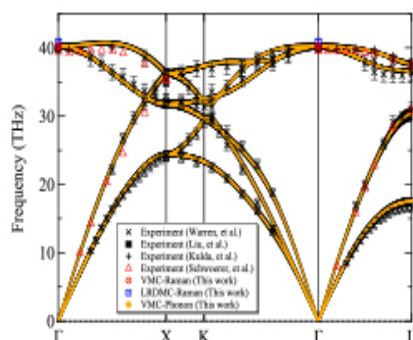




Les phonons les plus précis jamais calculés... dans le diamant !

Le diamant joue un rôle fondamental en physique des hautes pressions puisque sa dureté exceptionnelle en fait l'élément central des expériences hautes pressions. Il est aussi un système clé pour développer des nouvelles méthodes théoriques pour le calcul des phonons. Sa simplicité – sa maille élémentaire contient deux atomes de carbone – et le nombre important de mesures expérimentales reportées de ses vibrations réticulaires – par sondes à neutrons, par diffusion Raman et de synchrotron – ont fait du diamant un des matériaux de référence pour valider les modélisations des vibrations du réseau. Cependant, un désaccord de l'ordre de 2 THz existait jusqu'à présent entre les expériences et les meilleures estimations théoriques. En améliorant la précision du calcul des phonons du diamant par une technique dite de Monte Carlo quantique (QMC), cet écart vient d'être comblé grâce au travail de chercheurs de l'équipe Théorie quantique des matériaux (TQM) de l'IMPMC et désormais les calculs sont en adéquation avec les données expérimentales.

Une des premières applications de la théorie la plus utilisée et jusqu'à présent la plus précise pour les calculs des phonons, c'est-à-dire la density functional perturbation theory (DFPT), a été faite sur le diamant en 1993. Si les prédictions de la DFPT ont été remarquables pour ce système, cela n'était cependant pas suffisant pour expliquer complètement les résultats expérimentaux. Cette difficulté semble désormais résolue grâce à une collaboration entre l'équipe TQM, le JAIST au Japon et la SISSA en Italie. Dans ce travail, les chercheurs ont calculé les forces ioniques par QMC, en montrant que le désaccord initial peut être finalement résolu par la prise en compte à la fois des effets anharmoniques – via une dynamique moléculaire par intégrales de chemin – et des corrélations électroniques – décrites correctement par le QMC (voir figure).



Figure

Phonons calculés par QMC dans le diamant après prises en compte des effets anharmoniques. Un accord complet sur toute la zone de Brillouin entre théorie et expérience est ainsi finalement observé !

La percée accomplie dans ce travail est de comprendre comment on peut calculer des forces ioniques par QMC avec une marge d'erreur réduite de deux ordres de grandeur, ce qui correspond à une accélération du temps de calcul de 4 ordres de grandeur, tout en gardant une précision jamais atteinte auparavant dans la détermination des vibrations réticulaires.

Cette nouvelle démarche ouvre la possibilité de calculer les phonons sur des systèmes plus complexes et plus corrélés, où la méthode standard de la DFPT a montré ses limites. Grâce au QMC, on pourrait mieux saisir les relations subtiles entre corrélation électronique, vibrations du réseau et anharmonicité, qui sont à la base de phénomènes remarquables et pas encore bien compris tels que la supraconductivité à haute température critique.

Ces résultats ont été publiés dans le journal *Physical Review B Rapid Communications* 103, L121110 (2021), dans un article qui est proposé par l'éditeur comme suggestion.

Référence

"Atomic forces by quantum Monte Carlo: Application to phonon dispersion calculations"
Kousuke Nakano, **Tommaso Morresi**, **Michele Casula**, Ryo Maezono, and Sandro Sorella
Phys. Rev. B 103, L121110 – Published 15 March 2021
<https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.103.L121110>

Contact

Michele Casula : michele.casula@sorbonne-universite.fr