Zeitschrift: Helvetica Physica Acta

Band: 33 (1960)

Heft: VI-VII

Artikel: Etude expérimentale du polaron : mesure de la mobilité électronique dans AgCl et AgBr

Autor: Chollet, L. / Rossel, J.

DOI: https://doi.org/10.5169/seals-113087

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Mehr erfahren

Conditions d'utilisation

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. En savoir plus

Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. Find out more

Download PDF: 07.01.2026

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

Etude expérimentale du polaron (Mesure de la mobilité électronique dans AgCl et AgBr)

par **L. Chollet*)** et **J. Rossel**
Institut de Physique, Université de Neuchâtel

Summary. Electron mobility in the polar crystals AgCl and AgBr has been investigated using a pulsed X rays technique in a range of temperatures where comparison with existing polaron theories is possible.

Special attention was given to the measurement of true microscopic mobility by selecting crystals where trapping and multiple trapping effects are negligeable.

The main results can be summarized as follows:

AgBr has better counting properties than AgCl but in both cases surface effects play an important role and too strong irradiation can stop the sensitivity.

In no case could hole motion be observed.

The caracteristic exponential law for $\mu(T)$ given by optical mode scattering has been confirmed and the corresponding experimental Debye temperature is in good accord with the predicted value.

The reduction of mobility observed below $\sim 100°$ K can be accounted for by ionised impurity collisions but is not easily compatible with a law of the type $\mu \sim T^{+3/2}$.

Values for the polaron mass have been derived using both the Lee-Low-Pines and the Feynman-Schultz theories.

I. Interaction électron-réseau polaire; polaron

L'étude théorique de l'interaction d'un électron de conduction avec le réseau d'un cristal polaire a été développée par plusieurs auteurs. Nous citerons ici les articles de ALLCOCK[1]) et de HAKEN[2]) qui constituent un excellent résumé et donnent une vue d'ensemble du problème.

Dans un cristal ionique, l'électron de conduction est soumis à différentes forces de nature électrostatique. Les plus importantes de celles-ci dérivent du potentiel périodique du cristal parfait considéré comme rigide, et sont prises en considération dans la théorie de la masse effective. Les autres forces sont dues aux vibrations du réseau, ces dernières étant induites thermiquement ou directement par le champ coulombien de l'électron. Les vibrations du réseau ionique se divisent en deux branches dites optique et acoustique. La branche optique correspond aux vibrations qui déplacent les ions positifs et négatifs les uns par rapport aux autres. De telles vibrations engendrent des ondes de polarisation. La branche acoustique représente essentiellement les déplacements d'en-

*) Maintenant au Laboratoire Suisse de recherches horlogères, Neuchâtel.

semble du cristal, de sorte que la polarisation qui lui est associée est très faible. Celle-ci n'entrera que d'une façon très secondaire dans notre problème.

Le champ de polarisation associé aux vibrations optiques du réseau est caractérisé par une fréquence ω satisfaisant à une relation de dispersion $\omega(k)$. En première approximation, on peut admettre pour la branche optique $\omega(k) =$ constante, où le nombre d'onde k est réduit à la première zone de Brillouin. Par son champ de Coulomb, l'électron est couplé à la polarisation sur laquelle il réagit. L'électron se trouve donc soumis à un champ de polarisation quantifié dont l'énergie ne peut être modifiée que par des multiples de $\hbar\omega$ correspondant à l'absorption ou à l'émission de phonons. On est conduit à se représenter le mouvement d'un électron dans un cristal polaire comme celui d'une charge entourée par un champ d'autopolarisation. Cet ensemble mobile électron-phonons de polarisation est appelé polaron. Les propriétés du polaron (énergie propre, masse effective, mobilité) sont liées essentiellement à la grandeur de la fréquence d'oscillation ω.

L'intensité du couplage électron-réseau est caractérisée par un paramètre sans dimension, α, jouant le rôle de constante de couplage. La valeur de α varie de deux à six pour les cristaux polaires typiques. Il est évident qu'il s'agit d'une interaction forte comparée au couplage électron-photon caractérisé par la valeur 1/137. La constante de couplage α est inversement proportionnelle à la racine carrée de la fréquence optique de vibration ω. Les travaux théoriques publiés se subdivisent en trois classes, suivant qu'ils traitent les cas limites d'une fréquence haute, d'une fréquence basse, ou d'une fréquence intermédiaire. On peut remarquer d'emblée que, α étant généralement plus grand que 1, la méthode habituelle de calcul des perturbations est inadéquate. Nous analyserons sommairement les différentes méthodes proposées pour les trois classes indiquées ci-dessus.

a) *Limite des basses fréquences; couplage fort*

Pour une fréquence caractéristique d'oscillation du réseau suffisamment faible, on peut admettre que l'électron suit adiabatiquement les variations de la polarisation. Parmi les théories reposant essentiellement sur cette hypothèse, citons l'approximation statique de LANDAU-PÉKAR*) et l'approximation adiabatique de PÉKAR. La première néglige totalement les propriétés dynamiques du réseau. La seconde par contre implique que l'énergie de vibration du réseau (c'est-à-dire sa fréquence) soit petite par rapport à l'énergie de l'électron. Or, dans le cas d'un électron

*) Les références bibliographiques qui ne sont pas données ici sont indiquées sous références[1]) et [2]).

de conduction lent dans un cristal ionique, ces deux énergies sont du même ordre de grandeur, de sorte que cette approximation perd sa validité pour le domaine expérimental que nous étudions.

b) *Limite des hautes fréquences; couplage faible*

LEE, LOW et PINES[3]) entre autres ont développé le calcul de l'interaction électron-réseau pour des fréquences de vibration élevées (appelé fréquemment méthode du couplage intermédiaire). Le calcul de l'énergie propre du polaron est basé sur une technique des variations introduite antérieurement pour l'étude théorique de l'interaction mésonique. Il repose essentiellement sur les hypothèses suivantes:

1. L'influence du réseau périodique est prise en considération par l'introduction d'une masse effective pour l'électron.
2. Le diélectrique est traité comme un milieu continu. Cette approximation est légitimée par le fait que les phonons interagissant avec l'électron ont une longueur d'onde plus grande que la constante du réseau. Elle implique d'autre part que le polaron ait une extension égale à plusieurs distances réticulaires.
3. La branche optique est caractérisée par une fréquence unique ω correspondant au mode longitudinal de vibration.
4. La polarisation associée au mode acoustique est négligée.

Il ressort des calculs de LEE, LOW et PINES que le polaron se comporte dans le cristal comme une particule libre dont la masse m^* est donnée par

$$m^* = m\,(1 + \alpha/6)$$

où m est la masse effective de l'électron dans le champ statique du réseau cristallin.

Les résultats de LEE, LOW et PINES sont valables pour autant que $\alpha \lesssim 6$.

LOW et PINES[4]) ont calculé la mobilité du polaron se mouvant dans un champ électrique faible, ce qui revient à calculer la probabilité de diffusion du polaron par les phonons thermiques. Ils utilisent les fonctions d'onde de LEE, LOW et PINES pour caractériser les états final et initial du polaron. Ceci implique que le domaine de validité de leurs calculs sera limité également à $\alpha \lesssim 6$. D'autre part, les fonctions d'onde utilisées ne sont exactes que si la température T est petite par rapport à la température de DEBYE correspondant au mode de vibration longitudinal de la branche optique. La mobilité du polaron est alors donnée par

$$\mu = f(\alpha)\,\frac{1}{2\,\alpha\,\omega_l}\,\frac{e}{m}\left(\frac{m}{m^*}\right)^3 (e^{\theta/T} - 1)$$

expression valable pour $T \ll \theta$ et dans laquelle les symboles ont la signification suivante:

α = constante de couplage donnée par

$$\alpha = \frac{e^2}{\hbar}\left(\frac{m_e}{2\,\hbar\,\omega_l}\right)^{1/2}\frac{\varepsilon - n^2}{\varepsilon\, n^2}\left(\frac{m}{m_e}\right)^{1/2}$$

$f(\alpha)$ est une fonction qui varie lentement avec α et qui est voisine de 1 pour $1 < \alpha < 6$, cf. [4]).

ε = constante diélectrique statique.

n^2 = constante diélectrique à la limite des hautes fréquences.

$\theta = h\omega_l/k$ = température de DEBYE correspondant à la fréquence limite ω_l des vibrations longitudinales de la branche optique.

ω_l est en principe déterminé par la fréquence expérimentale ω_r des rayons restants: $\omega_l = (\varepsilon/n^2)^{1/2}\cdot\omega_r$.

m_e = masse de l'électron libre.

Les constantes de couplage pour la plupart des cristaux ioniques étant de l'ordre de 2 à 6, cette théorie fournit une base de discussion pour nos résultats expérimentaux.

c) *Domaine des fréquences intermédiaires*

Les deux cas limites ci-dessus encadrent un domaine de fréquences pour lequel ni l'une ni l'autre des méthodes de résolution n'est valable. FEYNMAN[5]) a utilisé une formulation mathématique plus générale valable sur l'ensemble des domaines. A la limite des hautes fréquences, (couplage faible) l'accord des résultats de FEYNMAN avec ceux de LEE, LOW et PINES et de LOW et PINES est satisfaisant. En particulier, la masse indiquée par FEYNMAN pour $\alpha \lesssim 6$ est:

$$m^* = m\,(1 + \alpha/6 + 0{,}025\,\alpha^2 + \cdots)$$

En fait, le calcul est basé sur une méthode variationnelle et m^*/m s'exprime par une relation compliquée au moyen de deux paramètres ajustables v et w choisis pour minimiser l'énergie propre du polaron. A l'approximation d'ordre zéro, on a simplement $m^*/m = (v/w)^2$.

SCHULTZ[6]) a développé une théorie de la mobilité à partir de la méthode de FEYNMAN pour le calcul de la masse du polaron. Il justifie ce choix en remarquant que les résultats obtenus par cette méthode sont les seuls qui coïncident de façon raisonnable avec les cas limites des couplages fort et faible et qui permettent une interpolation acceptable. Cela constitue un fort argument en faveur d'une validité plus grande de cette méthode d'évaluation de la self-énergie et de la masse du polaron.

Le choix d'un fondement solide est d'autant plus nécessaire que le calcul de la mobilité du polaron ne peut se faire qu'en introduisant des hypothèses supplémentaires dont la validité n'est que difficilement assurée:

dra) Utilisation du même Hamiltonien que pour le problème de l'énergie opre et de la masse.

b) Utilisation d'une équation de BOLTZMANN exigeant que $\hbar/\tau \ll kT$ (τ = intervalle entre collisions) pour que l'énergie du polaron soit bien définie entre deux collisions.*

c) Limitation de fait, dans les calculs, aux processus à 1 phonon.

SCHULTZ considère le problème essentiellement comme un processus de diffusion de résonance d'un polaron de FEYNMAN. L'expression qu'il déduit pour la mobilité est la suivante:

$$\mu = \frac{e}{2\,m\,\omega} \frac{1}{\alpha\,Z_r} \frac{m}{m^*} \frac{v_r}{(2\,\hbar\,\omega/m)^{1/2}} \left(e^{\theta/T} - 1\right)$$

A part le facteur m^*/m qui en première approximation est égal à $(v/w)^2$, cette expression contient deux facteurs critiques: la grandeur $v_r = \hbar \cdot d\omega/dP_r$ représentant la vitesse du polaron lorsqu'il possède l'énergie de résonance (P_r est son impulsion à la résonance) et la grandeur Z_r = facteur de couplage de renormalisation pour le phonon de résonance. Les valeurs de ces grandeurs en fonction du paramètre de couplage α ainsi que celles des deux paramètres v et w sont fournies par les courbes des figures 1a et b, construites à partir des données numériques de SCHULTZ.

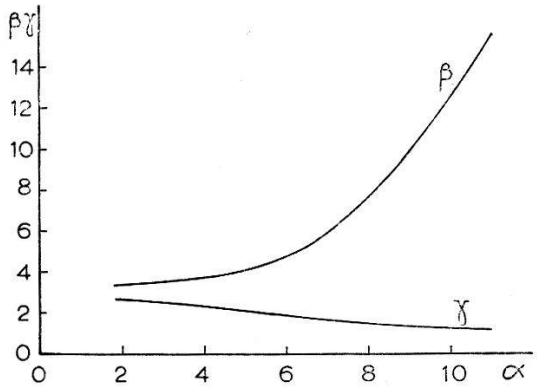


Fig. 1a

Paramètres v et w calculés par SCHULTZ et représentés en fonction de α
$\beta = v/\omega; \quad \gamma = w/\omega$

Comme les valeurs de α caractéristiques de AgCl et AgBr sont voisines de 2, il apparaît légitime de fonder notre discussion des résultats obtenus dans cette étude sur les deux théories qui sont actuellement disponibles dans ce domaine de valeurs du paramètre de couplage: celle de LOW et PINES et celle de SCHULTZ.

Etant donné le caractère encore flou de la théorie et les difficultés de l'expérimentation, notre discussion aura surtout la valeur d'une indication générale sur la nature et les caractéristiques du polaron.

*) Il est possible que cette condition soit trop exclusive et doive se remplacer par la condition moins forte $\hbar/\tau \ll E_f$ = énergie du niveau de Fermi (compté à partir de la limite de bande).

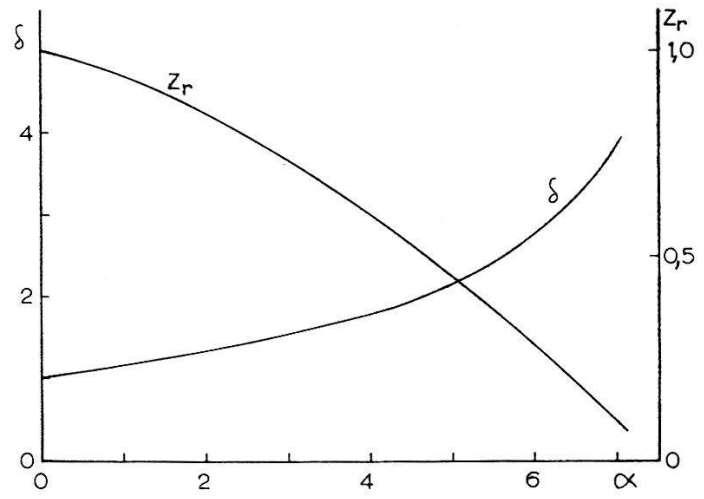


Fig. 1 b
Représentation de $\delta = v_r/(2\,\hbar\omega/m)^{1/2}$ et de Z_r en fonction de α

II. Interaction de l'électron avec les imperfections cristallines

Outre l'interaction électron-réseau, c'est-à-dire l'interaction de l'électron avec le cristal parfait, il faudra tenir compte de la diffusion de l'électron de conduction par les impuretés et imperfections cristallines dont les plus importantes semblent devoir être, dans l'ordre, les impuretés ionisées, les impuretés neutres, et les dislocations.

a) *Impuretés ionisées*

La diffusion par les impuretés ionisées a été traitée par CONWELL et WEISSKOPF[7]). Leur calcul est essentiellement classique et repose sur les hypothèses suivantes:

1. La densité des électrons de conduction est suffisamment faible pour qu'ils obéissent à la distribution de MAXWELL-BOLTZMANN.
2. Les électrons sont considérés comme libres et leur diffusion par les impuretés ionisées est donnée par la formule de RUTHERFORD.
3. La diffusion de l'électron par un ion est indépendante des autres ions.

L'expression de la mobilité résultant de ces calculs est la suivante:

$$\mu_I = \frac{2^{7/2}}{\pi^{3/2}} \frac{\varepsilon^2 (kT)^{3/2}}{m^{1/2} e^3 N_I \ln G} \qquad \text{avec } G = \left[1 + \left(\frac{3\,\varepsilon\, kT}{e^2 N_I^{1/3}}\right)^2\right]$$

où N_I est la densité des impuretés ionisées.

BROOKS[8]) et indépendamment HERRING ont amélioré ce résultat par un calcul quantique tenant compte de l'effet collectif des ions et de la variation de l'effet d'écran des électrons lorsque leur densité devient inférieure à celle des impuretés ionisées. L'expression de HERRING indiquée

par DEBYE et CONWELL[9]) diffère de la précédente en ce sens que le terme $\ln G$ y est remplacé par

$$\ln (1 + b) - b/(1 + b)$$

avec

$$b = (6/\pi) \cdot (\varepsilon\, m k^2\, T^2 / n \hbar^2\, e^2)$$

où n est la densité des électrons de conduction.

BLATT[10]) a repris le calcul de la diffusion par les centres ionisés et montre que l'approximation de BORN utilisée par les auteurs précédents dans le calcul de la section efficace n'est plus valable, en particulier pour

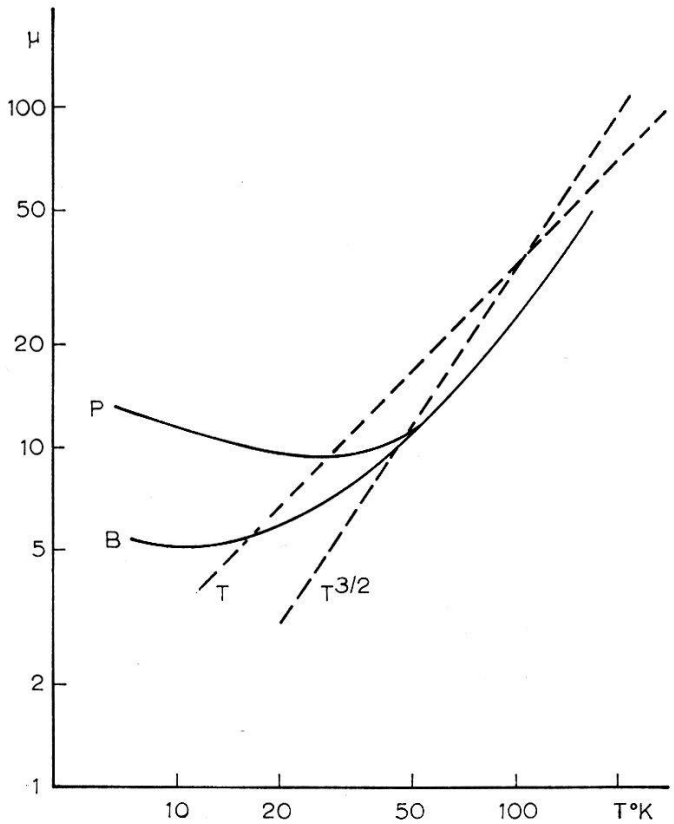


Fig. 2

Reproduction d'une figure donnée par BLATT[10]). La mobilité (échelle arbitraire) déterminée par la diffusion sur les impuretés est représentée en fonction de T. La courbe P est calculée par la méthode des ondes partielles (BLATT) et la courbe B à l'aide de l'approximation de Born (BROOKS-HERRING).

les basses températures. Il propose l'utilisation de la méthode des ondes partielles. Dans son travail, BLATT introduit le même potentiel avec écran que BROOKS et HERRING. Les déphasages (phase shift) sont alors obtenus par le calcul numérique de certaines intégrales, qui n'a été fait que dans un cas particulier. Dans la figure 2, nous donnons à titre d'exemple les mobilités obtenues par BLATT, comparées à celles calculées par la formule de BROOKS-HERRING.

b) *Impuretés neutres*

ERGINSOY[11]) a obtenu la mobilité électronique déterminée par la diffusion sur les impuretés neutres en modifiant de manière adéquate les résultats de la diffusion de l'électron par l'atome d'hydrogène. La mobilité est donnée par:

$$\mu_N = \frac{1}{20} \frac{m\, e^3}{N_N\, \varepsilon\, \hbar^3}$$

où N_N est la densité des impuretés neutres.

c) *Dislocations*

Il n'existe pas à notre connaissance d'estimation théorique de l'effet des dislocations sur la mobilité électronique dans les cristaux polaires.

Pour les cristaux de valence, BARDEEN et SHOCKLEY[12]) ont proposé pour le potentiel de diffusion dû aux dislocations l'expression $V(\boldsymbol{r}) = (E_1/e) \cdot \Delta(\boldsymbol{r})$ où $\Delta(\boldsymbol{r})$ est la dilatation mécanique $(\varepsilon_{11} + \varepsilon_{22} + \varepsilon_{33})$ du réseau au point $\boldsymbol{r}$ produite par la dislocation et E_1 un paramètre de l'ordre de quelques eV dont la valeur exacte doit être déterminée expérimentalement.

A partir de ce potentiel de déformation, DEXTER et SEITZ[13]) ont calculé l'accroissement de résistivité dû aux dislocations pour des électrons avec distribution de BOLTZMANN. On en tire pour la mobilité l'expression:

$$\mu_d = \frac{32}{3\pi} \frac{k\, \hbar\, e}{E_1^2\, \lambda^2} \left(\frac{1-\nu}{1-2\nu}\right)^2 \frac{1}{N\, m}\, T$$

où λ = distance de glissement du plan cristallin
ν = nombre de Poisson
N = nombre de lignes de dislocations par unité de surface.

Remarque

Toutes les formules précédentes concernant les effets d'impuretés ont été établies pour les cristaux semi-conducteurs de valence tels que Ge et Si. La masse m représente donc la masse effective de l'électron. Pour l'étude des cristaux ioniques et à défaut d'expressions spécialement adaptées à ce cas, il convient de remplacer la masse effective m par la masse du polaron m^*.

Importance relative des différents types de diffusion

Nous calculons ci-dessous les mobilités résultant de chacun des types d'interaction pour bien préciser l'importance relative de ceux-ci, et surtout pour mettre en évidence les domaines de température pour lesquels l'un ou l'autre des processus est prépondérant. Nous effectuerons ces

estimations pour un cristal de AgBr. Nous utiliserons la valeur $m^* = 0{,}35\, m_e$ qui est la valeur obtenue dans une recherche préliminaire[14]) pour la masse du polaron.

1. *Interaction électron-réseau*

En introduisant la valeur de α, la mobilité prend la forme (théorie de Low et Pines):

$$\mu_r = f(\alpha)\, \frac{\hbar^2}{(2\, k\theta)^{1/2}}\, \frac{\varepsilon\, n^2}{\varepsilon - n^2}\, \frac{m^{3/2}}{m^{*3}}\, \frac{1}{e}\, (e^{\theta/T} - 1)$$

Les valeurs numériques des différents symboles sont, pour AgBr, les suivantes:

$$\left.\begin{array}{l} m^* = 0{,}35\, m_e \\ m = 0{,}25\, m_e \\ f(\alpha) = 1{,}1 \end{array}\right\}^{14)} \qquad \begin{array}{l} \hbar = 1{,}05 \cdot 10^{-27} \text{ erg. s.} \\ k = 1{,}38 \cdot 10^{-16} \text{ erg. } (^0)^{-1} \\ e = 4{,}80 \cdot 10^{-10} \text{ ues. cgs.} \\ m_e = 9{,}1 \cdot 10^{-28} \text{ g} \\ \theta = 195^\circ \text{K} \end{array}$$

$$\varepsilon = 13{,}1 \qquad n^2 = 4{,}62$$

$$\text{D'où} \quad \mu_r \simeq 30 \cdot e^{\theta/T}\ (\text{cm}^2\, V^{-1}\, s^{-1})$$

(en négligeant le 1 devant l'exponentielle).

2. *Diffusion par les impuretés ionisées*

Nous utiliserons pour notre estimation la formule de Brooks-Herring où le terme logarithmique varie peu avec T et peut être pris pour une température moyenne de 100° K. Nous introduirons en outre pour la densité des électrons de conduction la valeur $n = 2 \cdot 10^{12}$ cm^{-3} déjà estimée par Allemand et Rossel[15]). Nous obtenons alors pour b la valeur

$$b = 2 \cdot 10^6$$

En admettant une densité $N_I \sim 10^{17}$ cm^{-3} pour les impuretés ionisées[15]), la mobilité μ_I prend la forme

$$\mu_I \simeq 0{,}8 \cdot T^{3/2}\ (\text{cm}^2\, V^{-1}\, s^{-1})$$

3. *Diffusion par les impuretés neutres*

Il est à remarquer que la diffusion par les impuretés neutres ne dépend pas de la température. En admettant[15]) une densité $N_N = 2{,}5 \cdot 10^{17}$ cm^{-3}, on obtient:

$$\mu_N \simeq 1{,}1 \cdot 10^3\ (\text{cm}^2\, V^{-1}\, s^{-1})$$

4. *Effet des dislocations*

Lorsqu'on exprime la mobilité en unités pratiques cm^2 V^{-1} s^{-1}, l'expression permettant d'estimer l'effet des dislocations prend la forme:

$$\mu_d = 3{,}38 \cdot 10^{12} \left(\frac{1-\nu}{1-2\nu}\right)^2 \frac{1}{E_1^2\, \lambda^2}\, \frac{m_e}{m}\, \frac{1}{N}\, T$$

où E_1 est en eV et λ en Å.

Le coefficient de POISSON pour un cristal cubique $\nu = c_{12}/(c_{11} + c_{12})$ s'obtient en insérant les valeurs des modules d'élasticité $c_{11} = 0{,}56$ et $c_{12} = 0{,}33$ pour AgBr, ce qui donne $\nu \simeq 0{,}37$.

Il est peu probable que N dépasse 10^6 cm^{-2} pour les cristaux compteurs d'impulsions d'ionisation étudiés ici. Avec $\lambda \simeq 5$ Å, de l'ordre de la maille cristalline et $E_1 \simeq 5$ eV, et choisissant pour m/m_e le rapport $m^*/m_e = 0{,}35$, on obtient:

$$\mu_d \simeq 7{,}5 \cdot 10^4\ T\ (\mathrm{cm}^2\ V^{-1}\ s^{-1})$$

Ces différentes mobilités, de même que la mobilité résultante donnée par

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{\mu_r} + \frac{1}{\mu_l} + \frac{1}{\mu_N} + \frac{1}{\mu_d}$$

sont représentées en fonction de T sur la figure 3.

On remarquera que l'interaction avec le réseau est prépondérante aux températures relativement élevées, alors que la mobilité semble être conditionnée principalement par les impuretés ionisées aux basses tempéra-

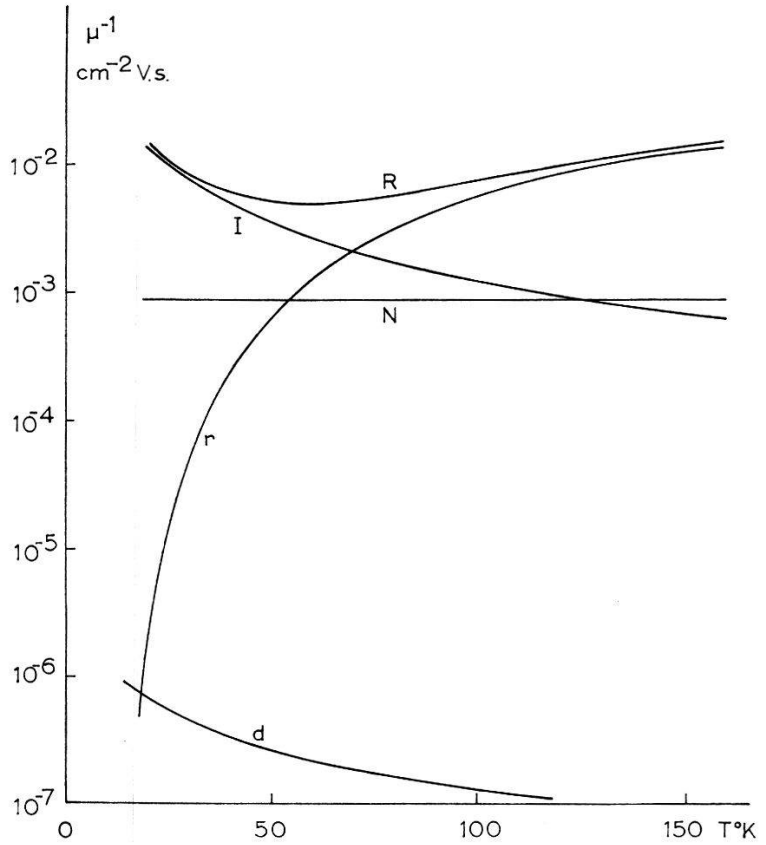


Fig. 3

Variation en fonction de la température des inverses des mobilités dues respectivement à l'effet: r = du réseau parfait; I = des impuretés ionisées; N = des impuretés neutres; d = des dislocations. R représente l'inverse de la mobilité résultante.

tures.*) Les impuretés neutres et les dislocations semblent devoir jouer un rôle secondaire au-dessus de 50° K et n'apporter qu'une faible correction plus ou moins négligeable suivant leur densité.

III. Partie expérimentale

1. *Principe de la mesure*

Le cristal à étudier est placé dans le champ électrique produit par deux électrodes planes. L'une d'elle, percée en son centre de trous très fins, laisse passer une impulsion de rayons X. Les charges libérées dans le cristal par l'irradiation se déplacent sous l'effet du champ électrique et induisent sur l'électrode collectrice une impulsion de tension qui est amplifiée et observée sur l'écran d'un oscilloscope. Pour autant que l'impulsion ne soit pas déformée par le dispositif électronique, son temps de montée t^* correspond au temps de déplacement des électrons. Connaissant le champ E appliqué au cristal et la distance d parcourue par les électrons, on obtient la mobilité par la relation $\mu = d/t^*E$.

Le schéma de principe du dispositif expérimental est donné par la figure 4. L'émission pulsée de rayons X est commandée par un générateur

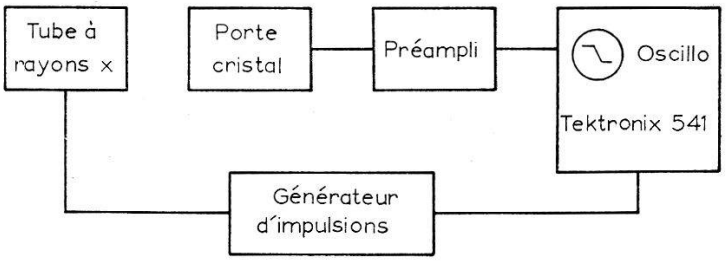


Fig. 4
Schéma de principe du dispositif expérimental

d'impulsions qui synchronise simultanément le balayage de l'oscilloscope du type Tektronix 541. Les appareils composant cet ensemble sont décrits plus loin.

Nous nous sommes efforcés de réaliser les conditions suivantes:

a) les charges libérées par l'impulsion de rayons X sont localisées à la surface du cristal.

b) La durée de l'irradiation est suffisamment petite pour être négligée devant le temps de transit.

*) L'influence de la branche acoustique doit se manifester nettement aux très basses températures, où le nombre de phonons optiques excités tombe fortement. Cependant pour les cristaux utilisés ici, l'effet important des impuretés doit masquer complètement cette transition.

c) Tous les électrons libérés traversent la totalité du cristal et atteignent l'électrode collectrice; ceci revient à admettre un «Schubweg» supérieur à l'épaisseur du cristal.

Avec ces hypothèses, au temps $t = 0$, une charge Q_0 est libérée en $x = 0$ (fig. 5). Cette charge se déplace à la vitesse constante v et induit sur l'électrode collectrice la charge

$$Q\,(t) = Q_0 \cdot vt/d, \quad t \text{ variant de } 0 \text{ a } t^*$$

A l'entrée du préamplificateur, nous aurons une impulsion de tension croissant linéairement en fonction du temps à conditions que RC $\gg t^*$:

$$V\,(t) = = \frac{Q(t)}{C+C_o} = \frac{Q_o}{C+C_o} \cdot \frac{vt}{d} \qquad \text{(fig. 6)}$$

avec C_0 = capacité du condensateur plan formé par les électrodes et C = capacité d'entrée du préamplificateur + capacité du fil de connexion.

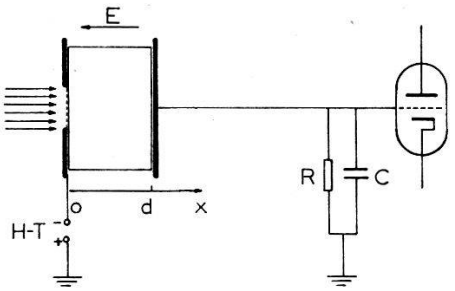


Fig. 5
Principe de la mesure

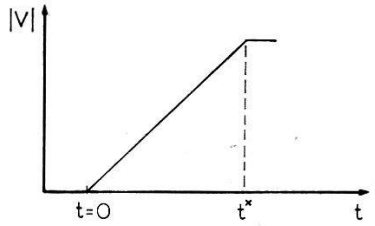


Fig. 6
Impulsion linéaire induite sur l'électrode collectrice

La mobilité est alors calculée par la relation indiquée plus haut.

En mettant au point une technique expérimentale permettant de satisfaire les hypothèses ci-dessus, nous éviterons des calculs de correction souvent délicats. L'utilisation des rayons X comme moyen d'excitation nous a paru particulièrement intéressante car elle permet de réaliser les deux premières conditions. Il est en effet possible de choisir l'énergie des rayons X de manière à obtenir une pénétration déterminée. Dans notre cas, l'anticathode du tube à rayons X étant en cuivre, et la haute tension de 25 à 30 kV, l'émission sera constituée essentiellement par la raie K_α du cuivre (1,5 Å) dont l'énergie est de 8 kV. La pénétration de ce rayonnement dans AgBr et AgCl est d'environ 10 microns; elle est très faible par rapport à l'épaisseur des cristaux qui varie de 2 à 5 mm. Nous pouvons donc admettre que les charges libérées sont localisées en surface. L'influence du spectre continu est d'autant plus négligeable que l'arête K d'absorption de Ag en atténue la partie située au-dessous de 0,5 Å.

L'excitation par particules α remplirait aussi la condition ci-dessus, la pénétration des α dans les halogénures d'argent étant d'une vingtaine de microns. Cependant, ALLEMAND et ROSSEL[15]) ont montré que ces cristaux étaient en général insensibles à une irradiation α. L'excitation par rayonnement β et surtout celle par rayonnement γ sont inadéquates étant donnée leur grande pénétration.

D'autre part, les impulsions X obtenues sont périodiques et superposables, ce qui est beaucoup plus favorable pour l'observation à l'oscilloscope. L'utilisation des rayons X donne de plus la liberté de travailler avec une intensité variable. Il est possible ainsi d'obtenir un signal d'amplitude supérieure à ceux produits par les β ou les γ individuels, ce qui est essentiel par suite des difficultés de l'amplification fidèle d'impulsions si faibles et rapides.

Les signaux de déclenchement produits par le générateur ont une durée de 25 ou 50 mμs. La durée des éclairs de rayons X est certainement inférieure à ces valeurs. Les temps de transit des électrons variant de 0,5 à 2 μs, il est légitime de négliger la durée de l'excitation.

Nous avons admis que tous les électrons atteignaient l'électrode collectrice, ce qui est réalisé à condition que le trappage soit suffisamment faible. En admettant[15]) une concentration de trappes de l'ordre de 10^{13} cm^{-3} et une section efficace de $3 \cdot 10^{-15}$ cm^2, on voit facilement que le «Schubweg» est de l'ordre de plusieurs centimètres. On doit donc s'attendre à observer des impulsions linéaires. Si tous les électrons étaient capturés par des trappes dont la densité est uniforme dans le cristal, l'impulsion aurait une allure du type $1 - \exp(-t/\tau)$.

2. *Cristaux*

Les cristaux utilisés proviennent de différentes sources. Le cristal AgBr N° 1 a été obtenu en refroidissant lentement la substance fondue (10° par heure). Les autres cristaux de AgBr ont été aimablement mis à notre disposition par la maison Eastman Kodak Company*). Les cristaux de AgCl ont été achetés auprès de maisons spécialisées dans leur production industrielle.

Tous les cristaux de AgBr testés ont donné un signal mesurable. Par contre, seuls 2 cristaux de AgCl ont pu être utilisés pour des mesures. Une vingtaine d'autres ont été examinés. Quelques-uns donnaient un signal trop faible pour permettre une précision suffisante, tandis que la plupart ne donnaient aucun signal. Certains cristaux fournissent une impulsion appréciable lorsqu'ils sont irradiés par les γ mais sont peu ou pas du tout sensibles aux rayons X.

---

*) Nous tenons à exprimer nos vifs remerciements au Dr F. URBACH pour son amabilité.

La pénétration très faible des rayons X exige des surfaces aussi parfaites que possible du point de vue cristallographique. Les cristaux sont fréquemment polis sur du velours de soie imbibé d'une solution de cyanure de potassium. La plupart ont été soigneusement recuits de la manière suivante: la température est maintenue pendant 20 à 50 heures à environ 20 degrés au-dessous du point de fusion. Elle est ensuite abaissée à raison de 10 degrés par heure. Cependant, contrairement à ce que mentionnent certains auteurs, nous n'avons pas observé d'effet sensible et systématique sur le rendement.

Nous avons étudié la structure de quelques cristaux par rayons X, par la méthode du «back-scattering». Il est apparu que la surface, même après un polissage effectué en prenant de grandes précautions, n'est pas monocristalline. Cependant, une nouvelle analyse, après attaque du cristal par un solvant sans polissage mécanique, révèle une structure monocristalline. La structure mosaïque est cependant assez prononcée.

Plusieurs cristaux ont été analysés spectrographiquement. La concentration des impuretés est dans tous les cas à la limite de sensibilité spectroscopique ($\sim 10^{-6}$) sauf pour des impuretés de bore qui apparaissent dans 3 cristaux ($\lesssim 10^{-5}$) dont 2 ne sont pas compteurs.

3. *Porte cristal*

A la température ordinaire, les cristaux polaires sont caractérisés par une importante conduction ionique qui masque totalement la conduction électronique. Par conséquent, les mesures de mobilité par la méthode utilisée ici ne sont réalisables qu'à basse température. La limite supérieure se situe à environ 180° K. La limite inférieure accessible est déterminée par la température de l'azote liquide. Le domaine de température exploré s'étend donc sur une centaine de degrés.

Le porte cristal utilisé est représenté dans la figure 7. L'inertie thermique est telle que, une fois l'air liquide éliminé, la vitesse de réchauffement est d'environ 20° C par heure ce qui permet une série de mesures à des températures intermédiaires suffisamment constantes.

La partie anodique A du tube à rayons X pénètre dans la chambre à vide et l'anticathode se trouve en face du cristal C.

La pression maintenue dans l'enceinte est généralement comprise entre 10^{-4} et 10^{-5} mm Hg.

4. *Tube à rayons X*

L'émission pulsée de rayons X s'obtient en appliquant à la grille de commande G (fig. 8) des impulsions de 25 ou 50 mμs de durée et de 100 V d'amplitude, suffisante pour débloquer la grille polarisée à $-$ 60 V. Leur fréquence de répétition est comprise entre 60 et 1000 s^{-1}. Une feuille de

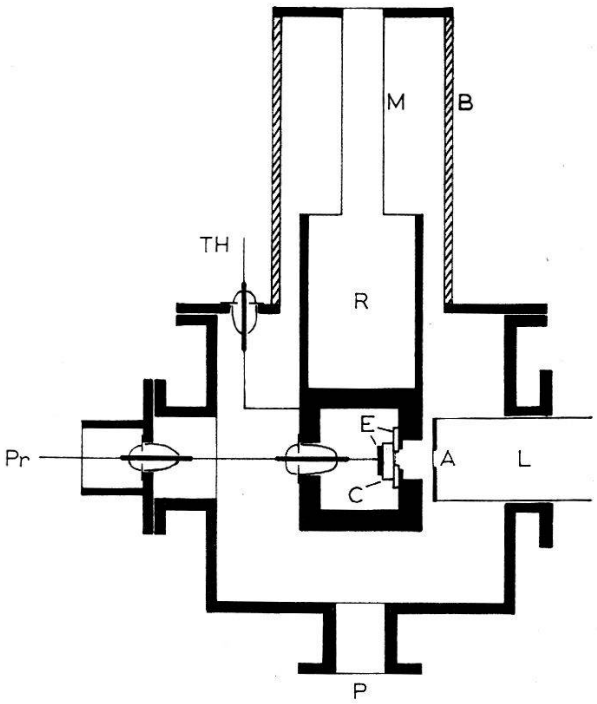


Fig. 7
Porte cristal
E = électrodes d'argent; C = cristal; R = réservoir à air liquide; M = tube de maillechort; B = colonne isolante en plexiglas; A = anticathode du tube à rayons X, L; TH = thermocouple; Pr = connexion au préamplificateur; P = vers les pompes.

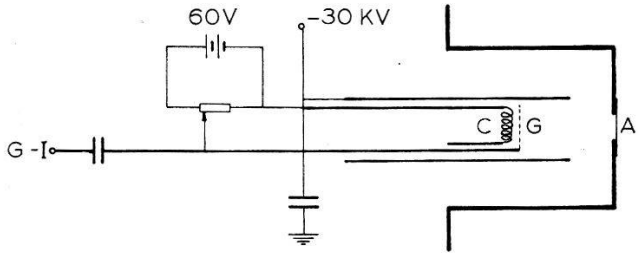


Fig. 8
Tube à rayons X
A = anticathode; G = grille de commande polarisée par une batterie de 60 V; C = cathode; G–I = sortie du générateur d'impulsions.

Cu de 17 microns d'épaisseur sert d'anticathode et laisse passer environ le 50% des rayons X pour l'irradiation du cristal.

L'intensité des rayons X a été contrôlée en comparant la luminescence qu'ils produisent dans un cristal d'anthracène à celle produite par les γ du Co^{60}. A émission maximum du tube, on obtient un rapport d'environ 50 entre l'amplitude des impulsions X et celle des impulsions γ. Par la mesure du «rise-time» des scintillations, nous avons pu vérifier que la durée des éclairs de rayons X est inférieure à celle des impulsions de commande du générateur.

5. *Préamplificateur*

L'électrode collectrice du porte cristal est reliée à la grille de commande du tube d'entrée du préamplificateur par une connexion coaxiale. L'amplitude de l'impulsion de tension est inversement proportionnelle à la capacité d'entrée; il est donc nécessaire de rendre cette dernière aussi petite que possible. Le préamplificateur est fixé directement sur le porte cristal pour diminuer la longueur du fil de connexion.

Les charges libérées étant de l'ordre de 10^{-15} C, les impulsions de tension à amplifier ont des amplitudes voisines du mV. Il est de première importance que le préamplificateur soit à bruit minimum.

D'autre part, le temps de transit des électrons correspond au temps de montée de l'impulsion. Cette dernière doit être amplifiée sans déformations. Les temps de montée mesurés s'échelonnent de 0,3 à 1 μs. Le rise-time du système amplificateur doit donc être suffisamment inférieur à ces valeurs. Le préamplificateur utilisé contient un premier étage monté en cascode et une boucle de contre-réaction. Ses caractéristiques sont les suivantes: amplification = 20 fois; bruit ramené à l'entrée = 100 μV; rise-time = 0,03 μs. Le préamplificateur attaque directement l'entrée d'un oscilloscope Tektronix type 541. Le rise-time de l'unité d'amplification (type 53/54 L) est de 0,014 μs. Nous sommes ainsi assurés que les temps mesurés sur l'écran de l'oscilloscope correspondent bien aux temps de montée des impulsions à l'entrée.

IV. Observations et résultats

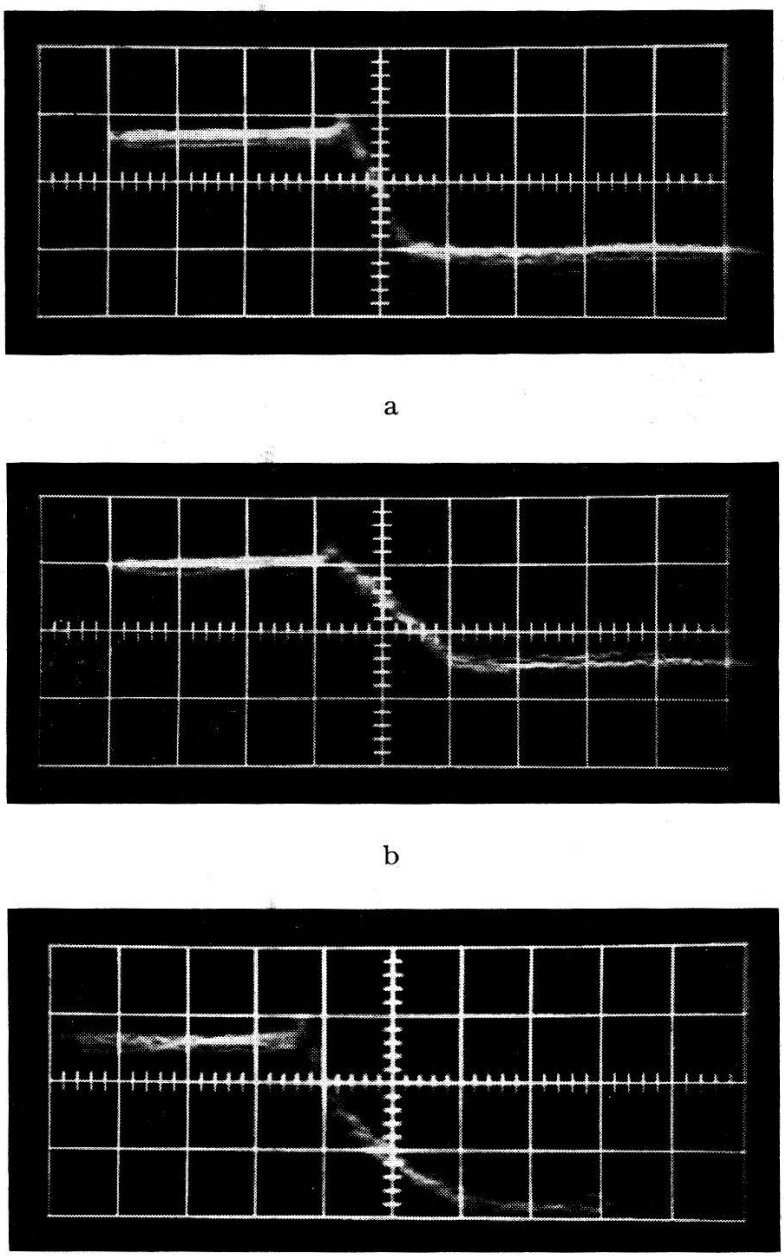
Avant d'être introduits dans le porte cristal, les cristaux sont soigneusement lavés à l'eau distillée, de manière à éviter toute décharge en surface. Ils reçoivent ensuite une électrode sur la face non irradiée, sous forme d'une couche mince de peinture à base d'argent utilisée dans la préparation des circuits imprimés. Cette électrode, adhérant parfaitement au cristal, assure le contact avec l'électrode collectrice, et d'autre part garantit l'homogénéité du champ électrique. Nous avons renoncé à une telle électrode sur la face irradiée, pour limiter au maximum l'absorption des rayons X, après nous être assurés que son absence n'avait pas d'influence sur les mesures.

Le refroidissement des cristaux est effectué généralement en trois à quatre heures et d'une manière continue, ceci pour éviter des tensions dues à de brusques variations de température. Le cristal est ensuite maintenu pendant une à deux heures à la température de l'air liquide. Les mesures sont effectuées lors du réchauffement; la durée de chaque mesure est d'environ 10 s.

Le champ appliqué au cristal varie de 2500 à 6500 $\mathrm{Vcm^{-1}}$ suivant les cas. Nous avons contrôlé que dans ce domaine, la proportionnalité entre

l'inverse $1/t^*$ du temps de montée de l'impulsion et le champ E était vérifiée. Le nombre de séries de mesures pour chaque cristal est de 3 à 8. Entre les séries de mesures, les cristaux ont été polis ou même quelquesfois recuits. On verra plus loin que ces traitements n'altèrent pas la cohérence des résultats entre les différentes séries.

La figure 9 a et b montre deux impulsions caractéristiques. La variation du temps de montée avec la température est bien mise en évidence.



a

b

c

Fig. 9

Impulsions de conduction (temps de balayage: 0,5 μs cm^{-1}).
a = AgBr N° 1, $T = 112°$ K; b = AgBr N° 1, $T = 172°$ K; c = impulsion non linéaire caractéristique d'un fort trappage.

On remarquera également la linéarité des impulsions qui confirme un trappage peu important des électrons. Les coudes parfaitement marqués aux extrémités des impulsions indiquent également que la quasi-totalité des charges libérées atteignent l'électrode collectrice. La figure 9c reproduit une impulsion non linéaire, caractéristique d'un cristal avec fort trappage.

Effet de polarisation

Nos mesures ont mis en évidence le phénomène suivant: si l'intensité des rayons X est augmentée, l'amplitude de l'impulsion de conduction croît jusqu'à une certaine limite, puis elle décroît rapidement et disparaît totalement. Dans certains cas, l'impulsion réapparaît une ou deux heures après l'arrêt de l'irradiation mais, généralement, il est nécessaire de ramener le cristal à la température ordinaire pour restaurer l'état initial. Cette intensité critique des rayons X peut varier suivant le cristal d'un facteur 5 à 10. Ce phénomène est très probablement dû à un effet de polarisation.

NEWTON[16]) a étudié les effets de charge d'espace dans le diamant. Cependant, il considère un cristal homogène avec une densité de trappes constante. Dans ces conditions, la recombinaison électrons-trous et le trappage d'électrons sont négligeables dans la région superficielle irradiée. Nous pensons que dans notre cas, la recombinaison et le trappage sont au contraire beaucoup plus importants dans une zône superficielle fortement perturbée que dans le volume du cristal. Nous en donnons pour preuve le fait que la sensibilité du cristal aux γ n'est pas altérée malgré la disparition de l'impulsion due aux rayons X. ALLEMAND et ROSSEL[15]) ont déjà mis en évidence un phénomène semblable.

On peut estimer la grandeur de l'effet de la façon suivante: on admet l'existence, à une profondeur a, d'une barrière de trappes à électrons portant une densité de surface σ de charge capturée. Un simple calcul d'électrostatique montre que dans l'épaisseur a du cristal, le champ prend la valeur:

$$E_a = V_0/d - (4\pi\sigma/\varepsilon) \cdot (1 - a/d) .$$

Puisque seule une zone superficielle peut être fortement polarisée, on aura $a/d \ll 1$. Il suffit dès lors d'une densité d'environ $2 \cdot 10^{10}$ électrons par cm^2 pour produire un champ de $3 \cdot 10^3$ V cm^{-1}, annulant le champ E_0 extérieur. Ceci suffit à expliquer la disparition de l'impulsion pour les intensités d'irradiation utilisées.

Il n'est donc pas possible d'améliorer le rapport signal sur bruit de nos impulsions par augmentation de l'intensité d'irradiation au-delà d'une certaine limite. Lors de nos mesures, nous avons toujours maintenu l'intensité du rayonnement nettement en dessous de la valeur critique, en

nous assurant que la forme de l'impulsion (amplitude et temps de montée) n'était pas affectée par une irradiation même prolongée.

Nous donnons sur la figure 10 les résultats de 6 différentes séries de mesures se rapportant au cristal AgBr N° 1. Nous avons porté la mobilité en fonction de la température pour mettre en évidence d'une part l'allure

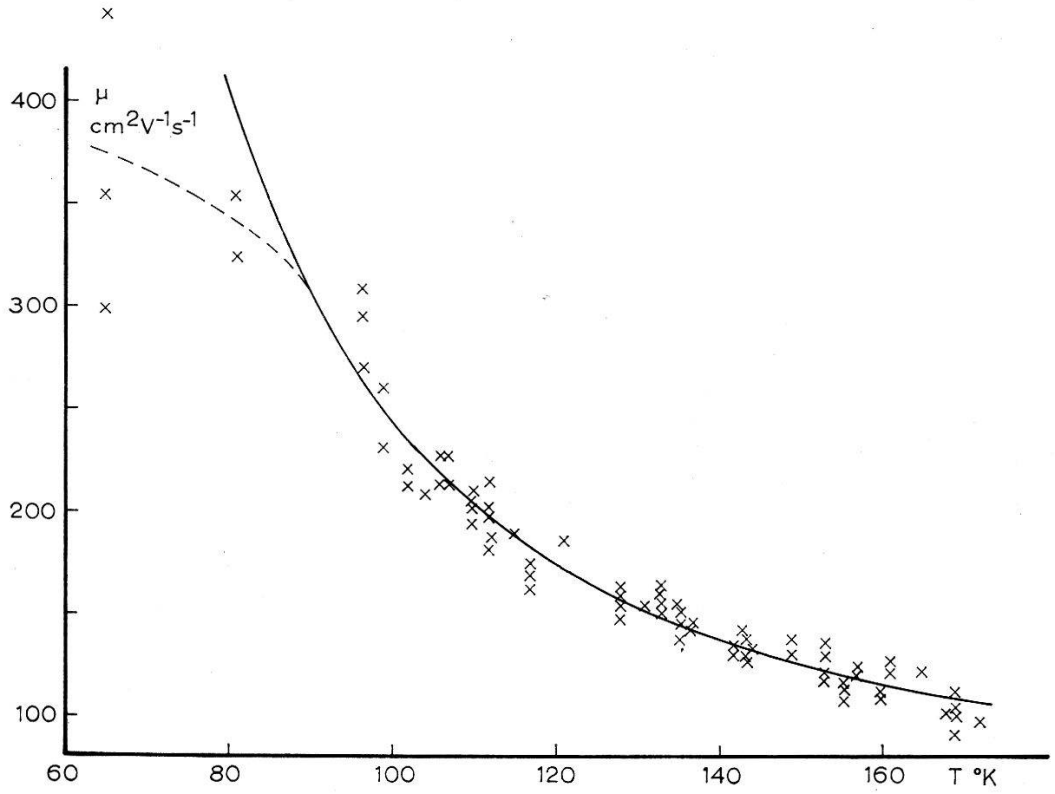


Fig. 10
Mobilité dans AgBr N° 1

de la courbe, et d'autre part la reproductibilité des points correspondant aux différentes séries. Les erreurs affectant les points de mesure ne sont pas reproduites pour ne pas charger le dessin. Elles sont de 1 à 2% sur la température et de 5 à 10% sur la mobilité. On remarquera que vers les basses températures (où les erreurs affectant la mobilité sont plus grandes et atteignent 20%) la courbe ne suit plus la forme exponentielle. L'influence des impuretés ionisées semble devenir importante, sans toutefois être prédominante.

Cette influence est par contre très nette et beaucoup plus importante dans le cas du cristal AgCl N° 1 (fig. 11) où on observe un maximum de la mobilité vers 110° K.

Sur les figures 12, 13, 14, 15 et 16, nous avons porté le logarithme de la mobilité en fonction de l'invers de la température. Les figures se rapportent respectivement aux cristaux AgCl N° 1 et AgBr N° 1 à 4.

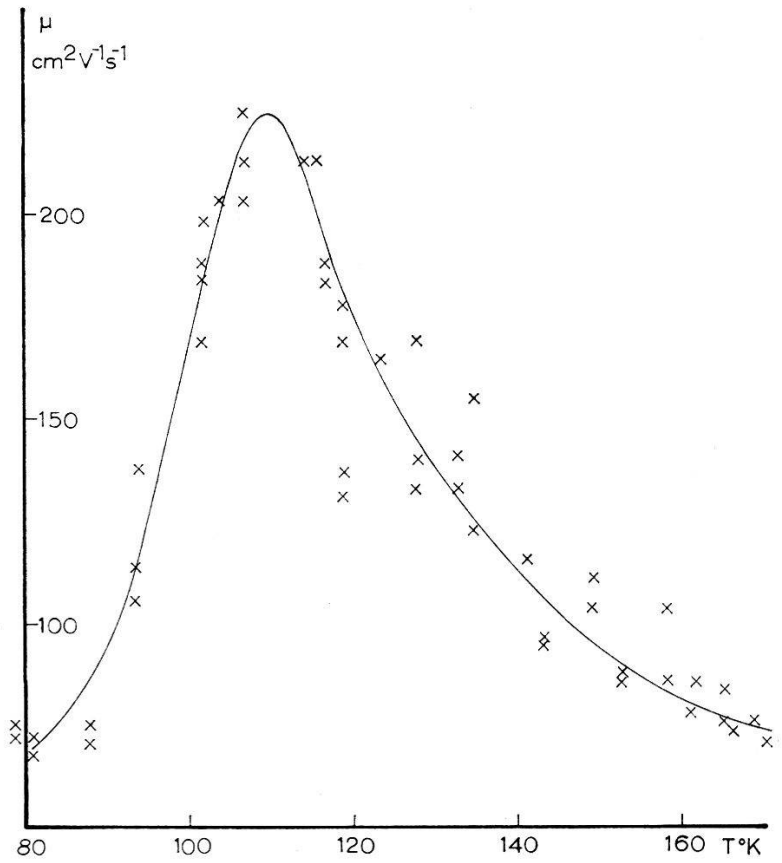


Fig. 11
Mobilité dans AgCl N° 1

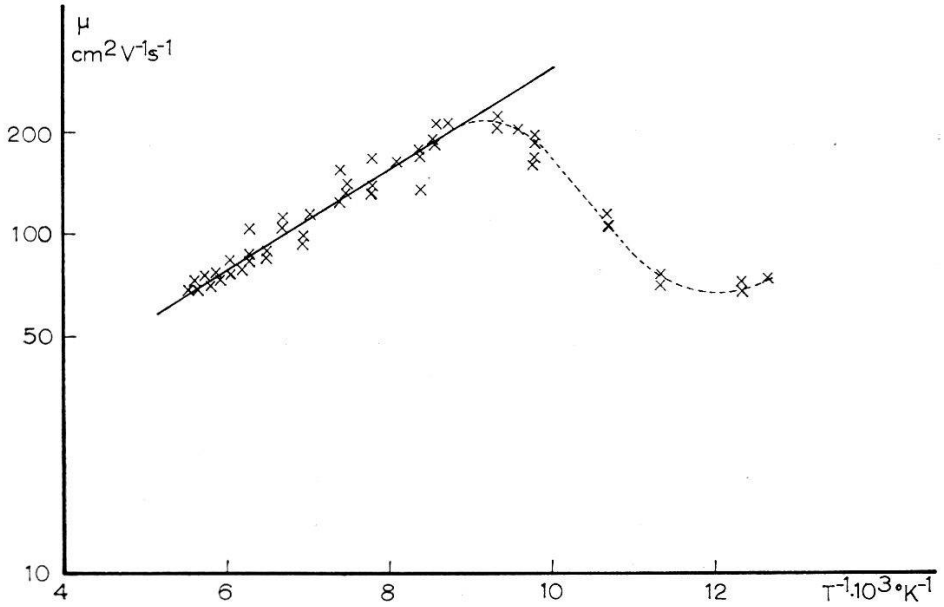


Fig. 12
Mobilité dans AgCl N° 1

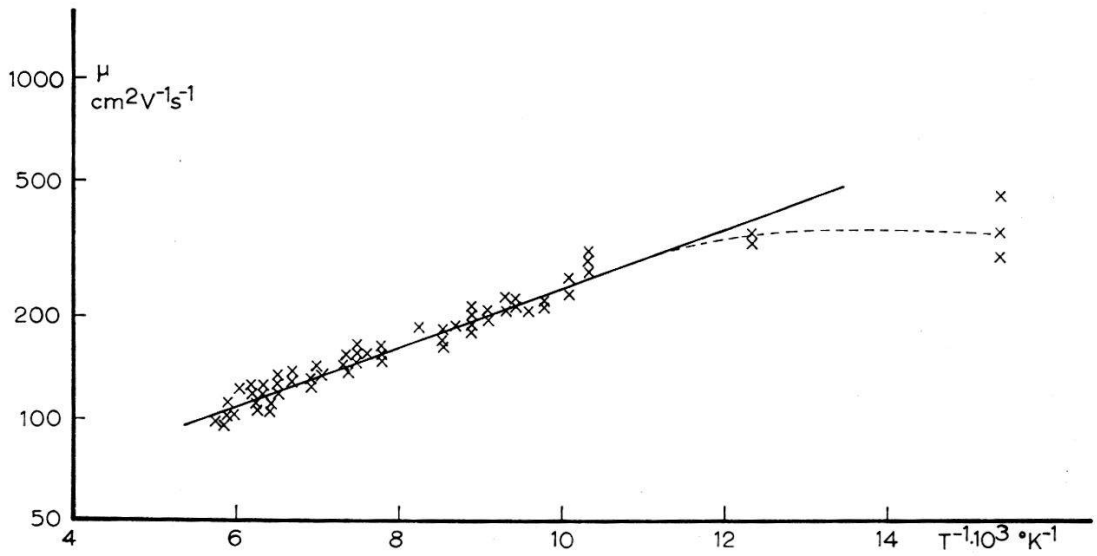


Fig. 13
Mobilité dans AgBr N° 1

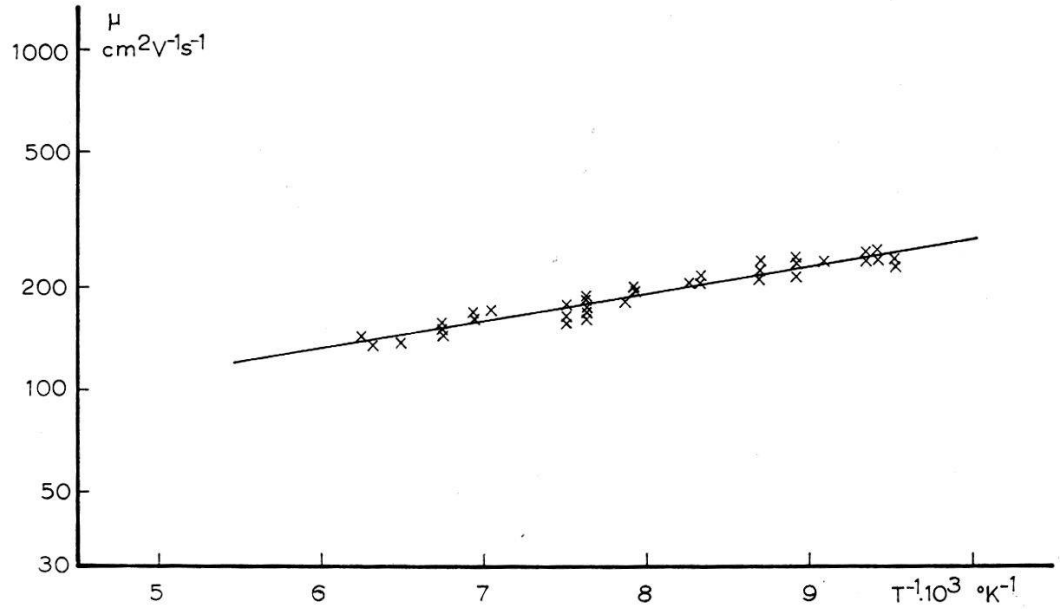


Fig. 14
Mobilité dans AgBr N° 2

V. Discussion des résultats et comparaison avec les théories du polaron

1. *Validité du μ mesuré*

Nous estimons que, dans le cas de AgBr tout au moins, la mobilité mesurée est bien la mobilité microscopique et qu'il n'y a pas lieu de tenir compte d'un effet de «multiple trapping» comme l'indiquent KOBAYASHI et BROWN[17]). Les constatations suivantes appuient notre point de vue:

a) Les valeurs de la mobilité obtenues pour différents cristaux sont cohérentes. Les cristaux étant de provenances très différentes, il est pro-

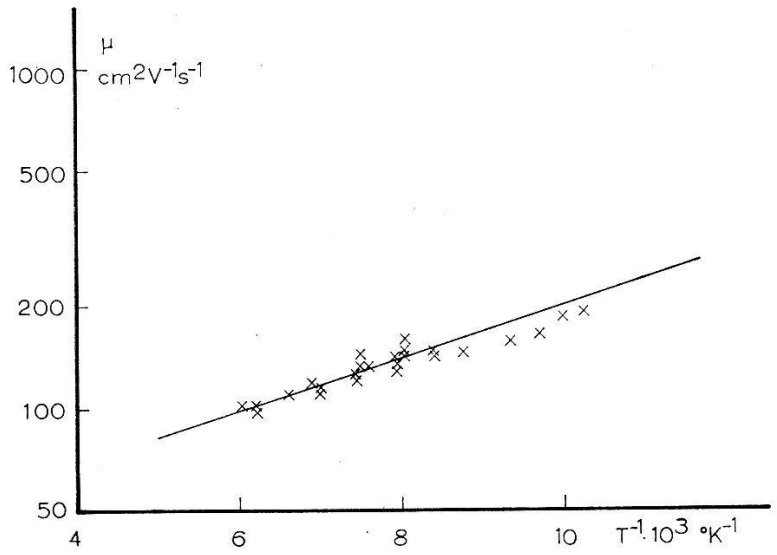


Fig. 15
Mobilité dans AgBr N° 3

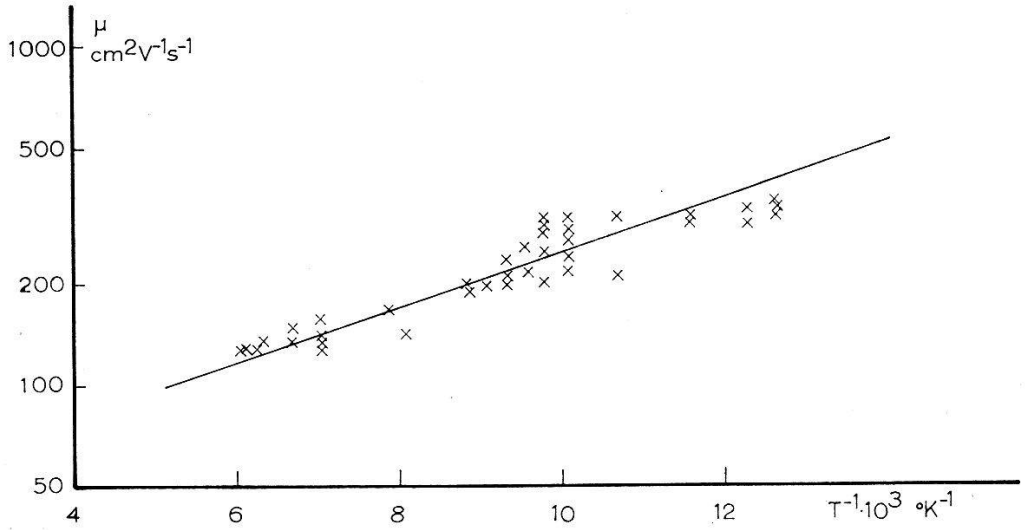


Fig. 16
Mobilité dans AgBr N° 4

bable que la concentration des trappes varierait fortement de l'un à l'autre, ce qui se manifesterait par une dispersion plus grande pour la mobilité.

b) Les impulsions observées sont linéaires. Un trappage prononcé se manifesterait par une courbure du front d'impulsion (fig. 9c). Ceci exclut la présence de trappes profondes.

c) Un «multiple trapping» par trappes peu profondes aurait pour effet d'étaler le groupe de charges en mouvement. Le décrochement très net par lequel se terminent nos impulsions est incompatible avec une telle dispersion des électrons dans leur mouvement.

2. Domaine expérimental de température et validité des hypothèses théoriques

Les expressions théoriques de la mobilité sont valables à condition que $\hbar/\tau \ll kT$ où τ représente l'intervalle de temps entre deux collisions. τ est lié à la mobilité par la relation $\mu = (e/m^*)\,\tau$. Pour une masse du polaron égale à 0,3 m_e et une mobilité de 100 $cm^2\ V^{-1}s^{-1}$ correspondant à une température $T = 150°$ K, $\hbar/\tau \simeq 5 \cdot 10^{-14}$ erg devient du même ordre de grandeur que kT*). La mobilité croissant exponentiellement lorsque la température diminue, la condition sera parfaitement satisfaite aux très basses températures. Il n'est pourtant pas possible d'effectuer les mesures au-dessous d'une certaine limite, car la mobilité est alors déterminée par la diffusion de l'électron sur les impuretés; la température critique au-dessous de laquelle l'influence des impuretés est prédominante se situe, suivant les cristaux, entre 70 et 100° K. Nos mesures sont donc effectuées dans un domaine de température situé à l'intérieur des limites de validité des expressions théoriques.

D'autre part, l'expression de la mobilité est surtout valable pour $T \ll \theta$, ce qui permettrait de négliger le terme -1 dans le facteur $(e^{\theta/T} - 1)$ caractérisant la statistique des phonons. La valeur prévue de θ étant voisine de 200 pour AgBr, le fait de négliger -1 par rapport à l'exponentielle entraîne dans notre domaine de mesure des erreurs variant de 10 à 25%.

La théorie du polaron conduit à une loi exponentielle pour la mobilité. Un des points essentiels de cette théorie est le fait de considérer l'interaction de l'électron avec la branche optique des vibrations du réseau comme prédominante. L'interaction de l'électron avec la branche acoustique conduit pour la mobilité à une loi en $T^{-3/2}$ ce qui est le cas pour les cristaux de valence à l'approximation d'une surface d'énergie sphérique. Comme nous le verrons ci-dessous, nos résultats expérimentaux donnent une probabilité nettement plus grande pour une courbe exponentielle que pour une courbe du type $T^{-3/2}$.

Il faut remarquer que la grandeur θ qui intervient dans le facteur exponentiel a un caractère purement statistique, et qu'elle pourrait ne pas coïncider avec $\hbar\omega_l/k$, ω_l étant une grandeur dynamique caractéristique du cristal. Rigoureusement ce θ statistique n'a pas nécessairement une valeur fixe; il est susceptible de varier suivant l'intervalle de température envisagé. Les valeurs de θ déduites de nos résultats expérimentaux sont en bon accord avec la valeur $\hbar\omega_l/k$ déduite des propriétés optiques. Il n'y aura donc pas lieu dans notre travail de faire une distinction entre les valeurs statistique et dynamique de θ. Ceci signifie qu'on peut, en bonne approximation, faire intervenir dans la statistique des phonons la seule fréquence $\omega(k = 0)$.

*) Comparer note en page 631.

Les deux points ci-dessus constituent des arguments en faveur des hypothèses sur lesquelles se fonde le modèle du polaron et nous autorisent à analyser nos résultats sur la base des théories construites sur ce modèle.

3. *Comparaison des résultats avec la théorie*

A. Théorie de Low et Pines

Nous avons fait une première analyse des résultats en admettant une exponentielle du type $\mu = Ae^{\theta/T}$. Bien que les valeurs que nous déduirons ne soient qu'indicatives, par le fait que nous négligeons -1 devant l'exponentielle, nous avons jugé cette analyse utile. Il est en effet possible de déterminer les coefficients de l'exponentielle par un calcul de moindres carrés qui tient compte de la dispersion des points de mesure et donne les erreurs affectant les coefficients.

Le facteur A dépend de m, m^*, α et θ. α et m^* sont eux-mêmes fonctions de m. Il est ainsi possible d'exprimer A en fonction de m et θ. Nous pouvons dès lors représenter $\ln \mu$ en fonction de $1/T$. Les figures 12, 13, 14, 15 et 16 montrent que, dans cette représentation, les points de mesure correspondant aux températures les plus élevées s'alignent autour d'une droite. La pente de cette droite, calculée par les moindres carrés, donne la valeur de θ. Celle-ci étant connue, nous pouvons calculer la valeur de la masse effective m de l'électron à partir de l'ordonnée à l'origine et ensuite les valeurs de α et m^*.

Les propriétés diélectriques et optiques caractéristiques des cristaux AgCl et AgBr sont reproduites dans le tableau I.

Tableau I

	ε	n^2	$\omega_r(s^{-1})$	$\omega_l(s^{-1})$	$\theta(°\mathrm{K}) = \frac{\hbar\omega_l}{k}$
AgCl	12,3	4,01	$2{,}00 \cdot 10^{13}$	$3{,}50 \cdot 10^{13}$	267
AgBr	13,1	4,62	$1{,}52 \cdot 10^{13}$	$2{,}55 \cdot 10^{13}$	195

Les mobilités peuvent alors être mises sous une forme dépendant essentiellement des deux seuls paramètres θ et $\beta = m/m_e$:

$$\text{AgCl:}\ \mu_r = f(\alpha)\,\frac{10^2}{\theta^{1/2}}\,\frac{1}{\beta^{3/2}\left(1+11{,}2\,\frac{\beta^{1/2}}{\theta^{1/2}}\right)^3}\,e^{\theta/T}\ (\mathrm{cm}^2\,V^{-1}\,s^{-1})$$

$$\text{AgBr:}\ \mu_r = f(\alpha)\,\frac{1{,}20\cdot 10^2}{\theta^{1/2}}\,\frac{1}{\beta^{3/2}\left(1+9{,}30\,\frac{\beta^{1/2}}{\theta^{1/2}}\right)^3}\,e^{\theta/T}\ (\mathrm{cm}^2\,V^{-1}\,s^{-1})$$

où $f(\alpha) \approx 1{,}1$.

Nous n'indiquerons que les valeurs de θ obtenues pour les différents cristaux par le procédé de calcul indiqué plus haut (tableau II).

Tableau II

	θ °K
AgCl N° 1	346 ± 14
(AgCl N° 2	247 ± 29)
AgBr N° 1	201 ± 6
AgBr N° 2	183 ± 12
AgBr N° 3	182 ± 15
AgBr N° 4	188 ± 14

Le résultat se rapportant au cristal AgCl N° 2 doit être considéré comme une indication seulement. Le signal observé était faible et l'impulsion n'était pas linéaire, de sorte que son temps de montée est mal défini.

Pour plusieurs de nos cristaux, nous avons adapté une courbe en $T^{-3/2}$ aux points expérimentaux. Les coefficients de cette courbe, calculés par les moindres carrés, sont affectés d'une erreur deux fois plus grande que celle obtenue pour les coefficients de l'exponentielle. La probabilité d'une loi exponentielle pour la mobilité apparaît donc nettement plus grande que celle d'une loi en $T^{-3/2}$.

L'analyse des résultats expérimentaux sur la base d'une loi du type $\mu = A\ (e^{\theta/T} - 1)$ ne peut pas se faire d'une manière simple par la méthode des moindres carrés. Nous avons alors porté graphiquement $\ln(\mu/A_0)$ en fonction de $\ln(\theta_0/T)$ où A_0 et θ_0 sont des constantes voisines des valeurs attendues pour A et θ (fig. 17). Nous avons calculé la courbe $y = e^x - 1$ et construit la représentation de $\ln y$ en fonction de $\ln x$. Les points expérimentaux doivent pouvoir être ajustés sur la courbe calculée. Le déplacement vertical des coordonnées donne $\ln(A/A_0)$ et le déplacement horizontal $\ln(\theta/\theta_0)$.

Dans une première approximation, θ est déterminé en ne considérant que les points correspondant aux températures les plus élevées. Nous admettons ensuite que seules les impuretés ionisées interviennent dans un terme correctif du type $B \cdot T^{3/2}$ et nous calculons ce terme correctif sur la base des points précédant immédiatement le maximum. La courbe expérimentale est alors corrigée et A et θ sont déterminés dans une seconde approximation. Nous avons constaté qu'il était possible de varier l'exposant de T dans le terme correctif entre 1,2 et 1,7 sans que les résultats soient modifiés de plus de 1 à 2%.

A et θ étant connus, nous pouvons déterminer successivement m, α et m^*. Les valeurs obtenues sont données dans le tableau III. Les erreurs affectant ces valeurs ne pouvant pas se calculer, nous admettrons qu'elles

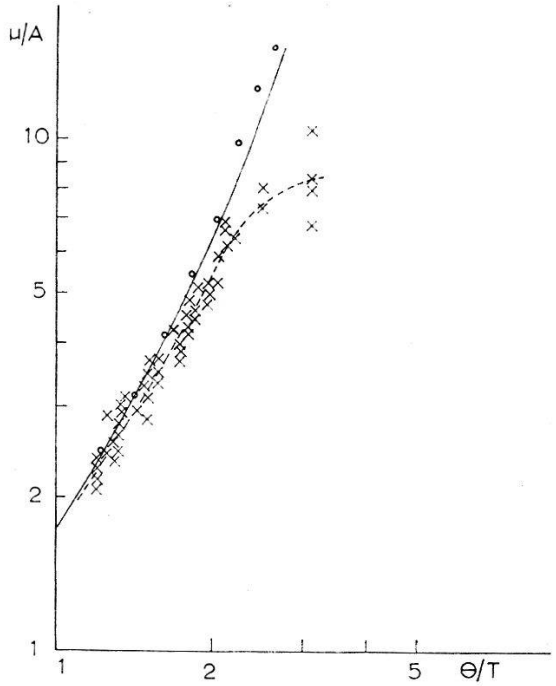


Fig. 17

Cristal AgBr N° 1

La mobilité est portée en fonction de l'inverse de la température.

× Points expérimentaux.

– – – Courbe expérimentale; o = Points corrigés.

——— Courbe théorique. (Seuls les points expérimentaux ayant une précision suffisante sont pris en considération.)

sont identiques à celles obtenues par le calcul des moindres carrés qui tenait compte de la dispersion des points expérimentaux. La dernière colonne indique le rapport m^*/m_e mesuré par BROWN et DART[18]) et KOBAYASHI et BROWN[17]).

Tableau III

	θ °K	α	m/m_e	m^*/m_e	m^*/m	m^*/m_e
AgCl N° 1	350 ± 15	2,13	0,35	0,47	1,34	0,28[18])
(AgCl N° 2	250 ± 30	1,50	0,10	0,15	1,50)	0,40[17])
AgBr N° 1	210 ± 6	1,77	0,21	0,27	1,29	
AgBr N° 2	191 ± 12	1,66	0,17	0,22	1,30	
AgBr N° 3	200 ± 15	1,76	0,20	0,26	1,30	
AgBr N° 4	167 ± 14	1,73	0,16	0,21	1,31	

On constate en comparant avec le tableau II que les valeurs obtenues pour θ ne sont pas modifiées de façon significative.

Dans le cas de AgCl, les résultats ne sont pas très cohérents. Pour le cristal N° 1, l'écart entre notre valeur de θ et la valeur semi-théorique est de 30%. Cependant, les valeurs obtenues pour le cristal N° 2, bien que

n'ayant que le caractère d'une estimation, laissent supposer qu'on doit s'attendre à obtenir en moyenne des valeurs plus correctes.

Dans le cas de AgBr par contre, les valeurs obtenues pour θ sont en bon accord avec la valeur semi-théorique. Ce fait confirme une interaction de l'électron avec la branche optique et fournit une justification du modèle du polaron.

Dans le cas du cristal AgCl N° 1, nous avons essayé d'adapter une courbe en $T^{3/2}$ à la partie basse température de nos résultats. Il n'est pas possible d'obtenir un accord satisfaisant entre les courbes théorique et expérimentale. L'exposant devrait être nettement plus grand que 3/2. Cependant, l'imprécision des mesures dans ce domaine ne permet pas de faire une analyse quantitative des résultats. Nous pouvons néanmoins supposer que, d'une part, les impuretés neutres et les dislocations n'ont pas une influence négligeable dans ce domaine de température. D'autre part, on pourrait mieux rendre compte de l'allure de la courbe expérimentale aux très basses températures (fig. 11 et 12) par la théorie de BLATT[10]) pour la diffusion par les impuretés ionisées.

B. Théorie de FEYNMAN-SCHULTZ

La comparaison des résultats expérimentaux avec la théorie de FEYNMAN-SCHULTZ se fait le plus aisément en exprimant la mobilité sous la forme:

$$\mu_r = \frac{e^5}{4\,\hbar\,k^2}\left(\frac{1}{n^2} - \frac{1}{\varepsilon}\right)\frac{m}{m^*}\,\frac{1}{\theta^2}\,\frac{F(\alpha)}{\alpha^2}\,(e^{\theta/T} - 1)$$

où

$$F(\alpha) = \frac{v_r/(2\,\hbar\omega/m)^{1/2}}{\alpha\,Z_r}$$

Dans le domaine des valeurs de α caractéristiques des cristaux étudiés, soit $1{,}5 \lesssim \alpha \lesssim 5$, la fonction $F(\alpha)$, obtenue par interpolation des valeurs numériques de SCHULTZ, est représentée avec une erreur ne dépassant pas 1% par l'expression:

$$(1 + 0{,}525\,\alpha)/(\alpha - 0{,}0532\,\alpha^2 - 0{,}0116\,\alpha^3)$$

On constate en particulier qu'elle reste comprise entre 1,17 et 1,24 pour $1{,}5 \leqslant \alpha \leqslant 4$. Elle peut donc être considérée, à une approximation suffisante, comme constante et égale à 1,20.

D'autre part, m^*/m est donné à mieux de 2% pour le domaine $1{,}5 \leqslant \alpha \leqslant 4$ par le polynôme

$$m^*/m = 1 + \alpha/6 + 0{,}025\,\alpha^2 + 0{,}004\,\alpha^3$$

qui est l'expression indiquée par FEYNMAN avec l'adjonction d'un terme en α^3 pour l'adapter aux résultats de SCHULTZ obtenus par calcu latrice électronique.

Ainsi, μ_r s'exprimera au moyen des deux seuls paramètres θ et α par l'expression numérique suivante:

$$\mu_r = 1{,}07 \cdot 10^5 \left(\frac{1}{n^2} - \frac{1}{\varepsilon}\right) \frac{m}{m^*} \frac{10^4}{\theta^2} \frac{F(\alpha)}{\alpha^2} \left(e^{\theta/T} - 1\right) (\mathrm{cm}^2\, V^{-1}\, s^{-1})$$

c'est-à-dire

$$\mu_r = 3{,}37 \cdot 10^3 \left(\frac{m}{m^*} \frac{1}{\alpha^2}\right) \frac{10^4}{\theta^2} \left(e^{\theta/T} - 1\right) \text{ pour AgCl}$$

$$\mu_r = 2{,}35 \cdot 10^3 \left(\frac{m}{m^*} \frac{1}{\alpha^2}\right) \frac{10^4}{\theta^2} \left(e^{\theta/T} - 1\right) \text{ pour AgBr}$$

On obtient dans ces conditions les résultats indiqués dans le tableau IV ci-dessous. (Les valeurs de θ sont naturellement les mêmes que celles du tableau III.)

Tableau IV

	α	m/m_e	m^*/m_e	m^*/m
AgCl N° 1	3,43	0,85	1,58	1,96
(AgCl N° 2	2,17	0,26	0,39	1,50)
AgBr N° 1	2,75	0,51	0,85	1,67
AgBr N° 2	2,55	0,40	0,64	1,61
AgBr N° 3	2,77	0,49	0,83	1,69
AgBr N° 4	2,67	0,38	0,63	1,65

Il n'existe pas d'estimation théorique précise de la masse effective dans un réseau polaire. TIBBS[19]) dans son étude du centre F dans NaCl estime que m/m_e est voisin de 1.

Les travaux de PEKAR (voir réf. 2) (approximation quasi adiabatique) sur l'énergie de dissociation thermique des centres F dans les halogénures d'alcalins lui permettent de tirer m/m_e de la comparaison avec les valeurs expérimentales de cette énergie. Ses résultats sont compris entre 1,70 et 3,25 mais ne semblent pas pouvoir être retenus étant donnée la valeur relativement faible du coefficient de couplage α.

Les résultats que nous avons obtenus sur la base des deux théories utilisées indiquent que m/m_e ne dépasse pas 0,5. Par contre les deux théories fournissent des valeurs nettement différentes pour la masse du polaron; d'une part de l'ordre de 0,20 m_e d'autre part voisine de 0,75 m_e soit une différence d'un facteur 4.

VI. Conclusions

1. Nos expériences n'ont pas mis en évidence une conduction par trous positifs. Ces derniers ont vraisemblablement une masse effective très élevée. Il est en effet peu probable que la densité des trappes soit beaucoup plus grande pour les trous positifs que pour les électrons.

2. Pour tous les cristaux, il existe une zone superficielle fortement perturbée dans laquelle la densité des trappes est plus élevée que dans le volume du cristal. Ceci impose une limitation de l'intensité d'irradiation pour éviter la formation d'une charge d'espace importante, susceptible d'empêcher toute conduction.

3. Les cristaux de bromure d'argent semblent avoir une sensibilité pour la détection des radiations ionisantes nettement supérieure à celle des cristaux de chlorure.

4. L'influence de la diffusion de l'électron par des impuretés ionisées apparaît nettement et suffit à expliquer la décroissance de la mobilité aux basses températures ($< 100°$ K); une loi en $T^{3/2}$ paraît toutefois douteuse.

L'intervention d'un effet de «multiple trapping» nous semble exclue étant donnée la forme des impulsions observées.

5. Le modèle du polaron faisant intervenir une interaction de l'électron avec la seule branche optique des vibrations du réseau est confirmé.

6. Le domaine de température exploré n'est pas suffisamment étendu pour permettre l'étude d'une variation éventuelle du θ statistique avec la température. Sur l'ensemble du domaine, ce θ est en bon accord avec le θ dynamique correspondant à la seule fréquence $\omega(k = 0)$.

7. Les valeurs obtenues pour la masse du polaron paraissent raisonnables. Cependant, l'écart entre les valeurs déduites sur la base des expressions de Low et Pines d'une part et de Schultz d'autre part est considérable.

Dans le cas de AgCl, l'expression de Low et Pines donne une masse m^* nettement inférieure à la masse m_e, tandis que celle de Schultz donne une valeur de m^* supérieure à m_e.

Dans le cas de AgBr, les deux masses du polaron sont inférieures à la masse de l'électron libre bien que différentes d'un facteur 4 environ.

8. Notre étude expérimentale ne fournit pas de donnée susceptible d'appuyer l'une des théories en faveur de l'autre. Seule une détermination directe de la masse du polaron, par résonance cyclotron sur des cristaux très purs par exemple, donnerait une valeur indépendante des méthodes de calcul théoriques et servirait de test de validité pour celles-ci.

Nous remercions la Commission Suisse de la Science Atomique de son appui financier.

Bibliographie

[1]) G. R. Allcock, Adv. Phys. *5*, 412 (1956).
[2]) H. Haken, Halbleiterprobleme II, W. Schottky, Ed. (1955).
[3]) T. D. Lee, F. E. Low et D. Pines, Phys. Rev. *90*, 297 (1953).
[4]) F. E. Low et D. Pines, Phys. Rev. *98*, 414 (1955).
[5]) R. P. Feynman, Phys. Rev. *97*, 660 (1955).
[6]) T. D. Schultz, Phys. Rev. *116*, 526 (1959).

[7]) E. Conwell et V. F. Weisskopf, Phys. Rev. *77*, 388 (1950).
[8]) H. Brooks, Phys. Rev. *83*, 879 (1951).
[9]) P. P. Debye et E. Conwell, Phys. Rev. *93*, 693 (1954).
[10]) F. J. Blatt, J. Phys. Chem. Solids *1*, 262 (1956).
[11]) C. Erginsoy, Phys. Rev. *79*, 1013 (1950).
[12]) J. Bardeen et W. Shockley, Phys. Rev. *80*, 72 (1950).
[13]) D. L. Dexter et F. Seitz, Phys. Rev. *86*, 964 (1952).
[14]) L. Chollet et J. Rossel, Helv. Phys. Acta *32*, 476 (1959).
[15]) C. Allemand et J. Rossel, Helv. Phys. Acta *27*, 519 (1954).
[16]) R. R. Newton, Phys. Rev. *75*, 234 (1949).
[17]) K. Kobayashi et F. C. Brown, Phys. Rev. *113*, 507 (1959).
[18]) F. C. Brown et F. E. Dart, Phys. Rev. *108*, 281 (1957).
[19]) S. R. Tibbs, Trans. Faraday Soc. *35*, 1471 (1939).