

Stockage réinscriptible de données par changement de phase : étude des trois phases du matériau prototype GeTe

Les supports optiques de stockage réinscriptibles (DVD, Blu-ray) utilisent la réversibilité entre deux phases d'un matériau et leur stabilité sous différentes conditions thermodynamiques. Dans le cas du matériau prototype GeTe (Tellurure de germanium) il s'agit d'une transition à pression ambiante, provoquée par la température, entre une phase métastable cubique et une phase amorphe. Pour mieux comprendre le diagramme de phases de GeTe, des membres de l'IMPIC ont mesuré un cristal de GeTe sous pression avec la spectroscopie Raman (diffusion de la lumière). À partir de calculs ab initio de la fonctionnelle de la densité (DFT), ils ont identifié trois phases jusqu'à 57 GPa, à savoir les phases rhomboédrique puis cubique, et enfin une phase orthorhombique à haute pression.

Ces trois phases sont clairement mises en évidence sur la figure où l'on distingue trois régions à partir des formes des pics et de leur évolution avec la pression. A basse pression, on voit deux pics Raman, larges, correspondant à la phase rhomboédrique. Ces deux pics, correspondant aux modes de vibration de symétrie A1 (longitudinal) et E (transverse), s'élargissent et s'amollissent avec la pression. Ces deux caractéristiques sont la signature de la nature anharmonique des phonons optiques de GeTe. Au-delà de 4 GPa, les pics Raman disparaissent. Cette absence est compatible avec la symétrie cubique de la structure NaCl pour laquelle aucun mode Raman actif n'existe. Ainsi mettons-nous en évidence le rôle important de l'anharmonicité dans la transformation de la phase rhomboédrique vers la phase cubique.

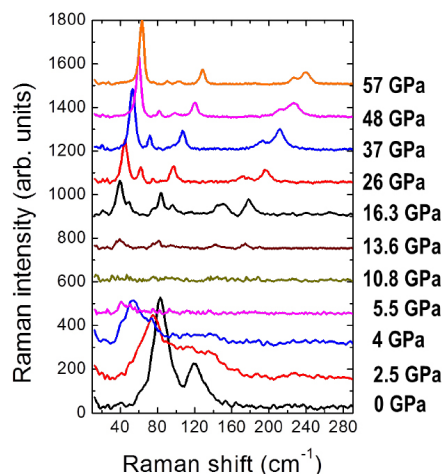


Figure 1
Spectres Raman de GeTe jusqu'à 57 GPa. Trois régions sont identifiables. La première aux faibles pressions se caractérise par l'amollissement et la largeur des pics Raman. La deuxième région se distingue par leur absence. La troisième région voit réapparaître des pics Raman fins qui se durcissent avec la pression. Ces trois régions correspondent chacune à une phase cristallographique.

Au-delà de 15 GPa, on observe de nouveaux pics Raman qui durcissent avec la pression, indiquant l'apparition d'une nouvelle phase. Des mesures de diffraction à haute pression menées auparavant par d'autres groupes ont montré une certaine incohérence, en proposant plusieurs structures avec des structures orthorhombique, cubique CsCl ou monoclinique, voire une éventuelle coexistence de ces phases. Nous avons donc calculé la variation des modes Raman avec la pression pour les structures les plus pertinentes. Pour la phase à haute pression, nous observons expérimentalement trois modes à basse énergie et trois modes à haute énergie. Les calculs confirment que seule la structure orthorhombique (groupe d'espace Cnmn ou Pnma, très proches en énergie) est compatible avec cette observation.

Pour conclure, nous avons mis en évidence le rôle prépondérant de l'anharmonicité dans la transition de la phase rhomboédrique vers la phase cubique à basse pression et nous avons établi le diagramme de phase en pression en montrant qu'à haute pression la structure est orthorhombique. Des travaux récents suggèrent que le GeTe, avec d'autres matériaux semblables, possède des liaisons chimiques à mi-chemin entre les liaisons ioniques et covalents. Les transitions de phases et le lien entre structure et propriétés électroniques sont essentielles pour mettre en correspondance la présence de telles liaisons et l'importance du matériau pour les applications de type stockage de données ou thermoélectricité. Dans ce but, notre étude s'étendra à d'autres matériaux de cette famille des semi-conducteurs IV-VI.

Référence

"Pressure induced phase transitions in Germanium Telluride: Raman signatures of anharmonicity and oxidation"

Amit Pawbake, Christophe Bellin, Lorenzo Paulatto, Keevin Beneut, Chandrabhas Narayana, Johan Biscaras, Dattatrey Late and Abhay Shukla
Physical Review Letters 122, 145701 (2019)

Contacts

christophe.bellin@sorbonne-universite.fr
abhay.shukla@sorbonne-universite.fr
lorenzo.paulatto@sorbonne-universite.fr