



HAL
open science

Spectres Raman des Silicates - Vers une meilleure compréhension de l'influence du degré de polymérisation sur les intensités

Vanessa Labet, Philippe Colomban

► To cite this version:

Vanessa Labet, Philippe Colomban. Spectres Raman des Silicates - Vers une meilleure compréhension de l'influence du degré de polymérisation sur les intensités. RCTF2014 14ème Rencontre des Chimistes Théoriciens Francophones, Jun 2014, Paris, France. hal-01611695

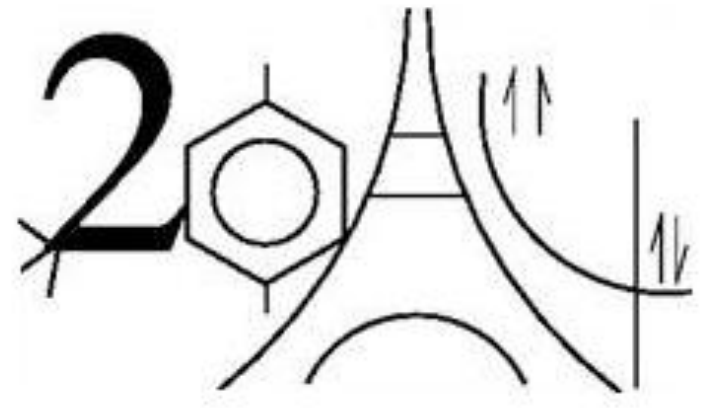
HAL Id: hal-01611695

<https://hal.sorbonne-universite.fr/hal-01611695>

Submitted on 6 Oct 2017

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Spectres Raman des Silicates

Vers une meilleure compréhension de l'influence du degré de polymérisation sur les intensités

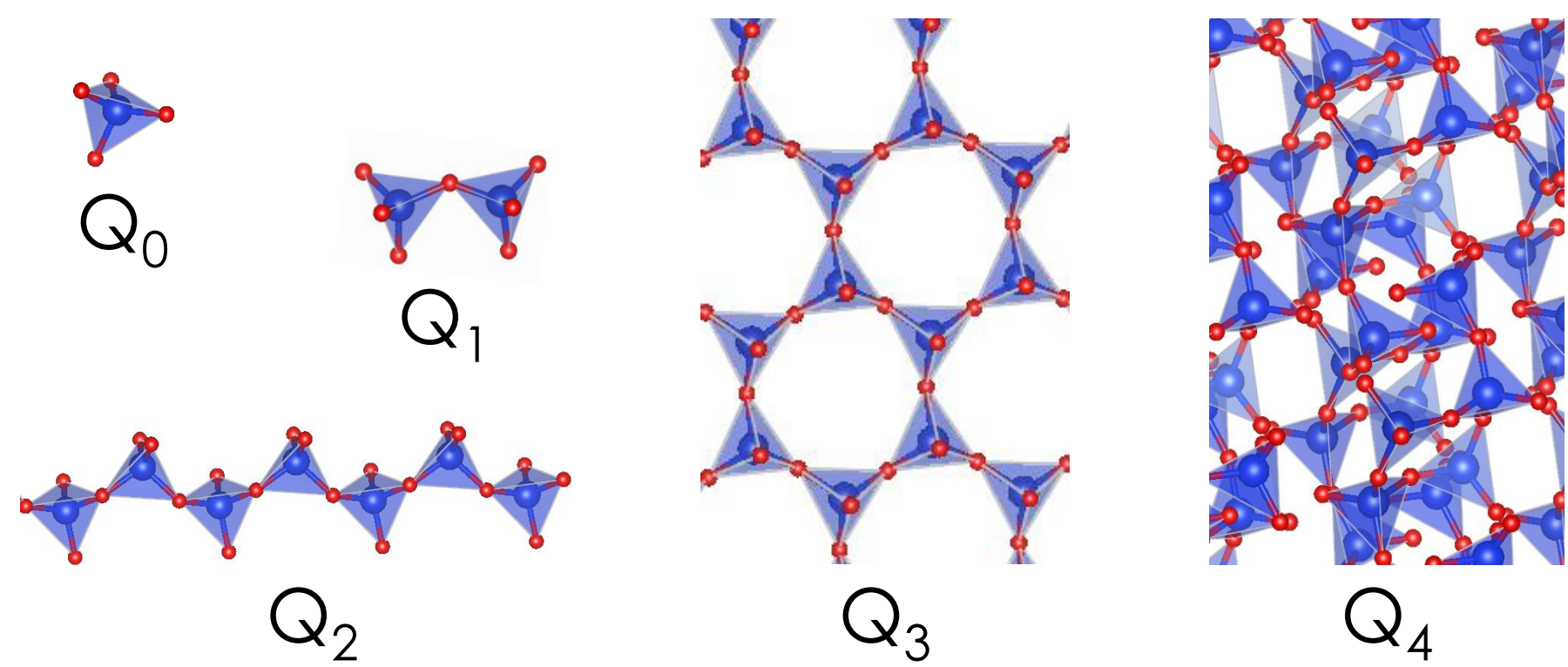
Vanessa LABET, Philippe COLOMBAN

Sorbonne Universités, UPMC Univ Paris 6, UMR 8233, MONARIS, 75005, Paris
CNRS, UMR 8233, MONARIS, 75005, Paris

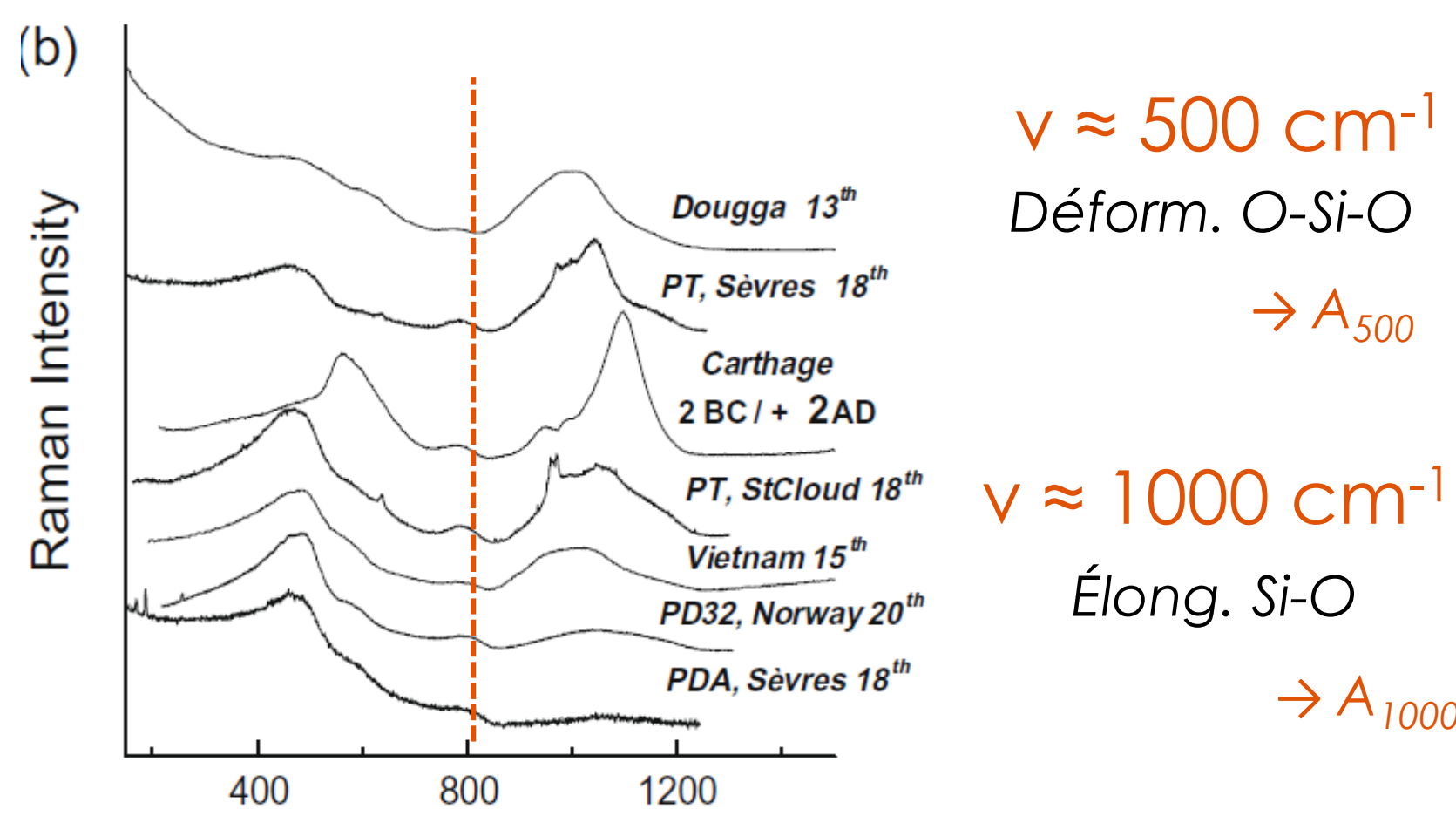
1. Contexte

A. Classification des silicates

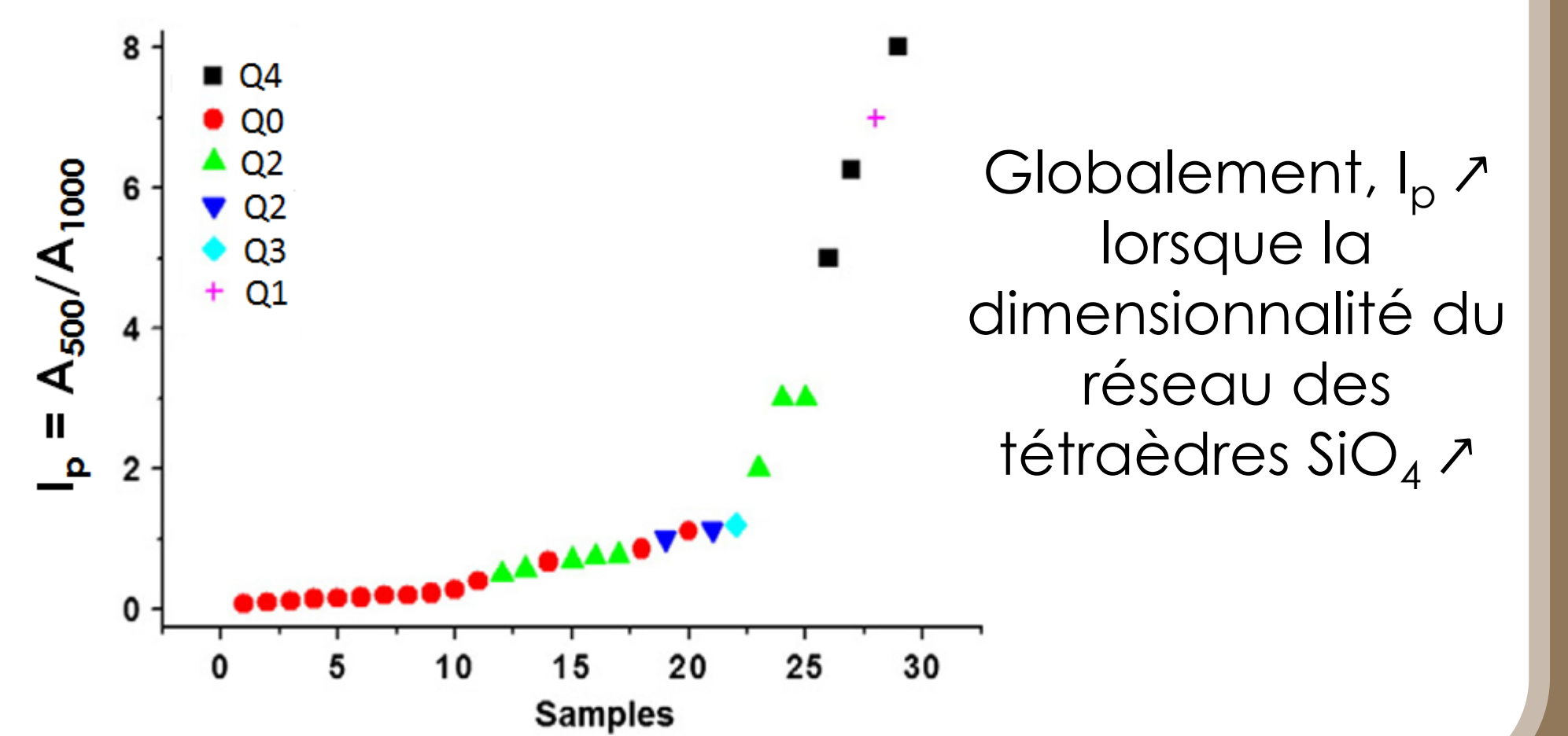
Basé sur le nombre d'oxygène pontant (O_{BO}) par silicium



B. Spectre Raman d'un silicate amorphe 2 bandes intenses :



C. Influence du degré de polymérisation du réseau des td « SiO₄ »



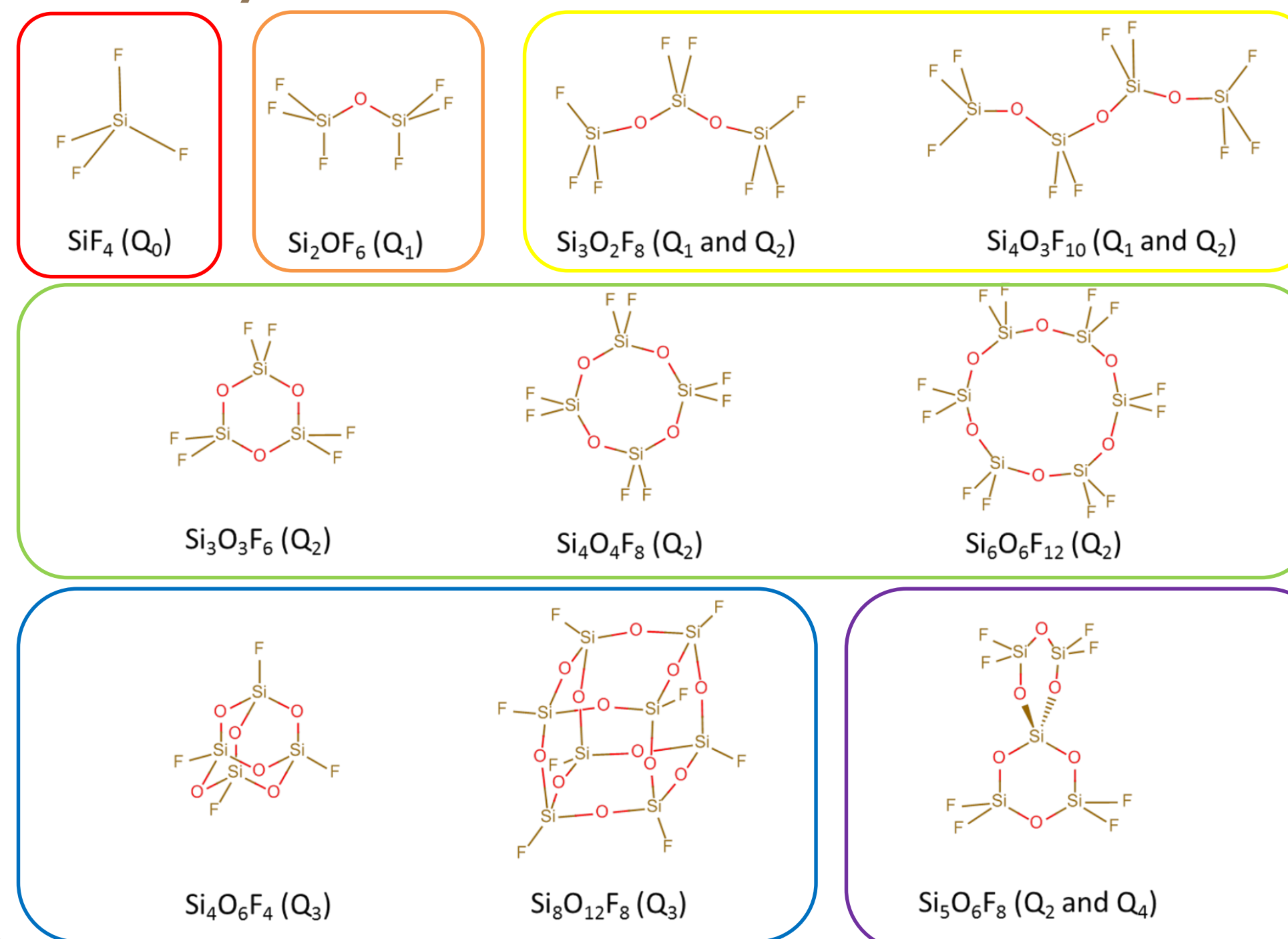
2. Objectif

En pratique, l'indice I_p permet de prédire Q_n . Pourquoi ? => **Besoin d'un support théorique !**

3. Démarche

1. Construction de modèles structuraux pour les différents types de coordination des silicates.
2. Modélisation des spectres Raman par DFT
3. Validation de la stratégie par confrontation à l'expérience (indice I_p)
4. *Décortication du modèle pour déterminer l'origine du phénomène. (en cours)*

4. Systèmes étudiés - Méthodes calc.



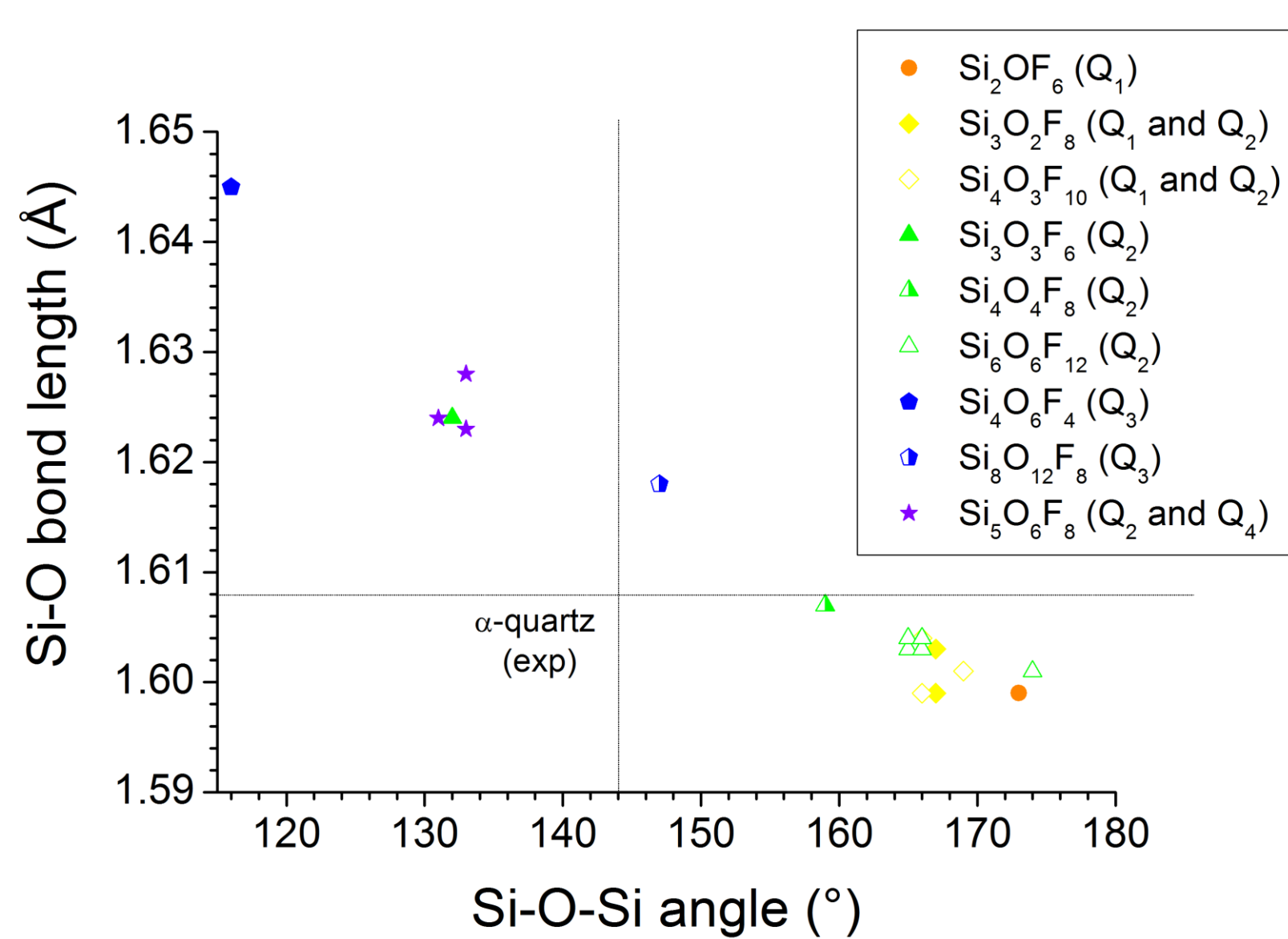
Ingrédients du modèle :

- Structures discrètes
- Maximisation du nbre de Si équivalents / structure
- **Substitution des O non pontants (chargés -) par des F (isoélec.)**

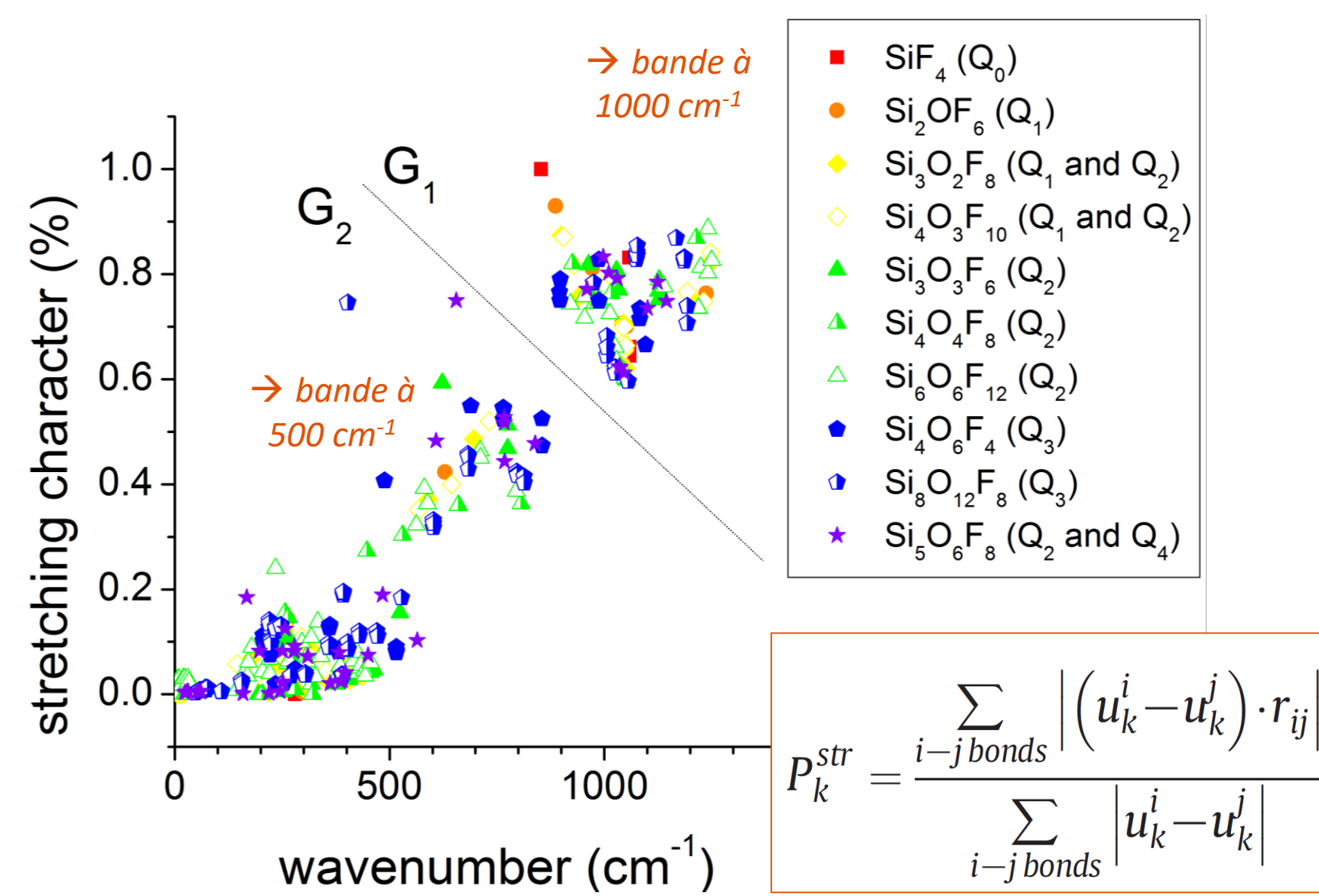
Méthode de calcul :

- DFT (fonctionnelle B3LYP)
- Base def2-TZVPD
- Logiciel Gaussian 09
- **Calcul freq: Correction masse F m(F) = m(O)**

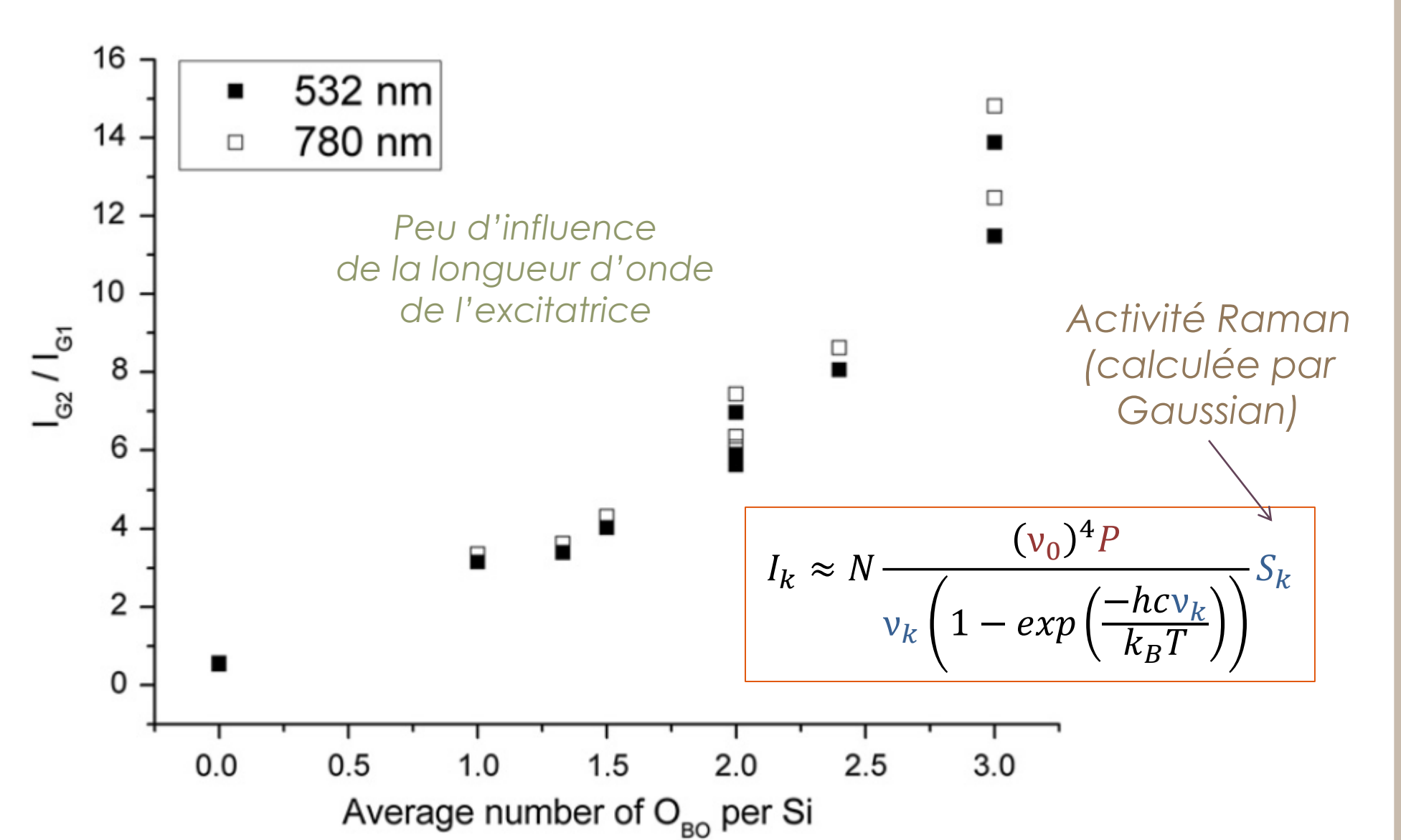
5. Validation du modèle



Bonne reproduction de la **flexibilité des angles Si-O-Si** observée dans les silicates amorphes ($120^\circ \rightarrow 180^\circ$)

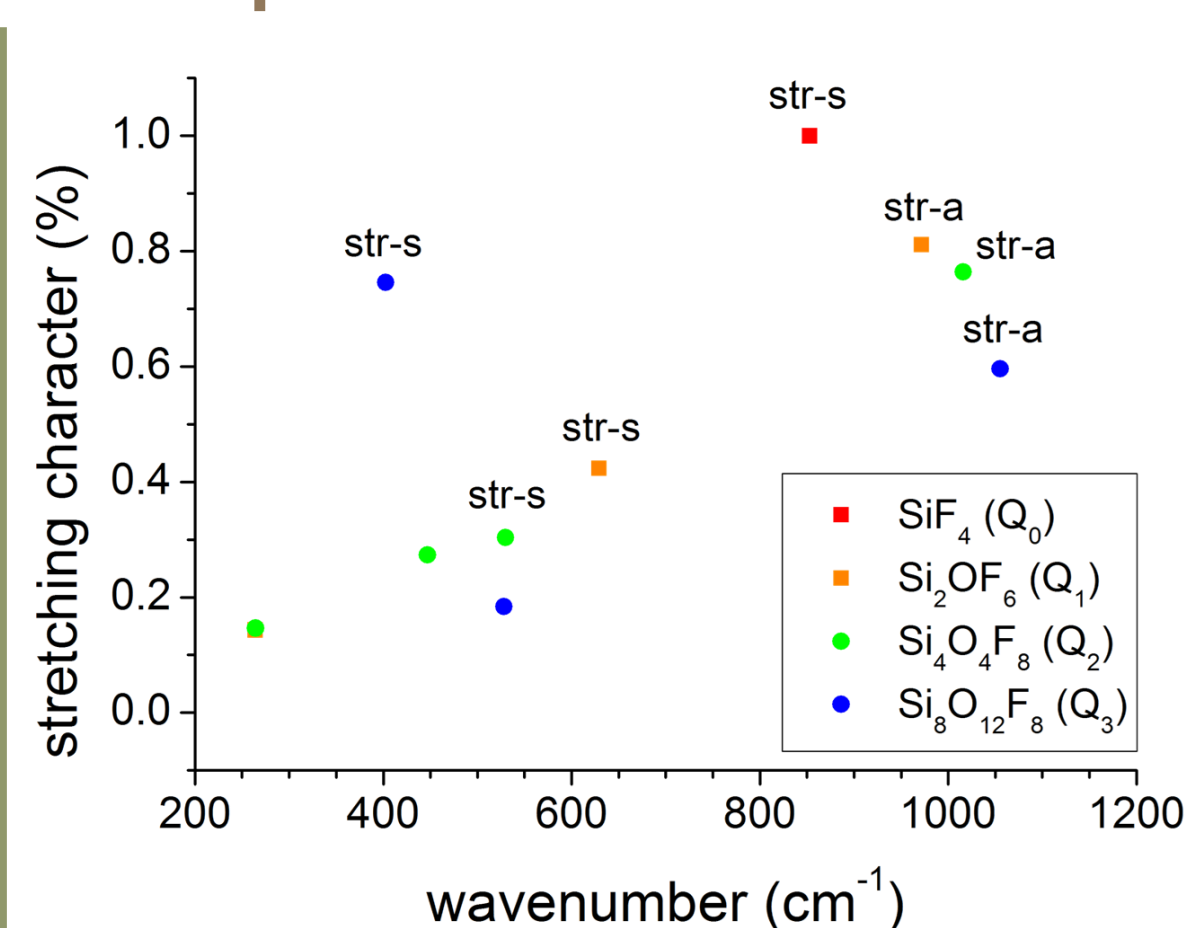
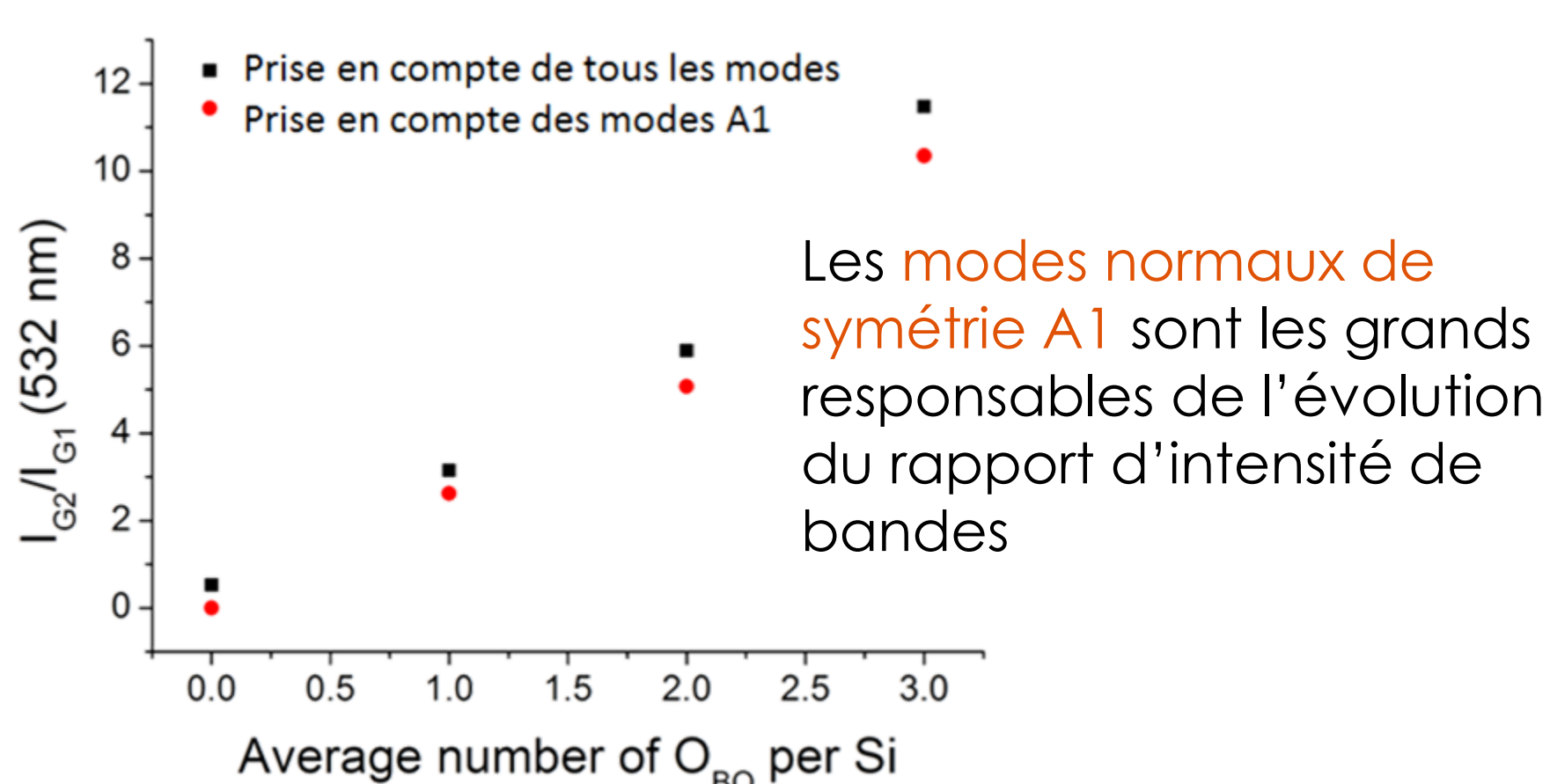


L'évaluation du **caractère d'élongation** [1] des modes normaux permet de déterminer lesquels doivent être considérés comme contribuant à chacune des 2 bandes.



Bonne reproduction qualitative de l'évolution de l'indice I_p en fonction du **degré de polymérisation** du réseau des td « SiO₄ ».

6. Premiers éléments d'explications



Q_n : Lorsque $n \nearrow$,
• la ν_k des modes d'élongation **antisym** \nearrow ,
• celle des modes d'élongation **sym** \searrow

↓
Contribue à expliquer l'évolution de I_p en fonction de n

7. Conclusions et Perspectives

- L'ensemble des 10 silicates étudiés semble former un modèle adéquate pour rationaliser l'évolution de I_p avec n .
- Reste à rationaliser l'évolution des fréquences des modes d'élongation sym et antisym avec n .

Références

- [1] N. Zotov et al., Phys. Rev. B 60 (1999) 6383
[2] V. Labet and Ph. Colomban, J. Non-Cryst. Solids 370 (2013) 10