avec un coût assez faible. Pour cette raison, nous avons sélectionné le composé 2D du carbure de silicium, et on a appliqué une contrainte unidirectionnelle dans le but de redimensionner sa largeur de gap. Ce chapitre comportera aussi une étude préliminaire de d'autres composés à structure en nid d'abeille et cela dans la vocation de présenter une comparaison avec le composé de référence (graphène).

1. Préambule de nos paramètres de calculs

On a basé nos simulations atomistiques sur la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) [1] telle qu'elle est mise en œuvre dans le code (*siesta*) (*Spanish Initiative for Electronic Simulations with Thousands of Atoms*) [2]. Dans ce code, les équations de Kohn-Sham sont résolues d'une façon auto-cohérente tout en développant les fonctions d'onde électronique de valence dans un ensemble d'orbitales atomiques numériques et en adoptant du pseudo potentiel pour décrire l'interaction des électrons de valence avec les électrons des noyaux. Dans les calculs actuels, les orbitales des atomes ont été explicitement incluses dans la bande de valence et leurs fonctions d'onde ont été décrites par une combinaison linéaire d'orbitales atomiques polarisées à double zêta. Les pseudo potentiels Soft de Trouiller-Martins [3] ont été utilisés pour rendre compte des électrons de cœur. Nos fonctions de base ont une plage finie correspondante à un seuil d'énergie de 0,01 Ry. Cela a été établi en appliquant un potentiel de confinement doux, tel que décrit par Junquera et al. [4], qui permet de se débarrasser des instabilités lors des relaxations structurelles. L'échange et les corrélations ont été traités dans l'approximation de gradient généralisée (GGA), paramétré par la fonction Perdew Burke Ernzerhof (PBE) [5]. Une partie du chevauchement et des intégrales hamiltoniennes ont été évaluées dans l'espace réel sur des grilles dont la finesse correspond à la coupure de maille de 500Ry. La zone de Brillouin a été échantillonnée en utilisant des grilles Monkhorst-Pack $1 \times 8 \times 8$ [6]. Les optimisations structurelles ont été obtenues en utilisant

l'algorithme des gradients conjugués et des structures d'équilibre ont été obtenues lorsque les forces et les contraintes étaient inférieures respectivement à 0,01 eV / Å. et 0,05 GPa. Il convient aussi de mentionner que la correction de la dispersion a également été prise en compte, y compris la correction de Grimmes (D2) [7].



2. Propriétés structurales et électroniques des composés étudiés

2.1 Structures planes non ondulées (no buckled)

Deux structures planes sont étudiées dans cette section, le graphène et la structure bidimensionnelle du carbure de silicium 2D-SiC ; tous deux sont composés de deux atomes répartis dans une structure en forme de nid d'abeilles, possédant deux atomes par maille unitaire de la structure hexagonale, Figure 1.3. Contrairement au diamant, les liaisons covalentes entre les atomes sont hybridées sp^2 et orientées dans le même plan [8]. Les liaisons $2p_z$ restantes sont alors perpendiculaires au plan et sont à demi remplies avec les électrons restants. La faible répartition spatiale des orbitales $2p_z$ hors du plan permet de rapprocher les plans de ces deux composés à une distance où les forces de van der Waals sont dominantes par rapport aux liaisons covalentes. Ainsi, les forces qui rendent possible l'empilement des couches permettent leurs exfoliations.

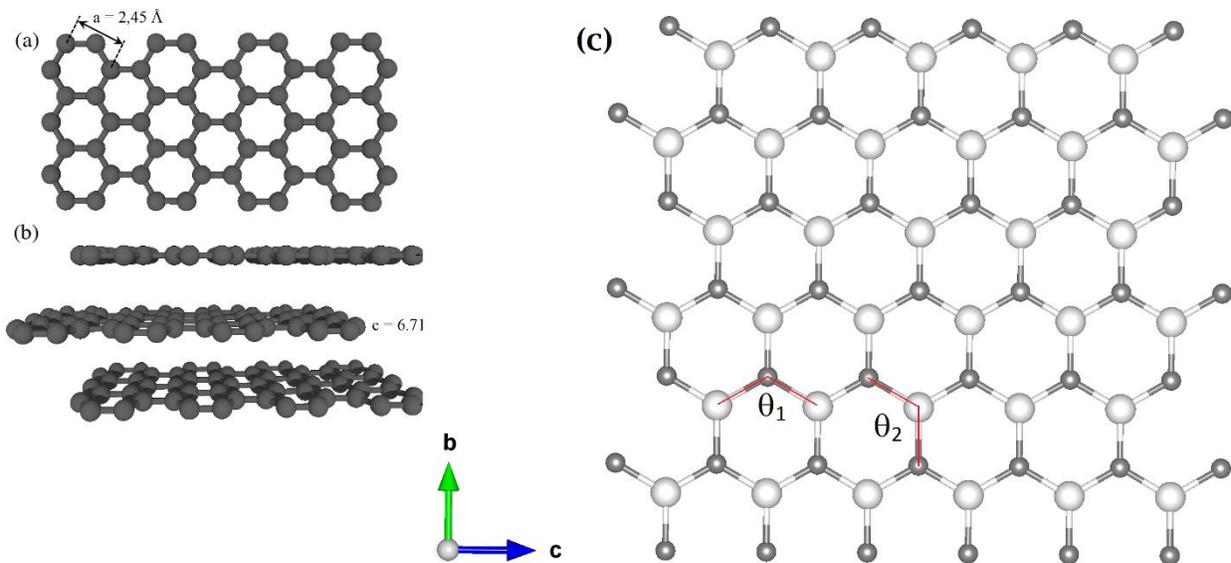


Figure 1.3 : a droit schématisation de graphène dans sa structure monocouche et multilayer. A gauche schématisation de la structure SiC. Les deux en rouge sont des angles de liaison

Le réseau de bravais de nos deux structures est hexagonal avec un motif de deux atomes A et B par maille élémentaire (on peut dire aussi que nos deux composés sont constitués de deux sous-réseaux Hexagonaux A et B).

Molécule	Paramètre de Lettice		Distance interne		Angle de liaison		Energie T
2D	Le présent travail		Le présent travail		Le présent travail		Le présent travail
SiC	4.922	4.850[31]	1.42	1.38 [35]	120	120[39]	-611.1597
Sn	4,507	4.62 [32]	2.88	2.82 [36]	112,5	110 [40]	-190.0695
Ph	3,239	3.246[33]	3,245	3.189[37]	90,001	90 [41]	-852,604
Si	3,42	3.87 [34]	2.301	2.279 [38]	106.45	115.4 [42]	-213.5514

Tableau 1.3 : paramètre de réseau (A), distance interne (A), angle de bond (°), énergie total (eV) Pour les quatre structures. Le SiC, Sn, Ph, Si sont respectivement carbure de silicium, sténane, phosphoreuse et le silicène.

Le cristal bidimensionnel ainsi formé a une structure en nid d'abeilles (voir la figure 2.3 (a)). On définit les vecteurs de bases par :

$$a_1 = \frac{a}{2}(\sqrt{3}, 3) , \quad a_2 = \frac{a}{2}(-\sqrt{3}, 3) \quad (1.3)$$

Par exemple pour le graphène, la distance entre deux atomes successifs est approximativement de $a \approx 1.42 \text{ \AA}$. Le paramètre de maille du graphène est de $|a_1| = |a_2| = \sqrt{3}a \approx 2.46 \text{ \AA}$. On définit les vecteurs qui relient un atome A avec ses trois plus proches voisins (atomes B) :

$$\delta_1 = \frac{a}{2}(\sqrt{3}, 1) , \quad \delta_2 = \frac{a}{2}(-\sqrt{3}, 1) , \quad \delta_3 = a(0, -1) \quad (2.3)$$

Du point de vue de l'espace réciproque, les vecteurs de base sont

$$b_1 = \frac{2\pi}{3a}(\sqrt{3}, 1) \quad b_2 = \frac{2\pi}{3a}(-\sqrt{3}, 1) \quad (3.3)$$

Ces vecteurs définissent une première zone de Brillouin hexagonale représentée sur la figure 2.3 (b). On peut distinguer les points de haute symétrie, \mathbf{K} et \mathbf{K}' aux coins de la première zone de Brillouin, on a $|\Gamma\mathbf{K}| = |\Gamma\mathbf{K}'| = \frac{4\pi}{(3\sqrt{3}a)}$.

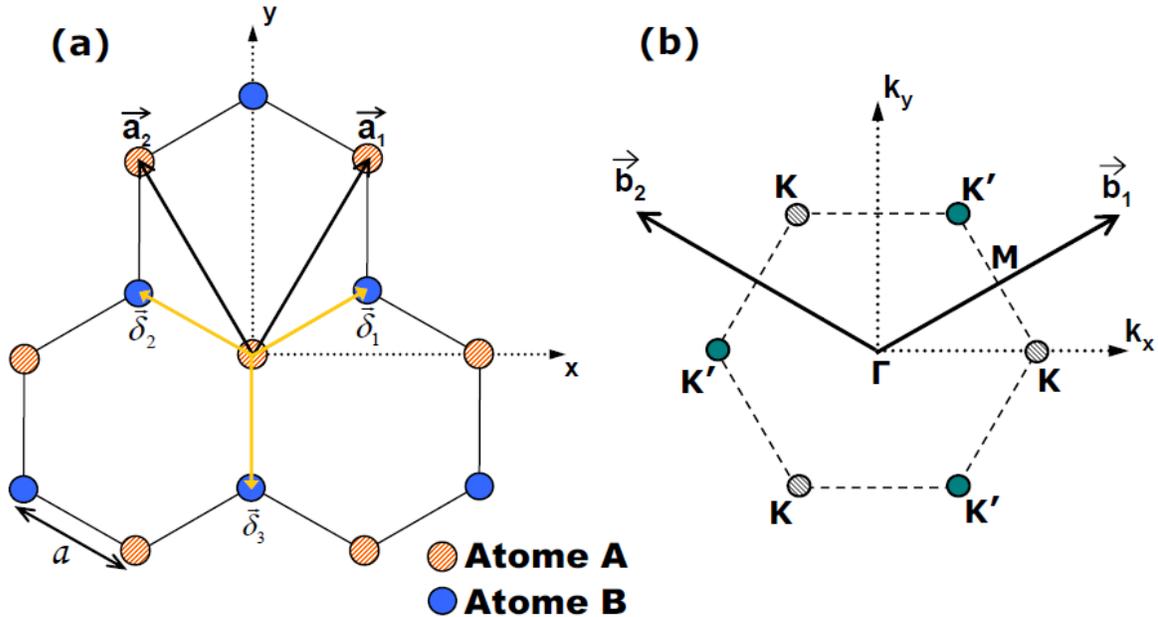


Figure. 2.3 : Réseau de Bravais (a) et première zone de Brillouin (b) du graphène idéal.

L'hybridation sp^2 va mixer les orbitales atomiques dans une nouvelle base avec 3 orbitales hybrides sp^2 et une orbitale $2p_z$ orthogonale aux trois premières. Les orbitales sp^2 vont ainsi former trois bandes σ liantes et trois anti-liantes σ^* tandis que les orbitales $2p_z$ vont donner une bande π liantes

et une bande π^* anti-liantes. Dans le modèle de liaisons fortes, la symétrie des états énergétiques sur chaque sous réseau de la structure hexagonale va induire une sorte d'égalité des orbitales liantes et anti-liantes de la bande π au point de haute symétrie \mathbf{K} de la zone de Brillouin. A l'inverse, c'est l'absence de symétrie qui va être la cause du caractère isolant du nitrure de bore hexagonal avec une bande interdite ou largeur de gap qui dépend de la différence des énergies sur chaque sous réseau.

Cas du graphène :

Nous présentons sur la figure 3.3, la structure de bande du graphène calculée via l'approximation GGA. Du fait que cette structure est en nid d'abeille, le confinement du gaz électronique ainsi que la symétrie de sous réseau imposent à ce composé une structure électronique particulière qui, à certaines échelles d'énergie, est dominée par l'équation de Dirac aux points \mathbf{K} et \mathbf{K}' de la zone de Brillouin du graphène. La forme de la relation de dispersion aux points de haute symétrie \mathbf{K} et \mathbf{K}' , à faible densité de charge est linéaire et la structure de bande est de forme conique.

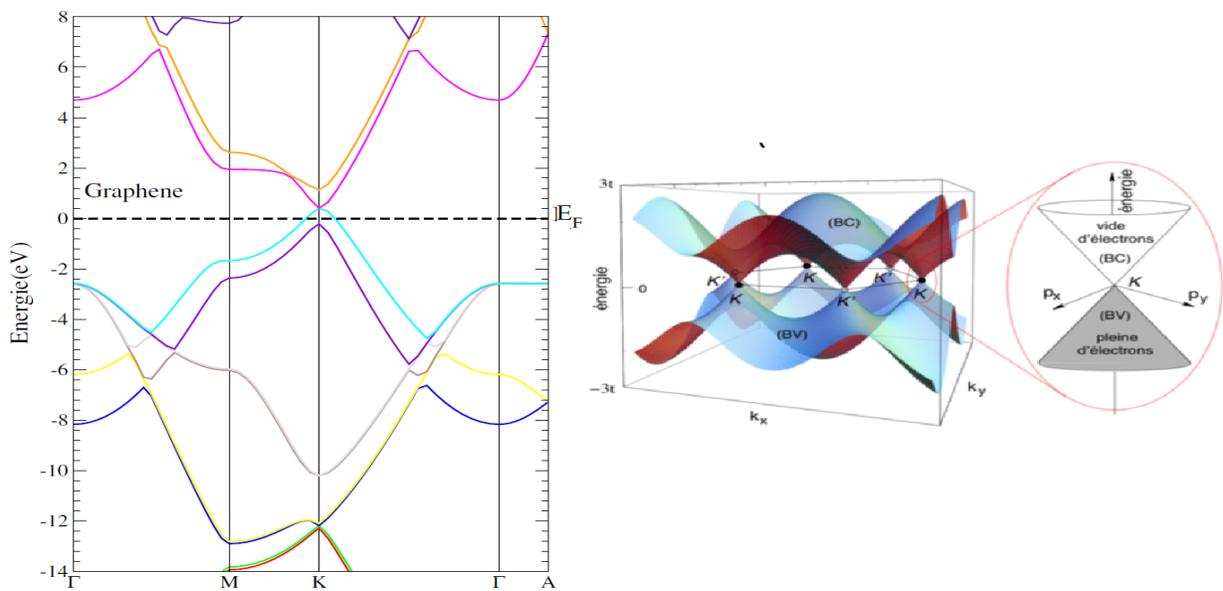


Figure 3.3 : Relation de dispersion de la bande π et π^* d'une monocouche de graphène. Le zoom au point \mathbf{K} de la zone de Brillouin hexagonale montre une dispersion conique.

Ici, l'hybridation sp^2 entre une orbitale de caractère s et deux autres de caractère p conduit à la formation de liaison de type σ entre les atomes de carbone qui sont séparés de 1.42 Å, voir figure

1.3. La liaison planaire σ est responsable de la rigidité de la structure en réseau. L'orbitale p_z non-hybridée, perpendiculaire à la structure plane, peut ainsi se lier avec des atomes de carbone voisins le long d'une liaison forte de type covalent π .

3.1 Structures planes ondulées (*buckled*)

Cas du silicène

Le silicène est la forme allotropique 2D du silicium, il s'organise dans une maille hexagonale, tout comme le graphène. Toutefois, sous sa forme purement bidimensionnelle, l'absence de chevauchement des orbitales atomiques π des atomes voisins rend l'hybridation sp^2 impossible et la structure plutôt instable [9,10]. La forme stable de ce composé est donc ondulée (*buckled*), les 2 sous réseaux atomiques occupant des élévations légèrement différentes. Les anneaux présentent un gauchissement, ce qui crée des ondulations périodiques de la surface plane. IL en résulte également une forte interaction entre des plans adjacents, contrairement à ce qui se passe pour la structure du graphite.

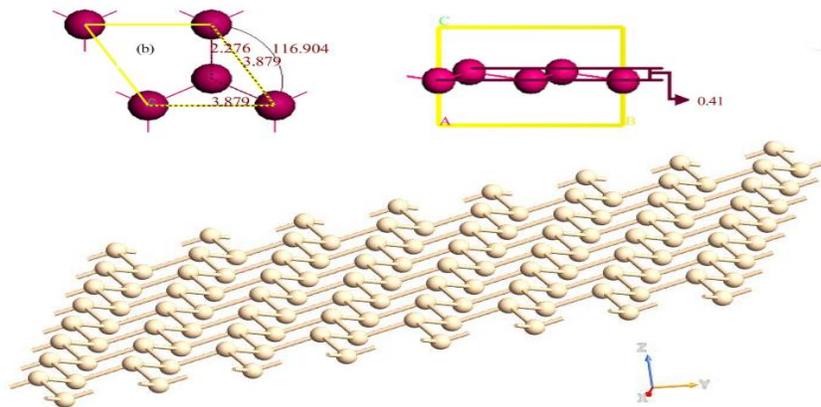


Figure 3.4 : la schématisation de silicène pour le plan (xy), avec la distance inter atomique et le ordre de bond

Nous présentons que la figure 3.5 la structure de bande du silicène, première remarque stipule que ce dernier a des propriétés électroniques analogues à celles du graphène. Le silicène à un gap fermé et est, de par sa structure (hexagonale 2D), un diagramme de dispersion présentant des cônes de Dirac le long des points K/K' . Cependant, ces points sont toutefois moins bien définis que ceux de la structure graphène et ne concernent qu'un intervalle de vecteurs d'onde assez faible. Cependant, ce matériau présentant quelques similitudes avec le graphène, ce qui le rend naturellement un bon

candidat pour y être conjugués ; plusieurs systèmes graphène / silicène ont d'ailleurs déjà été simulés et étudiés [11, 12, 13].

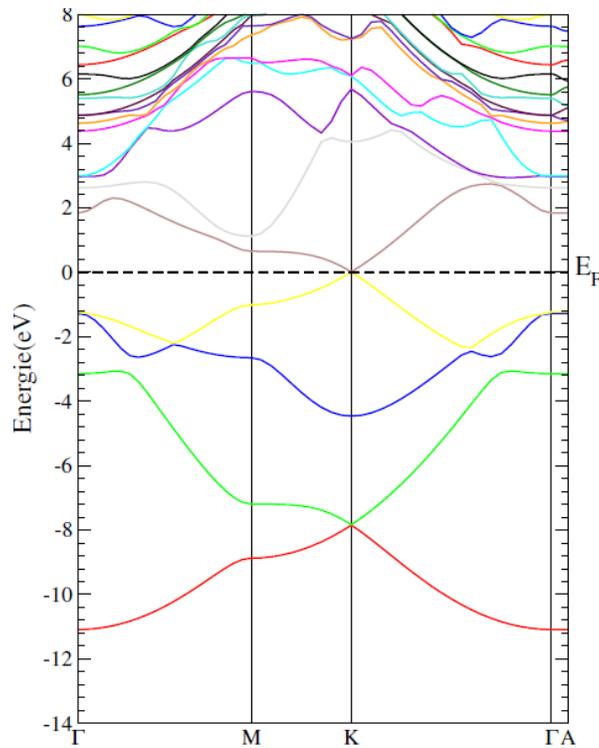


Figure 5.3 : structure de band du silicène

Néanmoins, les techniques de déposition et de croissance associées à ce composé limitent l'intérêt des études expérimentales sur lui. Le silicène est obtenu par croissance sur l'argent. Cela implique une destruction des cônes de Dirac par les interactions fortes du silicène avec le substrat et ses propriétés électroniques intéressantes sont alors perdues ; il conviendrait donc de le faire croître sur des matériaux avec lesquels il n'aurait que des interactions faibles de types van der Waals comme les composés dichalcogénures de type MoS_2 par exemple [14, 15, 16]).

Cas du Sténane ;

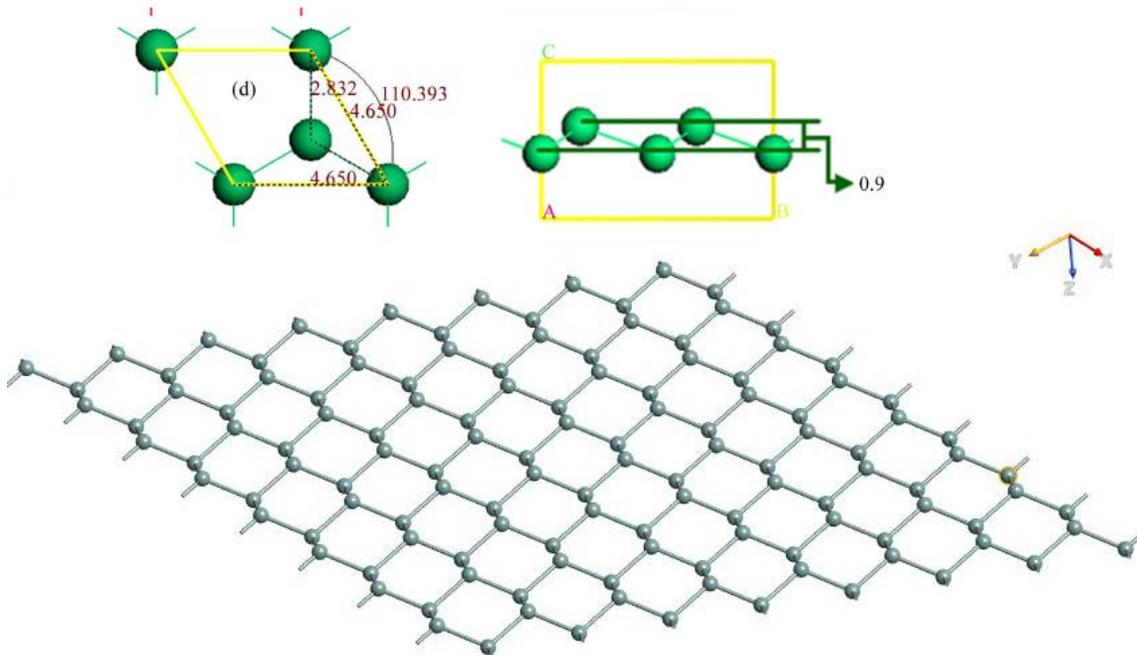


Figure 6.3 : la schématisation de sténane pour, le plan (xy) avec la distance inter atomique et le ordre de bond

Les liaisons π dans la structure ondulée du sténane sont plus faibles que son homologue dans le graphène et ont donc tendance à supposer une structure déformée [20]. Cette caractéristique est dû aux faites que la séparation des orbitales σ - π dans cette structure révèle que le squelette σ se stabilise et le squelette π est déstabilisé en raison du buckling. Ainsi, un plissement (puckering) à courte distance se crée. Ce dernier semble avoir un effet prononcé sur les propriétés électroniques du sténane. Les énergies totales calculées E_{tot} et les paramètres structurels après relaxation structurelle sont présentées dans le tableau1. Le groupe d'espace D_{6h} du graphène change en C_{3v} dans le sténane. Ceci est dû au fait les symétries six fois rotationnelles et deux symétries plan miroir sont absentes dans tous les matériaux autres que le graphène.

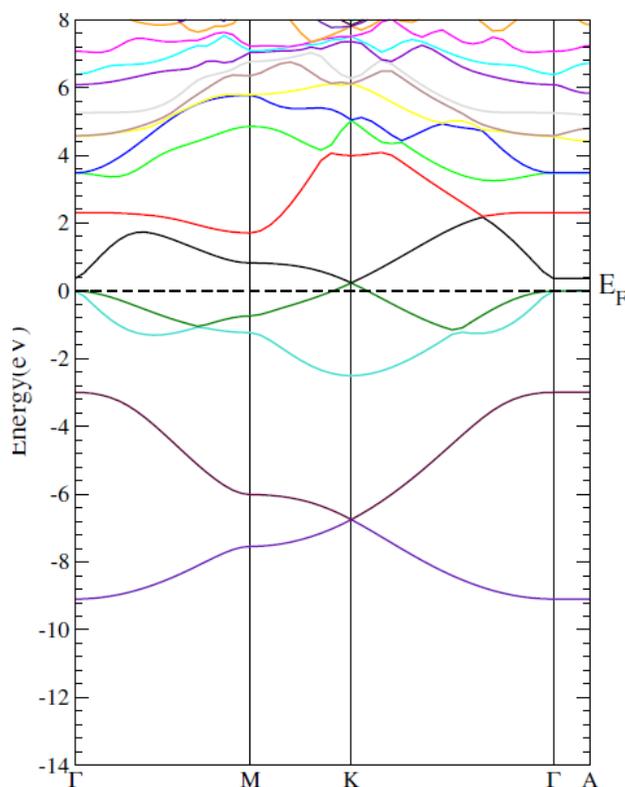


Figure 5.3 : structure de band du sténane

Due au buckling, l'hybridation dans la structure sténane a plutôt tendance à passer de la forme sp^2 à la forme sp^3 entraînant la formation d'une orbitale mixte sp^2/sp^3 . Ce dernier réduit la zone de chevauchement des orbitales p_z à son tour et augmente le taux de chevauchement entre orbitales p_z σ . Par la suite, la libre circulation des charges contrairement au cas de la structure plane du graphène est restreinte. Des structures électroniques de Dirac sont aussi observées dans le sténane. La figure 5.3 élucide que les bandes dues aux orbitales 2s, 2px et 2py dans les bandes de valence qui sont très localisées et ne contribuent pas aux propriétés électroniques. Ici, la conduction se fait principalement à travers les orbitales de type p_z . Le point de Dirac dans la courbe de dispersion de l'énergie approuve le comportement des électrons comme Fermions sans masse et explicitement ne montre pas de gap d'énergie.

Cas du Phosphorène :

La structure phosphorène quant à elle, est la forme allotropique du phosphore noir, récemment isolée expérimentalement en (2014). Il est, avec le graphène, la seule structure 2D connue pouvant être exfoliée à partir d'un cristal en volume à forme 3D. Il cristallise dans maille de forme

hexagonale. Il a la particularité de s'organiser sur 2 plans, c'est un semi-conducteur de largeur de gap égale à 1.5 eV. Il réagit plutôt avec l'eau et le dioxygène présents dans l'air. Cependant à la tendance de se dégrader en quelques heures [17, 18, 19], ce qui rend son utilisation et son étude expérimentale. Cette instabilité explique la faible quantité d'études dont il a été le sujet, notamment en comparaison des autres matériaux 2D listés ci-dessus.

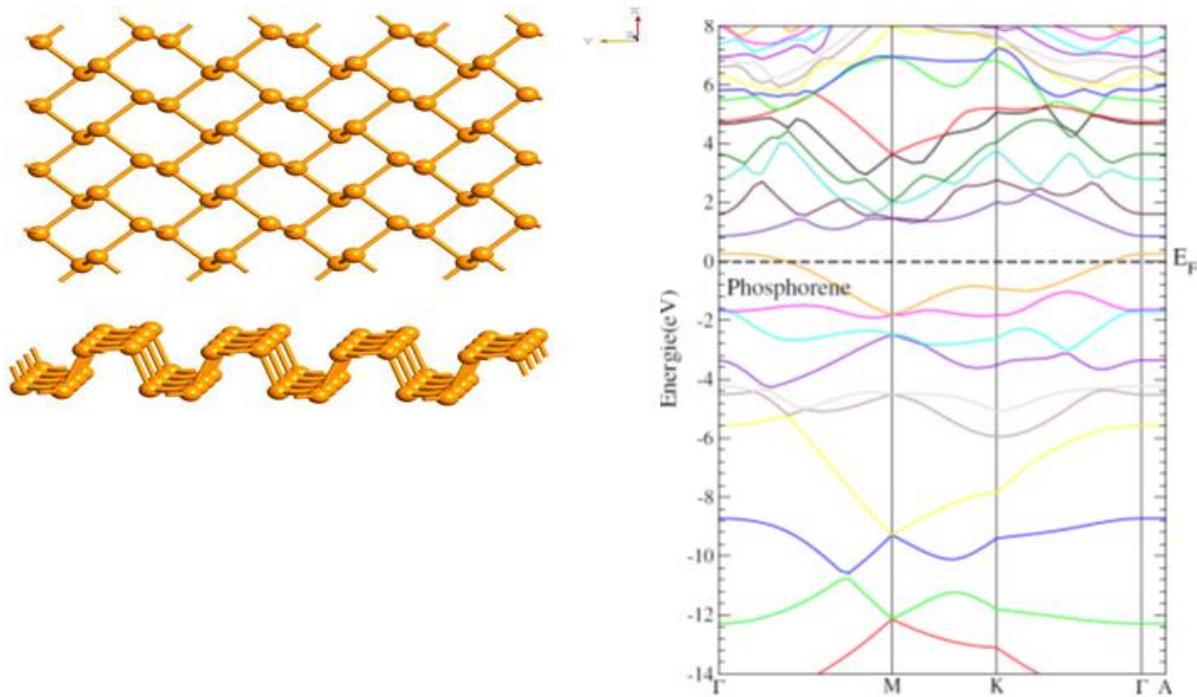


Figure 6.3 : à droite structure de bande du Phosphore et à gauche la schématisation de cette structure pour deux plans, le plan (xy) et (xz)

Nous présentons sur la figure 6.3 la structure de bande du phosphore calculée par l'approche GGA, l'est à noter que le gap est sou estimé si l'on compare avec la valeur expérimentale de 1.5eV

3.Étude de la structure bidimensionnelle du carbure de silicium sous contrainte

3.1 Structure sous contrainte

Nous avons modulée notre structure plane du carbure de silicium (2D-SiC) par une super cellule de $1 \times 8 \times 8$ le long du plan yz analogue à une structure en nid d'abeille [21]. Et afin d'éviter

l'interaction entre les couches, un vide de 10 Å est défini dans la direction normale (x). Aussi pour éviter tout effet de flambage (buckling) et simuler uniquement la déformation plane, nous appliquons une contrainte unidirectionnelle dans le plan de la structure en équilibre du 2D-SiC. Deux régimes sont étudiés : le premier le long du vecteur z du réseau dans la direction zigzag et le second le long de la direction b (armchair) (voir figures 7.3 et 8.3). Ainsi, tous les atomes constituant nôtres structures ont une liberté totale de se mouvoir lors de l'application des déformations $\varepsilon_z = \frac{c-c_0}{c_0}$ et $\varepsilon_y = \frac{b-b_0}{b_0}$, où c_0/b_0 et c/b correspondent respectivement aux valeurs de paramètre d'équilibre et du réseau sous contraintes. Ce régime de contrainte uni-axiale induit une fermeture de la bande interdite. L'application des contraintes d'extension le long de la direction en zigzag, est considérée jusqu'à 18 GPa. De même, la compression est appliquée jusqu'à 37 GPa. Pour la direction armchair, les contraintes d'extension et de compression dans les deux régimes, ont été considérées jusqu'à 20 GPa. En plus, dans tous ces cas, la contrainte est augmentée de 2 GPa.

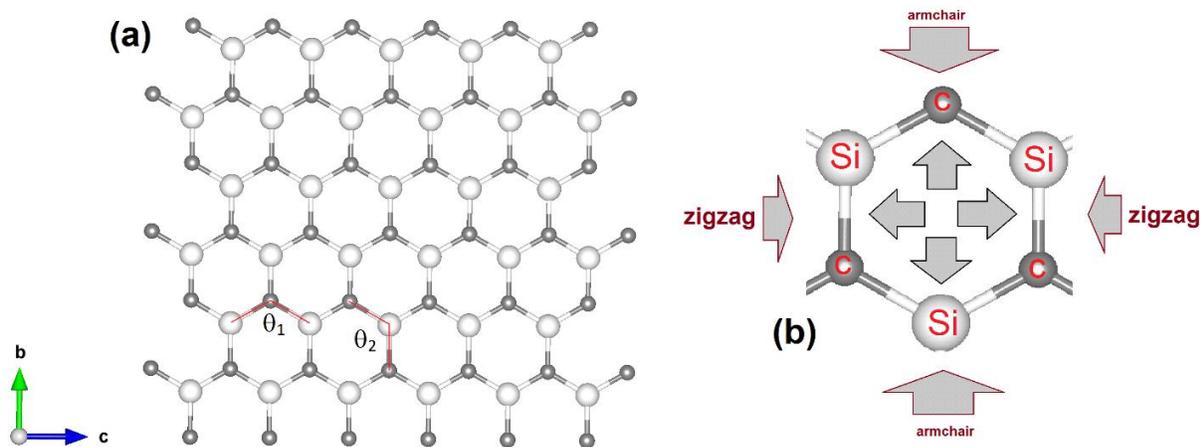


Figure 7.3 : l'ensemble de la cellule de SiC 2D utilisée dans les simulations DFT. Il y a deux angles de liaison (θ_1 et θ_2). (b) Donne l'illustration de la pression et l'effort de chargement dans les directions de fauteuil et de zigzag.

Tout d'abord, nous discutons les valeurs des paramètres structuraux de la structure 2D -SiC avec la géométrie plane. Notre configuration initiale est générée en plaçant alternativement 3 atomes de silicium et 3 atomes de carbone sur le même plan, formant ainsi la cellule à 6 atomes. La structure

détendue montre que les six atomes sont toujours coplanaires. L'optimisation du paramètre de réseau et de la distance Si-C donna respectivement des valeurs de 3.09 et 1.79 Å. Les paramètres structuraux ainsi calculés par la GGA sont en bon accord avec ceux précédemment reportés (3.07 et 1.77 Å) dans [22] et expérimentales mesurés (3.10 et 1.79 Å) dans la référence [16]. La structure optimisée est ensuite prise pour construire la super cellule de $1 \times 8 \times 8$ avec des dimensions de $10 \text{ \AA} \times 16.18 \text{ \AA} \times 15.57 \text{ \AA}$. La stabilité énergétique de la structure plane est ensuite étudiée sous compression et dilatation.

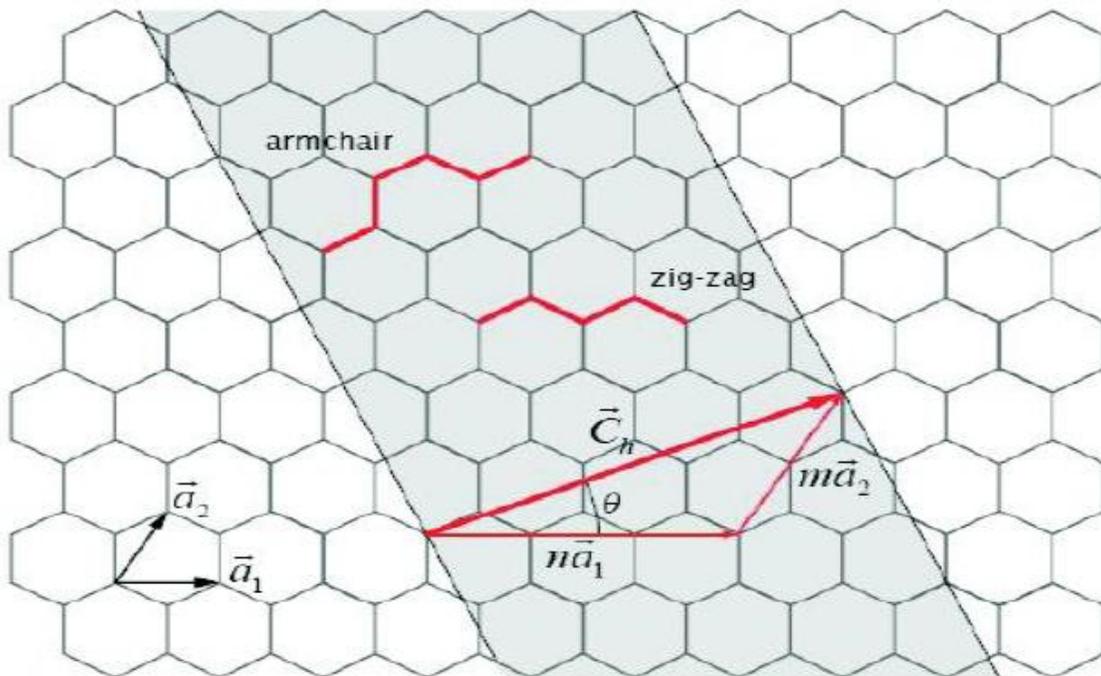


Figure 8.3: Structure d'un plan de SiC en deux dimensions .Le réseau hexagonal est décrit à partir des deux vecteurs de base a_1 et a_2 .

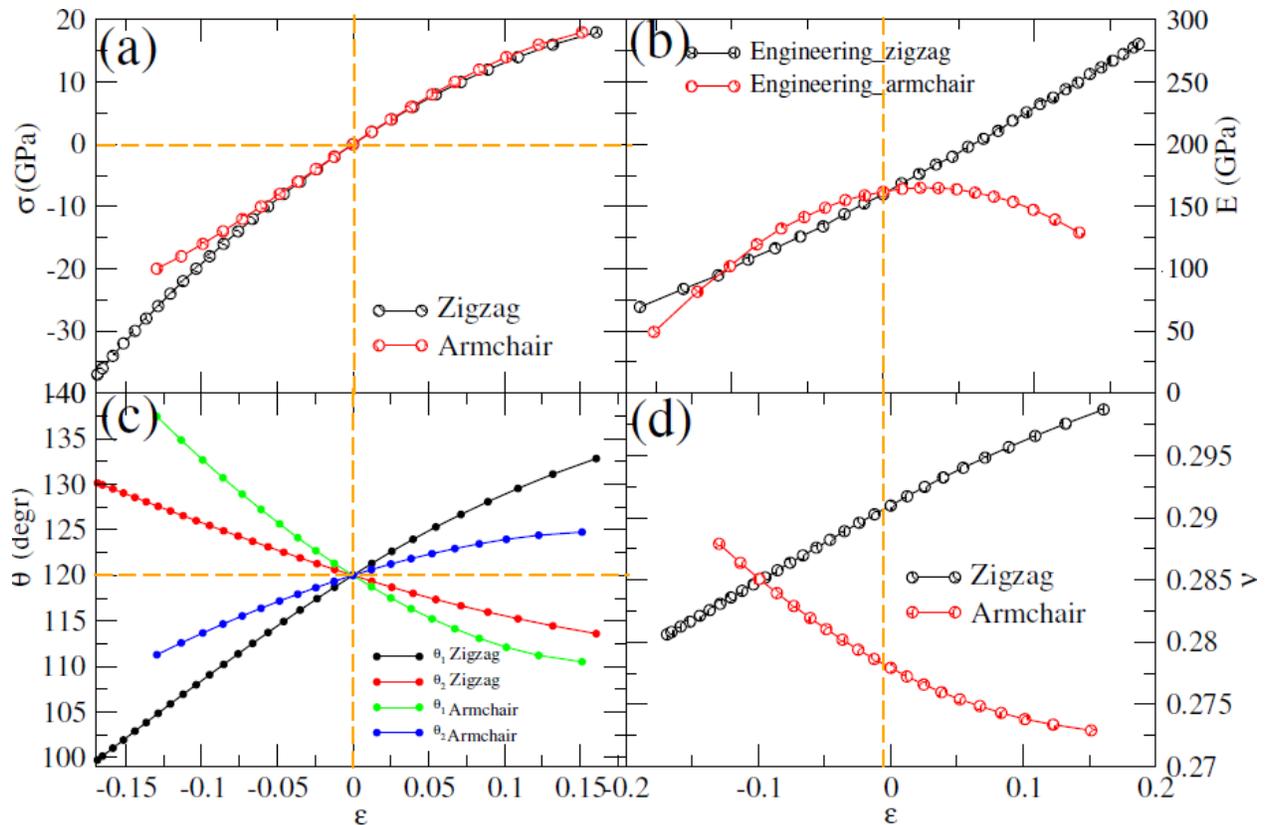


Figure 9.3 : comme indiqué dans les directions fauteuil et zigzag: (a) la courbe contrainte / déformation, (b) l'évolution du module d'Young en fonction de la contrainte d'ingénierie, (c) la (d) la ration de poisson en fonction de la déformation technique.(c) l'évolution des angles de liaison en fonction de la contrainte d'ingénierie et (d) la ration de poisson en fonction de la contrainte d'ingénierie.

Nos calculs de la structure plane donnent des résultats en bon accord avec ceux rapportés par Le et al. [16] qui ont étudié ce composé sous une application de tension uni axiale le long de la direction armchair par le biais de la dynamique moléculaire et de la méthode des éléments finis. La super cellule sous ainsi déformée conserve sa planarité, gardant son hybridation sp^2 jusqu'à des régimes de déformation dans lesquels les liaisons Si-C sont cassées sous la composante ϵ_z ou modifiés sous celle du ϵ_y (voir ci-dessous). Cependant, cette structure récupère sa stabilité une fois que la déformation disparaît, ce qui est un indicateur de sa stabilité. Cette situation est déjà rapportée dans l'étude expérimentale de [23]. Notre analyse est aussi supportée par un précédent calcul élaboré par Yu et al. Où les structures géométriques et électroniques des carbures de silicium de type graphitique ont été étudiées [24]. Aucune structure ondulée n'est produite pour une contrainte plane

et en l'absence d'effet de température. Ainsi, nous supposons que la structure planaire de notre composé est énergétiquement stable à la couche uniaxiale sélectionnée (ϵ_z et ϵ_y). Il faut mentionner que certaines structures ondulées du 2D-SiC [25] peuvent être formées. Cependant elles nécessitent une déformation uniaxiale beaucoup plus importante dans le plan. Toutefois, cette question est hors de portée dans la présente étude.

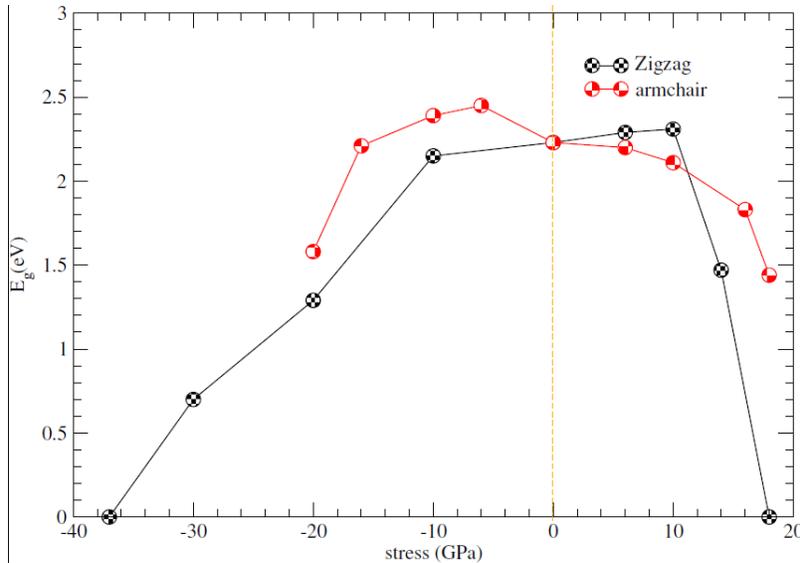


Figure 9.3: L'évolution de la bande interdite en fonction de la contrainte appliquée en traction et en compression dans les deux sens du fauteuil et du zigzag.

Pour étudier la stabilité mécanique de la structure du 2D-SiC, nous avons rassemblé dans la figure 9.3(a) les courbes contrainte--déformation dans les deux directions armchair et zigzag. Cette dernière figure montre une différence substantielle de la réponse mécanique du SiC lorsqu'il est étiré ou comprimé dans ces deux directions. Ainsi, pour élucider ce comportement, nous pouvons calculer le degré de déformation par la prédiction du coefficient de Poisson ($\nu = -(b-b_0)/(c-c_0)$) [48]. Ce rapport décrit comment le système se déforme dans les directions transversales par rapport à la direction dans laquelle la contrainte est appliquée. ν est trouvé respectivement égal à 0.295 et 0.27 dans la direction du zigzag et du armchair, ces valeurs sont en bon accord avec la valeur de $\nu = 0.29$ rapportée dans [22]. La différence dans nos valeurs de ν (zigzag et du armchair) est essentiellement due au fait que chaque direction étudiée possède une réponse différente à l'application de la contrainte. Ceci a également été observé dans le silicate hexagonal planaire sous tension [26]. En fait, la réponse du 2D-SiC à la contrainte appliquée dans la direction armchair est peu semblable à celle du zigzag. Ceci explique pourquoi le composé est capable de résister à la

cassure pour une pression allant jusqu'à 20GPa dans la direction du armchair et 37GPa dans la direction zigzag. Par conséquent, la monocouche du SiC présente des valeurs différentes du module de Young dans des différentes directions, reflétant sa nature anisotrope. D'après la figure 9.3 (b), le module de Young (E) de la monocouche du SiC est égal à 169.69 GPa (ou 167.85 GPa) dans la direction de zigzag (ou armchair). Ces résultats se concordent bien avec ceux rapportés ultérieurement par Le et al. [16] (174 GPa en zigzag et 171 en armchair). Pendant la progression de la tension, les variations du module de Young dans la direction du zigzag augmentent linéairement. D'autre part, l'augmentation a plutôt une forme parabolique dans la direction armchair (voir figure 9.3 (b)).

On a aussi remarqué que les angles de liaison sont très affectés lors de l'application de contraintes dans le plan. Donc, en raison des réponses mécaniques non symétriques du matériau à la contrainte ; deux angles de liaison sont étudiés (θ_1 et θ_2), comme le montre la figure 7.3. Au fur et à mesure que le matériau est étiré, l'angle de liaison augmente de façon monotone avec l'augmentation de la tension en zigzag et diminue avec l'augmentation de la contrainte en armchair. Alors que l'angle θ_2 montre un comportement complètement opposé (voir figure 9.3c). Lorsque le régime de traction est imposé, les angles des liaisons montrent une réponse non linéaire à l'application de la contrainte. Tandis que dans le régime de compression, un régime plutôt linéaire est montré. Ici, θ_2 augmente de façon monotone avec l'augmentation de la déformation en zigzag et diminue avec l'augmentation de la contrainte en armchair. Alors que l'angle θ_1 montre un comportement complètement opposé. Lorsque la compression est appliquée dans la direction en zigzag jusqu'à $\varepsilon_z = -16,8\%$, l'angle de liaison θ_1 passe de 120° à $99,71^\circ$. Or, dans le régime de dilatation, à $\varepsilon_z = 16\%$, θ_1 s'ouvre jusqu'à un angle de $132,8^\circ$. D'autre part, la contrainte en armchair change θ_1 de 120° à $137,44^\circ$ à $\varepsilon_y = -12,9\%$ et à $110,50^\circ$ pour $\varepsilon_y = -15,12\%$. Cependant, l'application de la déformation en zigzag conduit à un angle $\theta_2 = 130,14^\circ$ pour $\varepsilon_z = -16,8\%$ et $\theta_2 = 113,59^\circ$ pour $\varepsilon_z = 16\%$.

3.2 Propriétés électronique sous contraintes

Dans un second temps, nous avons analysé l'effet des contraintes sur les propriétés électroniques de la structure plane 2D-SiC. À cette fin, les structures de bandes électroniques ont été calculées le long de la trajectoire **K- Γ -M** dans la première zone de Brouillon. La structure de bande de la structure vierge (figure 10.3) montre une bande interdite indirecte de 2.23 eV. Nos prévisions

concordent bien avec les données expérimentales précédemment rapportées, de 2.50 eV dans la référence [24] et de 2.60 eV dans [27, 28, 29]. Il est à noter que notre calcul sous-estime la valeur de la largeur de la bande interdite (E_g) d'environ 0.27 eV. Ceci est raisonnable, étant donné le niveau de théorie employé, c'est-à-dire la DFT avec la GGA. Des sous-estimations analogues du gap ont été rapportées dans la littérature par rapport à d'autres composés semi-conducteurs [30]. Nous avons aussi calculé l'écart de bande d'énergie sous application de contraintes de traction et de compression en zigzag et en armchair. La figure 3 montre que seule la pression en zigzag donne une métallisation.

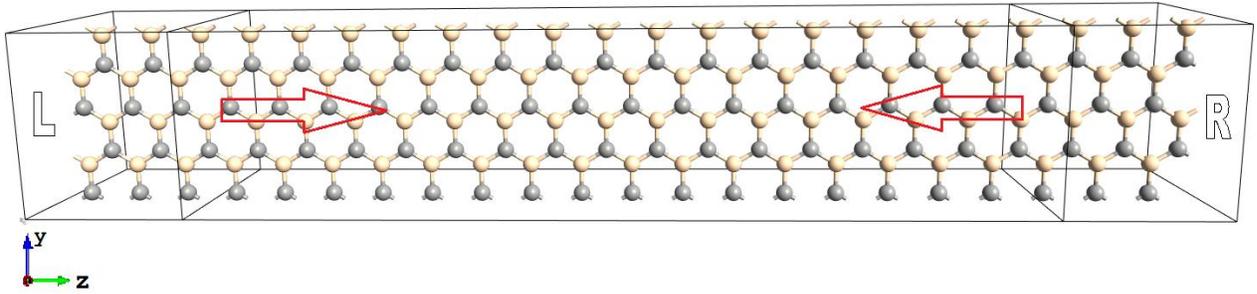


Figure 10.3 : Figure : Structure atomique optimisée de la nanofeuille SiC 2D vue dans un dispositif à deux sondes. La région centrale est la région de diffusion et les parties restantes sont les électrodes semi-infinies gauches (L) et droites (R).

3.3 Transport quantique sous contraintes

Dans cette section, nous étudions le transport électronique le long de la monocouche SiC sous effet de compression uni-axiale ϵ_z . Donc pour assurer ce transport en place notre composé entre deux cathodes, comme le montre la figure (10.3). Ici la région de diffusion centrale du matériau est entre électrodes semi-infinis. Les deux électrodes et la région centrale sont constituées de la monocouche SiC. Une jonction p-n peut être construite en combinant des matériaux de type p et de type n dans une orientation latérale. Les électrodes gauche (L) et droite (R) peuvent être dopées en modifiant le nombre total d'électrons $N = \sum_i^N \rho_i^{atom}(r) dr$ où la densité du i -ème atome est redimensionnée par un facteur de $c_i = (\tilde{n}_i + n_i/n_i)$ avec ($\tilde{\rho}_i^{atom}(r) = c_i \rho_i^{atom}(r)$). Ici, les n_i et \tilde{n}_i sont respectivement, le nombre d'électrons de valence et la charge de compensation supplémentaire associée au i -ième atome isolé. Les valeurs individuelles de \tilde{n}_i , et les coefficients individuels c_i peuvent être arbitrairement fixés d'un atome à l'autre. La géométrie du système de transport à deux sondes a été optimisée en minimisant les forces agissant sur tous les atomes dans la région de diffusion et les

électrodes. Pour construire cela, les électrodes restant fixes, les atomes dans les électrodes gauche et droite n'ont pas été autorisés à se déplacer pendant l'optimisation géométrique. Cette condition a été importée sur le système pour favoriser l'utilisation de réglages périodiques pour les électrodes semi-infinies [23]. La conductance quantique calculée G_e et la transmission G/G_0 à la tension de polarisation de 0 volt sont représentées sur les figures 12.3a et 12.3b. Le canal de transmission nul proche du niveau d'énergie de Fermi est en accord avec la bande interdite observée dans la monochouche du SiC vierge (figure 11.3a).

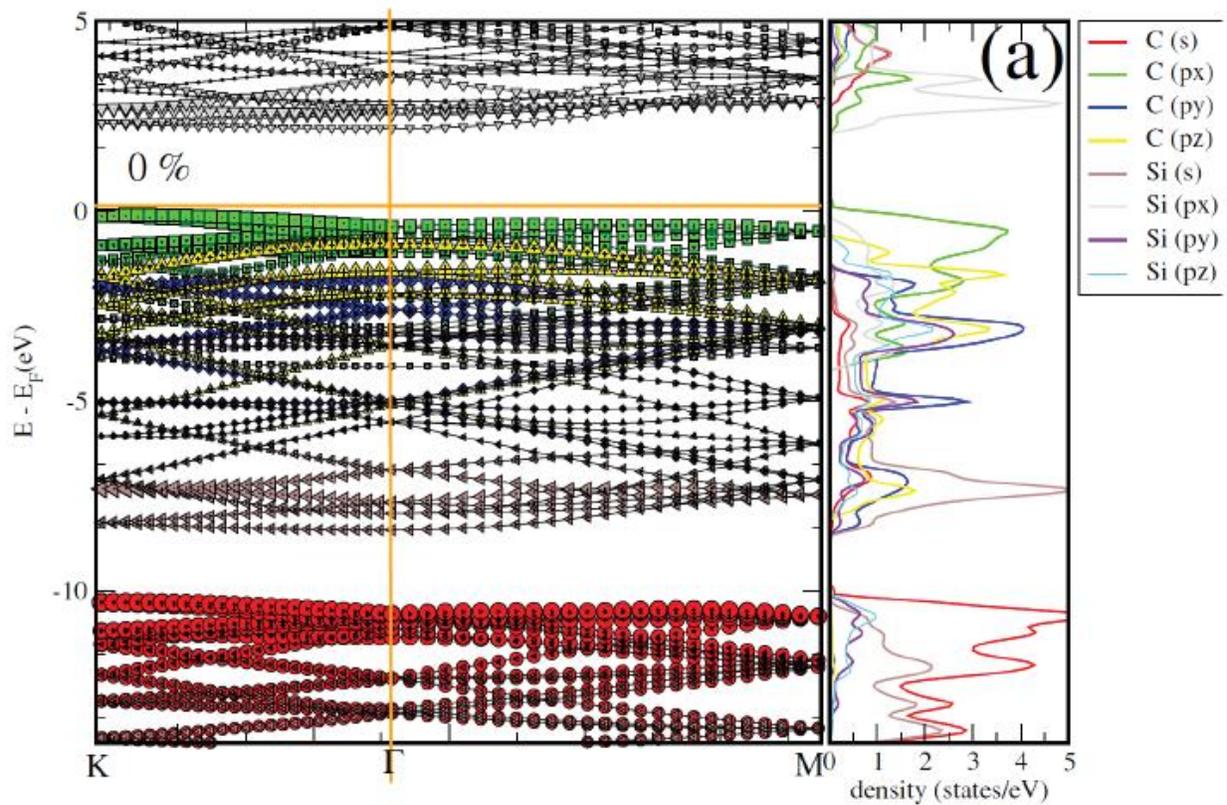


Figure 11.3 : Structure de bande et DOS partielle de 2D SiC. Les bandes sont colorées pour distinguer les contributions orbitales des atomes de silicium et de carbone. (Pour l'interprétation des références à la couleur dans cette légende de la figure, le lecteur est renvoyé à la version web de cet article.)

Le canal de transmission est ouvert (un gap) en raison des états de la région centrale de diffusion qui s'étend entre la bande de valence (VB) de l'électrode gauche et la bande de conduction (CB) de l'électrode droite. Il est à noter que la compression axiale favorise les changements dans le spectre

de transmission (figure 12.3b). Sous ce régime, le chevauchement entre l'orbitale de Si et C aboutit au déplacement de la bande de valence vers celle de la bande de conduction. En raison du tunnel quantique entre les électrons, la zone d'énergie diminue en augmentant ε_z . Il est intéressant de noter que la transmission augmente par effet de compression uni-axiale donnant suite à une évolution des pics à 3.5 eV et -2 eV (figure 12.3a). Ces pics sont associés à l'hybridation des états formant les orbitaux HOMO et LUMO, jouant le rôle de canaux entre les deux électrodes R et L. Cependant, l'application de ε_z change radicalement le spectre de transmission (G/G_0). Ici, la présence de la pression non-hydro-statique modifie le chevauchement entre l'orbitale Si et l'orbitale C, qui se traduit par un mouvement d'énergie des bandes de valence vers ceux de la conduction. De plus, en raison d'un effet tunnel quantique [23] entre les électrodes, la zone d'énergie au voisinage du niveau de Fermie E_F diminue avec l'augmentation de ε_z . Un autre résultat notable est l'augmentation de la conductance G_e (voir figure 12.3 (b)).

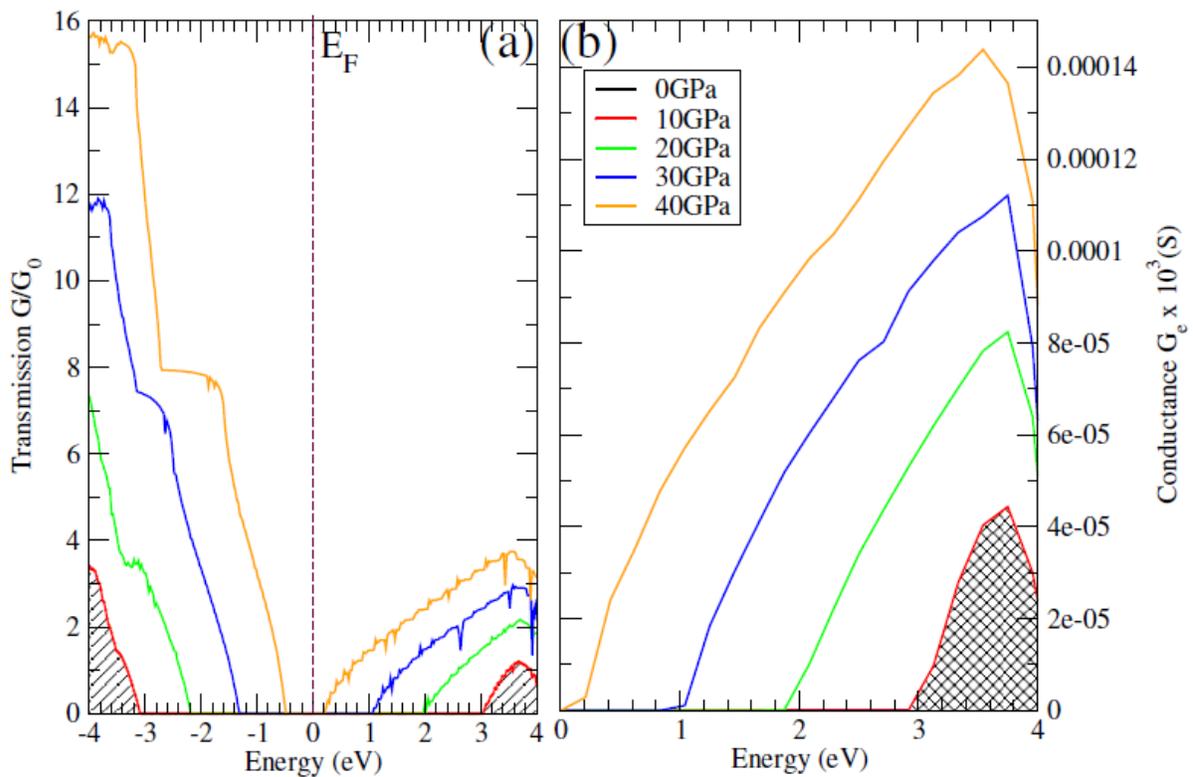


Figure 12.3 : Bi-polarisation (a) transmission G/G_0 et (b) conductance G_e en fonction de la déformation appliquée $\sigma_{\langle 001 \rangle}$. La conductance a été mesurée dans les unités de $2e^2/h$.

D'autre part, en augmentant la tension de polarisation (V), l'intensité de la fonction de transmission augmente et la courbe I-V de la jonction p-n peut être calculée (voir les figures 13.3 (a) et 13.3(b)). Le courant obtenu en utilisant la courbe de transmission à une polarisation égale à 1.2 Volt pour différents ϵ_z appliqués est donnée dans le tableau 2.3. On peut voir qu'avec une compression uni-axiale appliquée le long de l'axe z, le courant fait un saut exponentiel de 0 à $\sim 5 \mu\text{A}$. Ceci conduit à conclure que l'application de ϵ_z augmente significativement les performances du dispositif plan 2D-SiC.

$\sigma_{\langle 001 \rangle}$ (GPa)	I (μA)	E_g (eV)
0	4.555×10^{-7}	2.23
10	2.218×10^{-6}	2.15
20	1.193×10^{-4}	1.22
30	1.392×10^{-1}	0.64
40	$4.091 \times 10^{+0}$	0.00

Tableau 2.3 Variation du gap d'énergie (E_g), et du courant (I) en fonction de la compression uni-axiale ($\sigma_{\langle 001 \rangle}$)

La schématisation des caractéristiques calculées (I) et de tension (V) du 2D -SiC pour $\epsilon_z = -16,8\%$ est montré sur la figure 13.3 (a), et suggère une conduction de type métal dans la plage de biais faible de 0 jusqu'au seuil de 0.4Volt. En augmentant le biais externe jusqu'à 1.2 Volt, une augmentation significative du courant se produit. Cela peut être interprété en termes de fonction de transmission, qui caractérise les caractéristiques de transport intrinsèques du système. La figure 14.3 montre clairement l'amélioration de la transmission entre les tunnels d'électrodes pour $\epsilon_z = -16,8\% = \sigma_{\langle 001 \rangle} = 40\text{GPa}$. En effet, chaque pic de transmission dans la fenêtre de polarisation correspond à une certaine orbitale, y compris les orbitales intrinsèques du matériau et les orbitales hybrides. Un biais plus élevé induit un décalage des états orbitaux résultant en un courant plus élevé en raison du pic de transmission le plus proche des états HOMO et LUMO. À notre connaissance, les propriétés de transport sous compression uni-axiale de la monocouche 2D-SiC n'ont pas été rapportées jusqu'à présent. Par conséquent, ce travail peut couvrir le manque de

données sur ces dispositifs importants et fournir des données de référence pour d'autres calculs expérimentaux et numériques. Nos données ouvrent une nouvelle course à l'atomique des semi-conducteur 2D modélisés par les atomes du silicium et le carbone facilement trouver sur terre et pourrait piloter la fabrication de dispositifs utiles adaptables avec l'électronique de silicium actuelle.

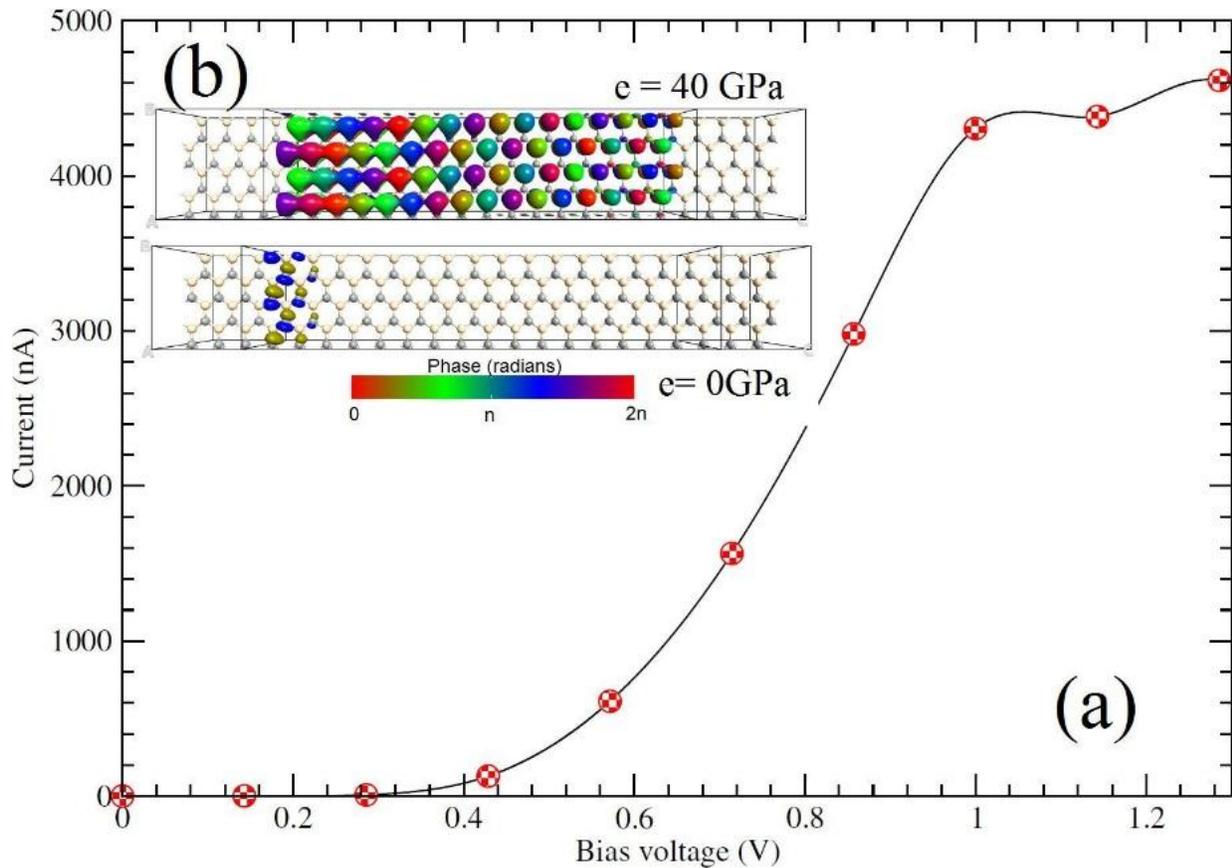


Figure .13.3 (a) représentation de la Courbe I-V pour le dispositif à base de nano-couche SiC 2D. le inset, donne (b) la courbe de l'isosurface des fonctions d'onde aux énergies correspondant aux pics de transmission d'orbitale moléculaires les plus occupés et des pics de transmission des orbitales moléculaires inoccupés les plus bas, au point Γ .

Références

- [1] P. Hohenberg, W. Kohn, *Phys. Rev.* **136** (1964) 864,
- [2] J. M Soler, E. Artacho, J.D. Gale, A. Garcia, J. Junquera, P. Ordejon, D. Sanchez-Portal, *J. Phys. - Conden. Matter* , **14** (2002) 2779
- [3] N. Troullier, J.L. Martins, *Phys. Rev. B* **43** (1991) 1993–2006,.
- [4] J. Junquera, O. Paz, D. Sanchez-Portal, E. Artacho, *Phys. Rev. B* **64** (2001) 235111
- [5] J.P. Perdew, K. Burke, M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77** (1996) 3865.
- [6] H.J. Monkhorst, J.D. Pack, *Phys. Rev. B* **13** (1976) 5188.
- [7] S. Grimme, *J. Comput. Chem.* **27** (2006) 1799
- [8] S. Das Sarma, S. Adam, E. H. Hwang, and E. Rossi, *Rev. Mod. Phys.*, **83** (2011) 470.
- [9] A. Kara, H. Enriquez, A. P. Seitsonen, L. C. Lew Yan Voon, S. Vizzini, B. Aufray, H. Oughaddou, *Surface Science Reports* **67** (2012) 1
- [10] A. Nijamudheen, R. Bhattacharjee, S. Choudhury, A. Datta, *J. Phys. Chem. C*, **119** (2015) 3802.
- [11] Y. Wang, Z. Ni, Q. Liu, R. Quhe, J. Zheng, M. Ye, D. Yu, J. Shi, J. Yang, J. Li, J. Lu, *Adv. Funct. Mater.*, **25** (2015) 68
- [12] Y. Cai, C.-P. Chuu, C. M. Wei, M. Y. Chou *Phys. Rev. B* **1** (2013) 88.
- [13] F. Peymanirad, M. Neek-Amal, J. Beheshtian, F. M. Peeters, *Phys. Rev. B*, **92** (2015) 1053.
- [14] N. Gao, J. C. Li, Q. Jiang, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **16** (2014) 11673.
- [15] X. Li, S. Wu, S. Zhou, Z. Zhu, *Nanoscale Res Lett* **9** (2014) 110.
- [16] J. Zhu, U. Schwingenschlögl, *2D Mater.* **2** (2015) 045004.
- [17] J. D. Wood, S. A. Wells, D. Jariwala, K.-S. Chen, E. Cho, V. K. Sangwan, X. Liu, L. J. Lauhon, T. J. Marks, M. C. Hersam, *Nano Letters*, **14** (2014) 6964
- [18] J.-S. Kim, Y. Liu, W. Zhu, S. Kim, D. Wu, L. Tao, A. Dodabalapur, K. Lai, D. Akinwande, *Scientific Reports* **5** (2015) 8989
- [19] Z. Guo, H. Zhang, S. Lu, Z. Wang, S. Tang, J. Shao, Z. Sun, H. Xie, H. Wang, X.-F. Yu, P. K. Chu, *Adv. Funct. Mater.* **25** (2015) 7100.
- [21] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, A. A. Firsov, Electric field effect in atomically thin carbon films. *Science*, **306** (2004) 669.
- [22] H. Sahin, S. Cahangirov, M. Topsakal, E. Bekaroglu, E. Akturk, R. T. Senger, S. Ciraci, *Phys. Rev. B* **80** (2009) 1554.
- [23] T. Susi, V. Skakalova, A. Mittelberger, P. Kotrusz, M. Hulman, T. J. Pennycook, C. Mangler, J. Kotakoski, J. C. Meyer, *Sci. Rep.* **7** (2017) 4399.
- [24] M. Yu, C. S. Jayanthi, S. Y. Wu, *Phys. Rev. B* **82** (2010) 075407.

- [25] D. Singh, S. K. Gupta, I. Lukacevic, Y. Sonvane, *RSC Adv.* **6** (2016) 8014.
- [26] M. Q. Le, D. T. Nguyen, *Mater. Sci. Eng.* **615** (2014) 488.
- [27] I. J. Wu, G. Y. Guo, *Phys. Rev. B* **76** (2007) 035343.
- [28] Z. G. Wang, X. T. Zu, H. Y. Xiao, F. Gao, W. J. Weber, *Appl. Phys. Lett.* **92** (2008) 183116.
- [29] A. Gali, *Phys. Rev. B* **73** (2006) 5415.
- [30] A. Morales-Garcia, R. Valero, F.; Illas. *J. Phys. Chem. C* **121** (2017) 1886.

Conclusion

Dans ce mémoire nous faisons une étude systématique de la structure planaire SiC-2D en nid d'abeilles. Pour modifier les propriétés électroniques de notre composé, deux régimes ont été étudiés, le premier sans application de déformations et le deuxième avec deux contraintes unidirectionnels. Le cadre des calculs entre dans celui de l'approche du premier principe dans le contexte de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT). La simulation atomistique a été menée par le code *siesta*. L'échange et les corrélations ont été traités dans l'approximation de gradient généralisée (GGA), paramétré par la fonction Perdew Burke Ernzerhof (PBE). La structure étudiée comporté 62 atomes réarrangés dans une super cellule $1 \times 8 \times 8$. Après avoir présenté quelques calculs sur des structures 2D usuelles avec et sans plan ondulés. Nous nous sommes intéressés à l'étude du système SiC-2D. L'optimisation structurelle et le calcul de la structure de band sont en très bon accord avec les valeurs expérimentales existantes dans la littérature. Lors de l'application des contraintes zigzag et armchair, nous avons constaté que la déformation du matériau est anisotrope présentant une déformation élastique non linéaire dans le régime de chargement. Le composé 2D SiC montre une bande interdite indirecte qui se ferme à une contrainte de -16,87% le long de la direction zigzag. Notre analyse actuelle de liaison électronique structurelle conclut qu'on peut surveiller la bande interdite par un régime de déformation unidirectionnel. Un autre point intéressant abordé dans ce travail était l'étude des propriétés de transport du matériau sous compression uniaxiale. Selon nos résultats, la modification de la bande interdite et de la décomposition orbitale améliore considérablement les performances du dispositif. Nous croyons que ce travail peut motiver d'autres investigations expérimentales pour concevoir des dispositifs électroniques contraints avec d'excellentes propriétés de transport. Cette étude donna aussi des informations réalisables pour les expérimentateurs ouvrant des voies appropriées sur l'ingénierie de bande interdite de matériaux semi-conducteurs 2D avec des applications dans la nouvelle génération de dispositifs électroniques.

Plusieurs travaux nous tiennent à cœur pour clôturer ou prolonger ce mémoire. Le plus immédiat les structures 2D de type van der Waals. En fait, notre requête pourra être raffinée si on s'intéresse à l'effet des contraintes sur des structures hétérostructures bidimensionnelles. Cela pourra donner des résultats intéressants susceptibles de modifier et améliorer les propriétés photovoltaïques de ces structures.

Résumé

L'utilisant de la théorie de la densité fonctionnelle et les calculs de transport quantique basés sur le formalisme des fonctions de Green, nous a permis d'étudier l'effet des déformations uni-axiale sur les propriétés structurales, électroniques et de transport sur une structure 2D SiC en nid d'abeille. Nos résultats indiquent que cette couche montre une transition électronique d'un comportement semi-conducteur à métallique et cela pour une contrainte égale à -16,87% dans la direction du zigzag. Cette étude fournit une description compacte et intuitive du comportement des interactions orbitales liantes et non-liantes en réponse à l'application de la contrainte uni-axiale. Ces résultats sont soutenus par une analyse approfondie de l'influence de la charge et de la déformation sous pression dans les deux directions zigzag armchair. En fait, la modulation électronique affecte fortement les interactions stabilisatrices au centre de la structure en nid d'abeille. De plus, nous avons trouvé que l'application de la compression uni-axiale pouvait également contribuer à augmenter d'une façon considérable le courant lorsque le biais est appliqué.

Abstract

Using density-functional theory and quantum transport calculations based on no-equilibrium Green's function formalism, we study the uni-axial strain effect on structural, electronic and transport properties of a 2D SiC honeycomb structure. Our results indicate that this layer shows an electronic transition from semiconductor to metal behavior at zigzag constraint equal to -16,87%. This study provides compact and intuitive description of the behavior of both orbital and nonbonding interactions contribution in response to the applied uni-axial stress. These results are supported by a deep analysis of the influence of both load and pressure strain in the zigzag and armchair direction. In fact, the electronic modulation affects strongly the stabilizing interactions in the center of the honeycomb structure. In addition, we found that the application of uni-axial compression could also contribute to greatly increasing the current when the bias is applied.

ملخص باستخدام نظرية الوظيفية لكثافة وحسابات النقل الكمي استناداً إلى الدالة green، تمكنا من دراسة تأثير لتشوهات احادية المحور على الخصائص الهيكلية والإلكترونية والنقل على هيكل 2D-SiC نتائجا على شكل عش النحل. إلى تشير أن هذه الطبقة تظهر انتقالاً إلكترونياً من (SC) الى معدن و هذا يتوافق لضغط يساوي 16.87%- في اتجاه متعرج. توفر هذه الدراسة وصفاً مضغوطاً وبديهيًا لسلوك التفاعلات المدارية الخطية لاو الخطية استجابةً ضغطتطبيق الأحادي المحوري. ويدعم هذه النتائج من خلال تحليل معمق لكترونيالتأثير وتشوه الناتج عن الضغط في كلا الاتجاهين (armchair, zigzag). في الواقع لإلكتروني التشكيل يؤثر بشدة على تفاعلات التثبيتية في مركز الهيكل على شكل عش النحل علاوة على، ذلك وجدنا أن تطبيق الضغط حادياً المحوري يمكن أن يسهم أيضاً في زيادة كبيرة في لتيار كهربائي عند تطبيق توتر كهربائي.