

Université de Montréal

**Simulation des mécanismes de dissipation mécanique
interne du silicium amorphe**

par

Carl Lévesque

Département de physique
Faculté des arts et des sciences

Mémoire présenté en vue de l'obtention du grade de
Maître ès sciences (M.Sc.)
en Physique de la matière condensée

31 décembre 2022

Université de Montréal

Faculté des arts et des sciences

Ce mémoire intitulé

Simulation des mécanismes de dissipation mécanique interne du silicium amorphe

présenté par

Carl Lévesque

a été évalué par un jury composé des personnes suivantes :

Ahmad Hamdan

(président-rapporteur)

Normand Mousseau

(directeur de recherche)

François Schiettekatte

(codirecteur)

Laurent J. Lewis

(membre du jury)

Résumé

Ce mémoire présente nos travaux sur les simulations numériques des mécanismes de dissipation mécanique interne (DMI) dans le a -Si. Ce travail s'inscrit dans le contexte des détecteurs d'ondes gravitationnelles, où les excitations à basses énergies dans les matériaux des miroirs constituent la principale source de bruit. On introduit le cadre théorique dans lequel le mémoire s'inscrit, soit le théorème de fluctuation-dissipation et les théories de l'état de transition et systèmes à deux niveaux, et on fait un court résumé de l'état des connaissances expérimentales sur le sujet. On présente ensuite les méthodes numériques : les méthodes d'exploration de l'énergie potentielle, les potentiels interatomiques et les méthodes de préparation des configurations atomiques, de même qu'une revue des travaux théoriques sur la DMI. Les résultats principaux du projet de maîtrise, incluant l'analyse des systèmes à deux niveaux dans le a -Si et le calcul de la DMI, sont présentés au troisième chapitre, sous la forme d'un article de revue. On termine par détailler nos travaux sur la DMI en employant la spectroscopie mécanique.

Mots clés : Systèmes désordonnés, matériaux amorphes, silicium, physique numérique, ondes gravitationnelles.

Abstract

This master's thesis presents our work on numerical simulations of internal mechanical dissipation (IMD) mechanisms in *a*-Si. This work is done in the context of gravitational wave detectors, where low-energy excitations in the materials of the mirrors are the main source of noise. We introduce the theoretical framework of the project, starting with the fluctuation-dissipation theorem, and following with the transition state theory and the two-level systems (TLS) theory. A short review of experimental work on the subject is also presented. This is followed by a presentation of the numerical methods: potential energy landscape exploration techniques, interatomic potentials and atomic configurations preparation methods, as well as a review of numerical studies of the IMD. The main results of the thesis, an analysis of the two-level systems in *a*-Si and calculations of the IMD, are presented in chapter 3, in the form of a journal article. We finish by detailing our work on IMD using mechanical spectroscopy.

Keywords : Disordered systems, amorphous materials, silicon, numerical physics, gravitational waves.

Table des matières

Résumé	v
Abstract	vii
Liste des tableaux	xi
Liste des figures	xiii
Liste des sigles et des abréviations	xvii
Remerciements	xix
Introduction	1
Chapitre 1. Théorie	5
1.1. Théorème de fluctuation-dissipation	5
1.2. Théorie de l'état de transition	7
1.3. Systèmes à deux niveaux dans les matériaux amorphes	9
1.4. Dissipation et systèmes à deux niveaux	11
1.5. Données expérimentales	14
1.6. Conclusion	16
Chapitre 2. Méthodes	19
2.1. Méthodes d'exploration du paysage d'énergie potentielle	19
2.1.1. Méthode de la bisection de trajectoire	19
2.1.2. ART nouveau	20
2.2. Potentiels interatomiques	23
2.3. Préparation du <i>a</i> -Si	25
2.4. Études numériques	26
2.5. Conclusion	28

Chapitre 3. Article 1 : Internal mechanical dissipation mechanisms in amorphous silicon	29
Auteurs.....	29
Résumé.....	29
Abstract.....	30
3.1. Introduction.....	30
3.2. Theory and methods.....	31
3.2.1. Two-level systems.....	31
3.2.2. Atomic models.....	33
3.2.3. Activation-Relaxation Technique.....	34
3.3. Results and discussion.....	34
3.3.1. Sampling.....	34
3.3.2. Categorizing TLSs.....	36
3.3.3. Mean trends.....	37
3.3.4. Relation between structure and mechanical loss.....	38
3.3.5. Loss angle calculations.....	42
3.4. Summary and conclusion.....	43
3.5. Code and data availability.....	45
3.6. Acknowledgments.....	45
3.7. Supplementary material.....	46
Chapitre 4. Spectroscopie mécanique dans le α-Si	49
4.1. Introduction et théorie.....	49
4.2. Modèle et paramètres.....	50
4.3. Résultats et discussion.....	51
4.4. Spectroscopie mécanique avec Monte-Carlo cinétique.....	52
4.5. Conclusion.....	54
Conclusion	55
Références bibliographiques	57

Liste des tableaux

2.1	Paramètres du potentiel Stillinger-Weber modifié [86]	25
3.1	Characteristics of <i>a</i> -Si configurations prepared by melt-quench (this work) and by bond-exchange (NHN) [35, 91]. Uncertainties in the first column correspond to the standard deviation computed over 200 independent samples.	39
4.1	52

Liste des figures

0.1	Sources de bruits dans LIGO. D'après S. J. Waldman et coll. [88].	2
1.1	Exemple d'une transition dans le a -Si tirée de l'article du mémoire. On y montre les deux minimums et le point de selle (saddle) L'atome se déplaçant le plus est en rouge. Les atomes en jaune brisent ou forment un lien avec l'atome rouge. Les lignes vertes décrivent les trajectoires des atomes entre les images.	8
1.2	Diffusion d'une lacune dans un solide en deux dimensions avec sa représentation en énergie potentielle.	9
1.3	Capacité calorifique de la silice en phases vitreuse et cristalline. D'après Zeller et Pohl [92].	10
1.4	Représentation en une dimension d'un TLS.	10
1.5	Effet de la température de recuit sur l'angle de perte dans des alliages Ta_2O_5 - ZrO_2 . Tiré de Lalande et coll. [50].	15
1.6	Mesures d'angle de perte dans le a -Si pour différentes températures de dépôt. Tiré de Liu et coll. [54].	16
1.7	Mesures d'angle de perte d'un dépôt de a -Si le a -Si en fonction de la température à différentes fréquences. Tiré de Murray et coll. [64].	17
2.1	Densité de barrières des évènements trouvés par ARTn dans une configuration de a -Si de 1000 atomes.	22
2.2	Schématisation d'un évènement WWW. [8]	26
2.3	Angle de perte dans la silice, tiré de Billman et coll. [9].	27
3.1	Potential energy landscape representation of a two-level system. The minima 1 and 2 are connected by a saddle point S. The mean barrier is V and the asymmetry is Δ	32
3.2	Barrier and asymmetry of events found by ART. The gray dotted lines show the asymmetry cutoff.	35

3.3	Root of squared atomic displacement in each TLS as a function of the energy barrier for the events plotted in Fig. 3.2. Symbols are color-coded according to the number of active atoms during the event (right scale).....	36
3.4	Example of bond defect hopping event (type 1) showing the system at both minima and at the saddle point. The central atom is in red. The atoms in yellow change their bonding status with the main atom. The green lines show the displacement of the atoms between the images.	37
3.5	Example of a bond exchange TLS (type 2). The red atoms are the main atoms. The yellow atoms break a bond with one red atom and form a new bond with the other red atom. The green lines show the displacement of the atoms between the images.	38
3.6	Barrier distribution of bond defect hopping (cyan, full bars) and bond exchange TLSs (empty bars).....	39
3.7	Smoothed distribution of the bond lengths (top) and the bond angles (bottom) of the main active atom in the bond defect hopping (blue dashed curves) and bond exchange TLSs (red dotted curves). The black dotted lines represent the first peak and bond angle distribution of the RDF of our <i>a</i> -Si configurations. A raw histogram (blue, top) is also shown to illustrate the effect of the smoothing.	40
3.8	Energy barrier distribution for the TLSs in models obtained by the melt-quench and NHN preparation methods (described in text).....	41
3.9	Density of the three types of TLSs in quenched <i>a</i> -Si (blue) and NHN <i>a</i> -Si (orange). 41	
3.10	Internal mechanical dissipation computed for quenched <i>a</i> -Si (black) and NHN <i>a</i> -Si (red). The pale curves show the contributions from individual TLSs. Blue circles and blue diamonds are experimental data in <i>a</i> -Si deposited at 45°C and 200°C respectively, from Ref. [54].....	43
3.11	Radial distribution functions for the melt-quench and the nearly hyperuniform <i>a</i> -Si structures. Both distributions are similar and show no outstanding differences.	46
3.12	Red solid curve : Loss angle of melt-quench <i>a</i> -Si structures shown in Fig. 10 of the main document. Black dotted line : Loss angle of melt-quench <i>a</i> -Si structures computed with all activated events found below a barrier of 1.2 eV. Both curves are almost perfectly superimposed between 124 K and 300 K, confirming that the selection criteria for TLSs have no incidence on our conclusions.	47

4.1	Exemple d'une déformation périodique appliquée à une fréquence de 100GHz (bleu) et de la contrainte en résultant (rouge).	51
4.2	Angles de perte dans le <i>a</i> -Si obtenus par spectroscopie mécanique simulée en fonction de la fréquence. Les simulations ont été faites à 300 K (vert), 200 K (jaune) et 100 K (bleu). Les lignes pointillés sont un ajustement de l'équation 4.3.1 sur les données.	52

Liste des sigles et des abréviations

<i>a</i> -Si	Silicium amorphe
ARTn	Technique d'activation-relaxation nouveau
CRN	Réseau aléatoire continu, de l'anglais <i>Continouus Random Network</i>
DMI	Dissipation mécanique interne
GWD	Détecteur d'ondes gravitationnelles <i>Gravitational-Wave Detector</i>
kART	Technique d'activation-relaxation cinétique
LIGO	Observatoire d'ondes gravitationnelles par interférométrie laser de l'anglais <i>Laser Interferometer Gravitational-Wave Observatory</i>
PEP	Paysage d'énergie potentielle
TLS	Système à deux niveaux, de l'anglais <i>Two level system</i>
WWW	Wooten-Winer-Weaire

Remerciements

Plusieurs personnes m'ont soutenu de diverses façons pendant ma maîtrise et m'ont permis de la mener à terme. Il est essentiel de les mentionner ici.

Premièrement, je tiens à remercier mes directeurs de recherche, Normand Mousseau et François Schiettekatte de m'avoir offert l'opportunité de travailler sur ce projet. Merci surtout de m'avoir guidé et conseillé tout au long de ma maîtrise. Votre aide a été précieuse.

Merci à mes collègues tant du groupe de François : Martin Chicoine, Émile Lalande, Alexandre Lussier et Pierre Vinchon que de celui de Normand : Vincent Binette, Sébastien Côté, Roger Gaudreault, Renaude Girard, Aynour Khosravi, Mijanur Rahman. Merci aussi aux stagiaires, Félix St-Denis et Gabriel Sasseville. Travailler et discuter avec vous a été agréable et enrichissant. Merci aussi à Sjoerd Roorda pour ses judicieux conseils et commentaires.

Merci spécialement à mes camarades de bureau Joseph Lefèvre, Eugène Sanscartier et Léo Lamy-Laliberté pour les discussions stimulantes et les bons moments passés ensemble. Faire ma maîtrise en votre compagnie a vraiment été un plaisir.

Merci aussi aux groupes de matière condensée et de plasma pour les pauses café et les diners divertissants.

Enfin merci à mes parents pour leur soutien et leurs encouragements pendant mes études.

Introduction

Le Laser Interferometer Gravitational-Wave Observatory (LIGO) a observé pour la première fois en 2015 des ondes gravitationnelles issues de la fusion de trous noirs, ce qui lui a valu le prix Nobel de physique en 2017. D'autres types événements ont été observés, tels que la fusion d'étoiles à neutrons, mais les événements restent peu nombreux et le détail des signaux reste difficile à percevoir en raison de la sensibilité limitée par différentes sources de bruit. Les ondes gravitationnelles produisent des déformations de l'espace qui sont au maximum de l'ordre de 10^{-23} . Pour mesurer des changements de longueurs à aussi petite échelle, les détecteurs d'ondes gravitationnelles (GWD) utilisent l'interférométrie laser : LIGO est un système de deux interféromètres de Michelson avec des bras longs de 4 km. Des ondes gravitationnelles induisant une contrainte de l'espace temps de 10^{-23} induiront donc un déplacement des miroirs de 10^{-18} m. Des cavités de Fabry-Pérot recyclent le signal du laser ce qui multiplie par un facteur d'environ 100 la variation du patron d'interférence associé aux déformations des bras. Pour réfléchir le faisceau, des miroirs diélectriques constitués d'une succession de couches épaisses d'un quart de la longueur d'onde du laser ($\lambda = 1064$ nm dans la version actuelle de LIGO) chaque. Les couches sont faites en alternance d'un matériau avec un grand indice de réfraction et d'un matériau avec un faible indice de réfraction, présentement du SiO_2 amorphe ($n = 1.45$ pour $\lambda = 1064$ nm) et du Ta_2O_5 amorphe dopé au TiO_2 ($n = 2.10$ pour $\lambda = 1064$ nm) [83].

La principale source de bruit de LIGO dans son domaine de fréquence le plus sensible (vers 50 Hz Fig. 0.1) provient de fluctuations thermiques dans les couches à fort indice de réfraction des miroirs. Ces fluctuations sont reliées à des mécanismes de dissipation mécanique interne par le théorème de fluctuation-dissipation [13, 14, 49], qui seraient elle-mêmes causées par des excitations à basses énergies, un phénomène propre aux matériaux amorphes. L'origine de ces excitations à basse énergie est encore mal comprise, il s'agit d'un problème vieux de plus 50 ans en physique de la matière condensée. En conséquence, des mesures de la dissipation mécanique interne, la partie imaginaire du module de Young, sont utilisées pour tenter de minimiser l'amplitude des fluctuations thermiques dans un matériau donné.

Ce projet de maîtrise vise à approfondir notre compréhension de la dissipation mécanique interne à l'échelle atomique en utilisant la puissance de la physique numérique. Le silicium amorphe (*a*-Si) est un excellent système modèle pour cette étude. D'abord, il s'agit d'une option pour remplacer le Ta_2O_5 dans les miroirs des futures générations de détecteurs d'ondes

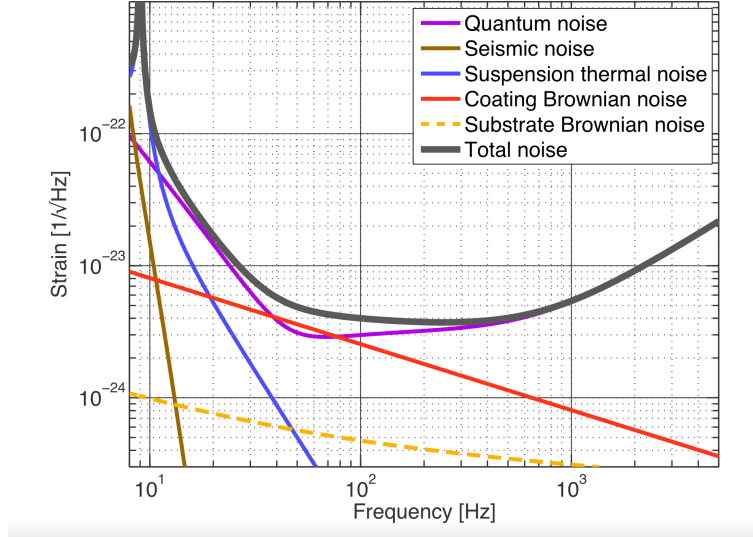


Fig. 0.1. Sources de bruits dans LIGO. D’après S. J. Waldman et coll. [88].
La droite rouge est le bruit thermique des miroirs.

gravitationnelles [73] et des mesures expérimentales de sa dissipation mécanique interne ont déjà été publiées [54]. De plus, il s’agit d’un matériau monoatomique, ce qui simplifie l’analyse et permet d’avoir plus aisément une compréhension globale des mécanismes à l’œuvre. Enfin, des potentiels interatomiques bien caractérisés et à faibles coûts de calcul ont été développés pour ce système [86].

Les fréquences les plus sensibles des GWD se trouvant aux alentours de 50 Hz, les mécanismes causant la dissipation mécanique interne à ces fréquences ont des temps caractéristiques de l’ordre de la milliseconde à la seconde, correspondant à des fréquences du kHz au Hz. Il serait intéressant d’étudier ces mécanismes à l’aide de simulations numériques afin de mieux les comprendre. Cette approche fait face à un défi de taille: les temps caractéristiques des phénomènes à l’étude sont inaccessibles à la dynamique moléculaire : la période d’un phonon dans un solide est d’environ 100 fs, donc des pas de temps de l’ordre de la femtoseconde sont requis pour bien décrire le déplacement des atomes. Pour simuler une seconde d’évolution, il faut 10^{15} pas de temps, ce qui implique des temps de calculs de l’ordre de l’âge de l’Humanité. En conséquence, il est nécessaire de se tourner vers des méthodes alternatives. La Technique d’Activation-Relaxation nouveau (ARTn) est privilégiée ici [6]. Cette technique explore le paysage d’énergie potentielle (PEP) des solides à température nulle pour trouver les points de selle. Elle peut donc trouver efficacement des événements avec de grands temps caractéristiques.

Le mémoire présente dans un premier chapitre un survol de notre compréhension de la physique entourant la dissipation mécanique interne dans les matériaux désordonnés. Le deuxième chapitre explique les différentes méthodes numériques utilisés dans le projet de maîtrise. Le troisième chapitre est la reproduction d’un article publié dans la revue *Physical*

Review Materials. Dans cet article, nous montrons que la dissipation mécanique interne du *a*-Si est principalement attribuable à deux catégories indépendantes de systèmes à deux niveaux. Nous étudions l'effet de la routine de préparation du *a*-Si et nous calculons d'angle de perte.

Chapitre 1

Théorie

Ce chapitre introduit les concepts physiques nécessaires à la compréhension du reste du mémoire. D'abord, le théorème de fluctuation-dissipation est introduit dans le cadre des solides désordonnés. Ensuite, une explication de la théorie de l'état de transition est donnée. On poursuit avec une introduction à la théorie des systèmes à deux niveaux, qu'on applique à la section suivante pour expliquer la dissipation mécanique dans les solides amorphes. Enfin, on fait un survol des techniques et résultats expérimentaux concernant la dissipation mécanique interne dans les matériaux amorphes.

1.1. Théorème de fluctuation-dissipation

Le théorème de fluctuation-dissipation établit une relation entre la dissipation qu'un système exerce suite à une perturbation externe et les fluctuations aléatoires du système lorsque ce dernier est à l'équilibre thermodynamique (sans perturbation). Il a été proposé par Callen et Welton en 1951 [14], et a été davantage généralisé par la suite [49]. On peut l'écrire de manière générale comme

$$\chi_{BA}(\omega) = \frac{1}{k_B T} \int_0^\infty dt \langle \dot{A}_{(0)}; B_{(t)} \rangle e^{-i\omega t} \quad (1.1.1)$$

où χ est l'admittance généralisée d'un système par rapport à une force externe généralisée F périodique de fréquence ω . A est la quantité conjuguée à F et B la quantité physique variant en réponse à F . Les crochets dans l'intégrale sont une moyenne sur les quantités à l'équilibre thermodynamique et le point désigne une dérivée temporelle.

Des manifestations du théorème de fluctuation-dissipation existent dans plusieurs systèmes physiques. Par exemple la relation d'Einstein (1905) relie directement le coefficient de diffusion d'une particule brownienne à son coefficient de friction visqueuse. Dans cet exemple, l'admittance est la mobilité de la particule brownienne $\mu_{(\omega)}$, A est le conjugué d'une force motrice périodique, soit la position x , et B est réponse de la particule à la force motrice, donc la vitesse u . L'équation 1.1.1 devient alors

$$\mu_{(\omega)} = \frac{1}{k_B T} \int_0^\infty dt \langle \dot{x}_{(0)}; u_{(t)} \rangle e^{-i\omega t} = \frac{1}{k_B T} \int_0^\infty dt \langle u_{(0)}; u_{(t)} \rangle e^{-i\omega t}. \quad (1.1.2)$$

À fréquence nulle, l'intégrale donne directement le coefficient de diffusion D et on retrouve la relation d'Einstein,

$$\mu_{(\omega=0)} = \frac{1}{k_B T} \int_0^\infty dt \langle u_{(0)}; u_{(t)} \rangle = \frac{D}{k_B T}. \quad (1.1.3)$$

Enfin, la mobilité peut être réécrite $\mu = 1/m\gamma$, avec m la masse de la particule brownienne et γ le coefficient de friction. L'éq 1.1.3 devient donc

$$\frac{1}{m\gamma} = \frac{D}{k_B T}. \quad (1.1.4)$$

On retrouve ainsi l'expression habituelle de la relation d'Einstein. Une autre manifestation du théorème est le bruit de Schottky dans une résistance : les collisions qui sont à l'origine de la dissipation de l'énergie cinétique des électrons sont également la source de la fluctuation du courant.

Dans le contexte des détecteurs d'ondes gravitationnelles (GWD) les fluctuations à l'origine du bruit thermique sont des fluctuations de l'épaisseur des couches des miroirs diélectriques [30]. Elles proviennent de déformations mécaniques résultant de petits déplacements des atomes dans les matériaux amorphes qui constituent les miroirs. Par le théorème de fluctuation-dissipation on peut relier ces fluctuations à un mécanisme de dissipation, soit l'atténuation d'une onde mécanique dans le matériau en suivant la référence [51].

D'après Callen et Welton [14] le théorème de fluctuation-dissipation montre que l'on peut exprimer la densité spectrale, à une fréquence ω , des fluctuations d'une observable $x_{(t)}$

$$S_{x(\omega)} = \frac{4k_B T}{\omega^2} |\Re [Y_{(\omega)}]| \quad (1.1.5)$$

où $Y_{(\omega)}$ est l'admittance généralisé reliée à x . On peut décrire plus précisément x comme étant la coordonnée associée à un des degrés de liberté du système étudié, soit les miroirs d'un GWD.

Si on applique une force périodique de la forme

$$F_{(t)} = F_0 \cos(\omega t) \quad (1.1.6)$$

dans la direction de la coordonnée x , la partie réelle de l'admittance peut s'écrire

$$\Re [Y_{(\omega)}] = \frac{2W_{diss}}{F_0^2}. \quad (1.1.7)$$

En insérant cette équation dans 1.1.5 on obtient

$$S_{x(\omega)} = \frac{8k_B T}{\omega^2} \frac{W_{diss}}{F_0^2}. \quad (1.1.8)$$

En supposant que la dissipation est homogène dans les miroirs, on peut la décrire en utilisant le module de Young complexe

$$E = E_0(1 + i\phi_{(\omega)}). \quad (1.1.9)$$

La partie imaginaire du module de Young $\phi(\omega)$ est aussi appelée l'angle de perte. Elle représente la fraction d'énergie mécanique dissipée à chaque cycle d'une oscillation de fréquence ω . On peut ainsi réécrire la puissance dissipée

$$W_{diss} = \omega U_{max} \phi(\omega) \quad (1.1.10)$$

où U_{max} est l'énergie de déformation élastique du matériau au moment où il est maximum-ment comprimé ou étiré. En substituant cette dernière équation dans l'équation 1.1.8 on trouve

$$S_{x(\omega)} = \frac{8k_B T}{\omega} \frac{U_{max} \phi(\omega)}{F_0^2}. \quad (1.1.11)$$

L'équation 1.1.11 montre que le bruit thermique $S_{x(\omega)}$ est directement relié à l'angle de perte $\phi(\omega)$. Expérimentalement, mesurer l'angle de perte est beaucoup plus facile que mesurer des fluctuations thermiques [15], la relation entre ces deux quantités est donc cruciale pour l'étude des fluctuations thermiques.

1.2. Théorie de l'état de transition

Généralement, dans un matériau désordonné ou dans des cristaux avec défauts, plusieurs configurations d'atomes permettent de minimiser localement l'énergie potentielle. Ces minimums locaux sont des états stables ou métastables du solide. Considérons deux de ces minimums locaux, 1 et 2, où un déplacement modéré des atomes permet de passer de un à l'autre.

Un espace utile dans ce contexte est celui de l'énergie potentielle. Il s'agit d'un espace en $3N + 1$ dimensions où N est le nombre d'atomes du système. Chaque atome contribue 3 dimensions à cet espace (autant de dimensions qu'il a de degrés de liberté de translation) et l'énergie potentielle totale du système contribue une dimension. On peut ainsi représenter un système par son paysage d'énergie potentielle (PEP), soit l'hypersurface en $3N$ dimensions de l'énergie potentielle du système. La figure 1.1 est un bon exemple d'une transition et de sa représentation dans une vue de coupe du PEP. Le chemin le plus facile (le moins coûteux énergétiquement) qui relie les deux minimums dans PEP passera par un ou plusieurs points de selles de premier ordre de cette hypersurface.

Supposons que les minimums sont séparés par un seul point de selle S de hauteur V , comme c'est souvent le cas quand les deux minimums sont près l'un de l'autre. Le système peut alors transitionner entre les deux minimums à condition d'avoir l'énergie suffisante pour atteindre le point de selle. Un exemple simple de ces transitions est la diffusion d'une lacune dans un cristal, illustré schématiquement avec l'évolution de l'énergie en fonction de la coordonnée de réaction à la figure 1.2.

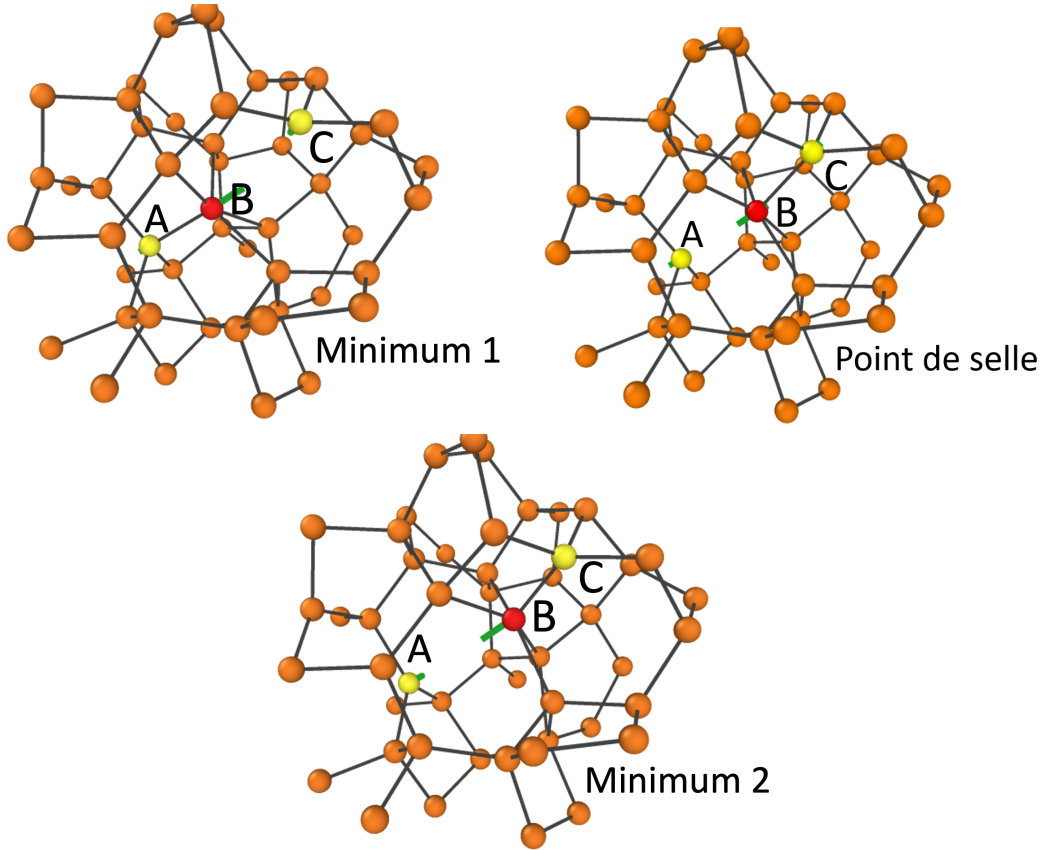


Fig. 1.1. Exemple d'une transition dans le α -Si tirée de l'article du mémoire. On y montre les deux minimums et le point de selle (saddle) L'atome se déplaçant le plus est en rouge. Les atomes en jaune brisent ou forment un lien avec l'atome rouge. Les lignes vertes décrivent les trajectoires des atomes entre les images.

Supposons maintenant que le système est à l'équilibre thermodynamique au minimum 1, à température T . Cette supposition est valide si le système reste piégé suffisamment longtemps, soit beaucoup plus longtemps que le temps de relaxation des phonons. La probabilité p de trouver le système à une énergie E plus grande que l'énergie du minimum E_1 est proportionnelle au facteur de Boltzmann

$$p(E) \propto \exp\left(-\frac{E - E_1}{k_B T}\right). \quad (1.2.1)$$

La probabilité que le système transitionne de 1 vers 2 est équivalente à la probabilité de trouver le système au point de selle. Pour trouver le temps caractéristique après lequel il sera au point de selle, il faut multiplier la probabilité de trouver le système au point de selle par l'inverse de la fréquence d'essai, soit la fréquence effective des vibrations du système dans la direction du point de selle. La théorie de l'état de transition harmonique [29, 85] permet de calculer la fréquence d'essai τ_0^{-1} à partir des fréquences propres des phonons au minimum ν_i

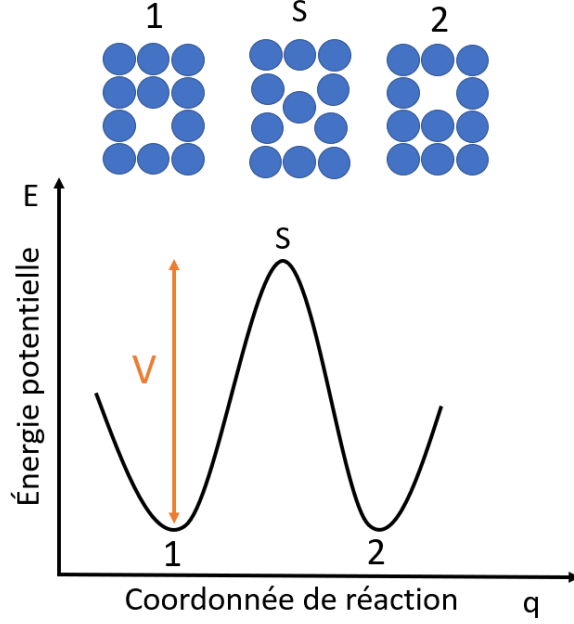


Fig. 1.2. Diffusion d’une lacune dans un solide (site inoccupé) en deux dimensions avec sa représentation en énergie potentielle. Pour un tel processus dans un cristal, le potentiel au point 1 est exactement le même qu’au point 2, et la barrière est symétrique. Dans un matériau amorphe, une telle symétrie serait tout à fait fortuite.

et au point de selle ν_i^*

$$\tau_0 = \frac{\prod_i^{3N} \nu_i}{\prod_i^{3N-1} \nu_i^*}. \quad (1.2.2)$$

où le système a $3N$ degrés de liberté et dont on a exclu la fréquence propre imaginaire du point de selle du produit. Dans le silicium amorphe, les fréquences d’essai sont d’environ 10^{13} Hz et varient peu autour de cette valeur [84]. Pour la suite nous allons simplifier les calculs en utilisant une fréquence d’essai constante.

Définissons l’énergie de la barrière, $V = E_S - E_1$ où E_S est l’énergie du point de selle, le temps caractéristique de la transition de 1 vers 2 est donné par la loi d’Arrhenius

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{-V}{k_B T}\right). \quad (1.2.3)$$

1.3. Systèmes à deux niveaux dans les matériaux amorphes

Le modèle de Debye en physique du solide prévoit, à basse température, une capacité calorifique qui dépend de T^3 :

$$C_V \approx \frac{12\pi^4}{5} N k_B \left(\frac{T}{T_D}\right)^3 \quad (1.3.1)$$

où T_D est la température de Debye. Ce comportement est observé dans les matériaux cristallins à des températures sous ~ 1 K [46]. Un comportement complètement différent est observé dans les matériaux désordonnés, à basses températures $C_V \propto T$ (Fig. 1.3) [92]. Dans le a -Si on observe même ce comportement de C_v à des températures allant jusqu'à la centaine de Kelvins [93].

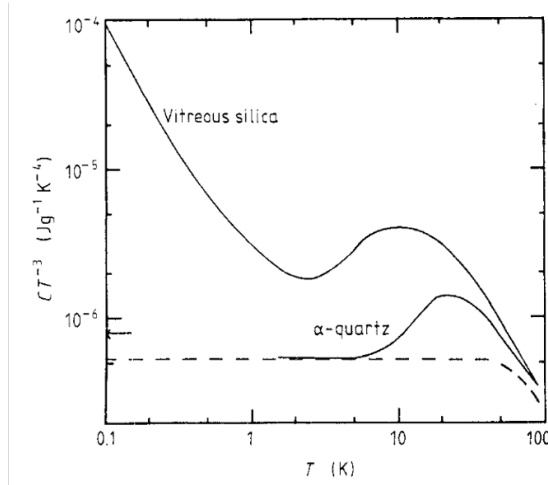


Fig. 1.3. Capacité calorifique de la silice en phases vitreuse et cristalline. D'après Zeller et Pohl [92].

Le modèle qui a expliqué avec succès ce comportement de C_V est le modèle des systèmes à deux niveaux (TLS). [67, 87]. Comme décrit à la section 4.4.1, un TLS est constitué de deux minimums locaux connectés par un point de selle. La différence d'énergie entre les deux minimums est appelée l'asymétrie Δ (Fig. 1.4).

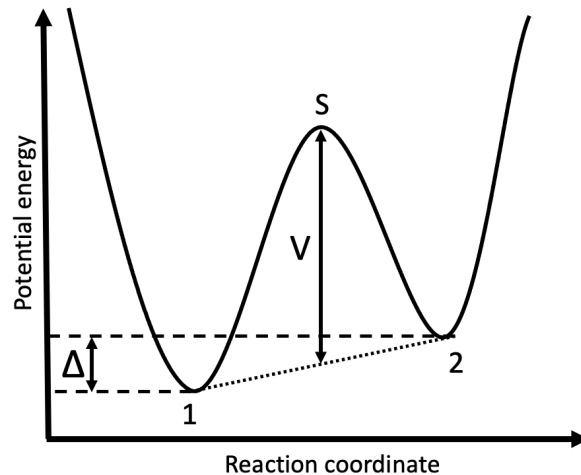


Fig. 1.4. Représentation en une dimension d'un TLS.

Dans les matériaux désordonnés, les environnements locaux ne sont jamais identiques et le PEP est très accidenté. Ceci a pour conséquence la présence d'une grande quantité de

TLS très diversifiés. Ainsi, les asymétries et les barrières des TLS auront des distributions presque continues dans un solide macroscopique.

Chaque TLS a deux énergies propres $\pm E$ ($\pm\Delta/2$ si le système est classique) et donc contribue deux états énergétiques au solide. En suivant Phillips [67], on peut écrire l'énergie libre de Helmholtz associée à un TLS

$$F_{(E)} = -k_b T \ln(2 \cosh(E/(2k_B T))) \quad (1.3.2)$$

et la capacité calorifique associée à chaque TLS

$$C_{(E)} = -T \left(\frac{\partial^2 F}{\partial T^2} \right)_V = \frac{E^2}{k_B T^2} \operatorname{sech}^2 \left(\frac{E}{k_B T} \right). \quad (1.3.3)$$

La capacité calorifique totale du système est donnée par la somme des capacités calorifiques de chaque TLS. Si la distribution en énergies propres est constante à une valeur n_0 on peut remplacer la somme par l'intégrale

$$C_V = \int_0^\infty n_0 \frac{E^2}{k_B T^2} \operatorname{sech}^2 \left(\frac{E}{k_B T} \right) dE = \frac{\pi^2}{12} n_0 k_B^2 T. \quad (1.3.4)$$

Le résultat est ainsi une capacité calorifique qui dépend linéairement de T en bon accord avec les données expérimentales (Fig. 1.3).

1.4. Dissipation et systèmes à deux niveaux

Cette section décrit les travaux de Jäckle et al. [44] et Damart et Rodney [20] qui se sont intéressés à la dissipation causée par la présence de TLS dans un matériau amorphe.

Lorsque les transitions entre les deux niveaux d'un TLS sont activées thermiquement, il est possible de définir des taux de transition à partir de l'éq. 1.2.3

$$\begin{aligned} \tau_{12}^{-1} &= \tau_0 \exp \left(-\frac{V + \Delta/2}{k_B T} \right) \\ \tau_{21}^{-1} &= \tau_0 \exp \left(-\frac{V - \Delta/2}{k_B T} \right). \end{aligned} \quad (1.4.1)$$

La probabilité de trouver le TLS dans l'état 1 (p_1) ou l'état 2 (p_2) sera donné par le système d'équations maîtresses

$$\begin{aligned} \dot{p}_1 &= p_2 \tau_{21}^{-1} - p_1 \tau_{12}^{-1} \\ \dot{p}_2 &= p_1 \tau_{12}^{-1} - p_2 \tau_{21}^{-1} \end{aligned} \quad (1.4.2)$$

dont la solution à l'état stationnaire est

$$\bar{p}_1 = \frac{\tau_{21}^{-1}}{\tau_{12}^{-1} + \tau_{21}^{-1}} = \left(1 + \exp \left(-\frac{\Delta}{k_B T} \right) \right)^{-1}. \quad (1.4.3)$$

Cet état stationnaire peut être perturbé en appliquant une déformation élastique ϵ . Introduisons le potentiel de déformation γ , qui donne le couplage entre l'asymétrie Δ d'un TLS

et ϵ

$$\gamma \equiv \frac{\partial \Delta}{\partial \epsilon}. \quad (1.4.4)$$

Si la déformation dépend du temps, on aura l'asymétrie dépendante du temps

$$\Delta_{(t)} = \Delta + \gamma \epsilon_{(t)}. \quad (1.4.5)$$

Cette dépendance en temps de l'asymétrie cause une dépendance en temps des probabilités d'occupations à l'équilibre (\bar{p}) et des taux de transitions (τ^{-1}). En retournant aux équations maîtresses (éq. 1.4.2) et en substituant $p_2 = 1 - p_1$ dans la première on obtient

$$\dot{p}_1 = -p_1(\tau_{21}^{-1} + \tau_{12}^{-1}) + \tau_{12}^{-1}. \quad (1.4.6)$$

En insérant l'éq. 1.4.3 dans 1.4.6

$$\dot{p}_1 = -(p_1 - \bar{p}_2(t))(\tau_{21}^{-1} + \tau_{12}^{-1}). \quad (1.4.7)$$

On peut réécrire

$$(\tau_{21}^{-1} + \tau_{12}^{-1}) = 2\tau_0^{-1} \exp\left(\frac{V}{k_B T}\right) \operatorname{sech}\left(\frac{\Delta_{(t)}}{2k_B T}\right). \quad (1.4.8)$$

En comparant les séries de Taylor de cette équation et de l'équation 1.4.3 autour de $\Delta_{(t)}/2k_B T = 0$ on voit qu'on peut négliger, au premier ordre, l'effet de la perturbation sur les taux de transitions. On définit donc un temps de relaxation τ constant dans le temps pour le TLS,

$$(\tau_{21}^{-1} + \tau_{12}^{-1}) \approx \tau \equiv (\tau_{21(0)}^{-1} + \tau_{12(0)}^{-1})^{-1} = 2\tau_0^{-1} \exp\left(\frac{V}{k_B T}\right) \operatorname{sech}\left(\frac{\Delta}{2k_B T}\right), \quad (1.4.9)$$

où on pose que la déformation est nulle en $t = 0$.

En définissant $\delta p_1 = p_1 - \bar{p}_1(0)$ et en insérant 1.4.9 dans 1.4.7 le résultat est l'équation différentielle d'ordre 1 pour δp_1

$$\tau \delta \dot{p}_1 = -\delta p_1 + \bar{p}_1(t) - \bar{p}_1(0). \quad (1.4.10)$$

Avec les éq. 1.4.3 et 1.4.5 on a

$$\begin{aligned} \bar{p}_1(0) - \bar{p}_1(t) &\equiv \bar{p}_1(\Delta) - \bar{p}_1(\Delta + \gamma \epsilon(t)) \\ &\approx \frac{\partial \bar{p}_1}{\partial \Delta} \gamma \epsilon. \end{aligned} \quad (1.4.11)$$

En dérivant l'éq. 1.4.3 par rapport à Δ on trouve

$$\frac{\partial \bar{p}_1}{\partial \Delta} = \frac{-\operatorname{sech}^2\left(\frac{\Delta}{2k_B T}\right)}{4k_B T}. \quad (1.4.12)$$

On insère l'éq. 1.4.11 dans 1.4.10 pour obtenir

$$\tau \delta \dot{p}_1 = -\delta p_1 + \frac{\partial \bar{p}_1}{\partial \Delta} \gamma \epsilon. \quad (1.4.13)$$

Cette équation peut être résolue pour une déformation périodique $\epsilon(t) \propto \exp(-i\omega t)$:

$$\delta p_1 = \frac{\partial \bar{p}_1 / \partial \Delta}{1 - i\omega\tau} \gamma \epsilon. \quad (1.4.14)$$

δp_1 est la différence entre la probabilité d'être dans l'état 1 à un temps donné et la probabilité d'être dans ce même état sans qu'une déformation soit appliquée. Ces différences de probabilité d'occupation génèrent un stress dans le matériau (éq.1.4.4). On peut écrire la contribution du TLS au stress

$$\delta \sigma = \frac{\gamma^2}{v} \delta p_1 \quad (1.4.15)$$

v étant un volume. Cette contribution peut être incluse dans la constante élastique C du matériau

$$C_{(\omega)} = C^\infty + \frac{1}{\epsilon} \frac{\gamma}{v} \delta p_1 \quad (1.4.16)$$

où C^∞ inclut les contributions des déformations affines et non-affines au module élastique, qui sont des processus avec un temps de relaxation beaucoup plus court que les TLS. Pour un matériau de volume macroscopique V , on aura un grand nombre de TLS, et le module élastique complexe s'écrira avec une somme sur tout les TLS inclus dans V

$$C_{(\omega)} = C^\infty + \frac{1}{V} \sum_n^{N_{TLS}} \frac{\partial \bar{p}_{1n}}{\partial \Delta} \frac{\gamma_n^2}{1 - i\omega\tau_n}. \quad (1.4.17)$$

La dissipation, exprimée sous la forme de l'angle de perte ϕ , est donnée par le ratio des parties imaginaires et réelles de $C_{(\omega)}$

$$\phi_{(\omega)} = \frac{\sum_n \frac{\partial \bar{p}_{1n}}{\partial \Delta} \frac{\omega\tau_n}{1 + \omega^2\tau_n^2} \gamma_n^2}{VC^\infty + \sum_n \frac{\partial \bar{p}_{1n}}{\partial \Delta} \frac{1}{1 + \omega^2\tau_n^2} \gamma_n^2} \approx \frac{1}{VC^\infty} \sum_n \frac{\partial \bar{p}_{1n}}{\partial \Delta} \frac{\omega\tau_n}{1 + \omega^2\tau_n^2} \gamma_n^2. \quad (1.4.18)$$

La dernière approximation est valide si $VC^\infty \gg \sum_n \frac{\partial \bar{p}_{1n}}{\partial \Delta} \frac{1}{1 + \omega^2\tau_n^2} \gamma_n^2$. Ceci a été vérifié dans le SiO₂ [20], et comme les potentiels de déformations trouvés dans le a -Si sont plus petits que dans le SiO₂ et les concentrations de TLS sont comparables, elle reste valide dans nos systèmes. Et en substituant l'éq. 1.4.12 dans 1.4.18

$$\phi_{(\omega)} \approx \frac{1}{4VC^\infty k_B T} \sum_n \operatorname{sech}^2(\Delta/2k_B T) \frac{\omega\tau_n}{1 + \omega^2\tau_n^2} \gamma_n^2. \quad (1.4.19)$$

Cette dernière équation est centrale à ce mémoire. Elle permet une prédiction théorique de la dissipation mécanique interne (DMI) d'un matériau à partir de ses TLS, ce qui rend possible une comparaison entre les simulations numériques et les données expérimentales, l'angle de perte étant la quantité mesurées par les expériences. De plus, comme nous l'avons vu à la première section de ce chapitre, la DMI est directement la quantité qui doit être minimisée dans les GWD pour y réduire le bruit thermique.

Certaines suppositions dont la validité est nécessaire au modèle ont été faites dans cette section. Premièrement, les différents TLS doivent être indépendants entre eux. Dans notre

travail, nous trouvons environ 2 TLS par 1000 atomes, et ces TLS impliquent généralement entre 5 et 35 atomes. En conséquence, la probabilité que deux TLS soient suffisamment près l'un de l'autre pour qu'il y ait une interaction est très faible (de même pour la probabilité d'avoir des systèmes à trois niveaux ou plus) et cette supposition est raisonnable. Une deuxième supposition est l'indépendance de la position et de l'énergie du point de selle aux perturbations mécaniques (en effet, dans les calculs de ce chapitre, Δ dépend du temps t , mais pas V). Cette supposition n'est pas facilement vérifiée et elle ne l'a pas été dans ce travail ni dans les autres travaux publiés sur le sujet, il serait donc intéressant de s'y attarder dans le futur. Troisièmement, on suppose que les TLS sont piégés dans le PEP, c'est-à-dire que l'activation d'un TLS ne donnera pas lieu à une cascade d'évènements qui empêchera le TLS de revenir à son minimum initial. Cette supposition est généralement valide si le matériau étudié est bien relaxé.

1.5. Données expérimentales

Il existe plusieurs méthodes expérimentales qui permettent de mesurer la dissipation mécanique interne, telles que la suspension nodale [19, 80] et les oscillateurs à deux palettes [4, 54]. Le principe de base de ces montages expérimentaux reste cependant le même. Un substrat sur lequel on a déposé une couche mince du matériau à caractériser est excité dans un ou plusieurs de ses modes de résonance. L'atténuation de l'amplitude du mode de vibration en fonction du temps ($A_{(t)}$) est lié à la dissipation mécanique interne par

$$A_{(t)} = A_0 \exp(-\phi_{tot}\omega t) \quad (1.5.1)$$

avec ω la fréquence de résonance du mode et ϕ_{tot} l'angle de perte du système substrat-revêtement. L'angle de perte du substrat sans revêtement ϕ_{subs} doit aussi être mesuré. Ensuite l'angle de perte du revêtement seul ϕ_{rev} est calculé avec

$$\phi_{rev} = (\phi_{tot} - (D - 1)\phi_{subs})/D, \quad (1.5.2)$$

où D est le facteur de dilution, qui doit être calculé à l'aide de simulations physiques à éléments finis [33, 81].

La dissipation mécanique interne a été mesurée dans une grande variété de verres (Ta_2O_5 , TiO_2 - Ta_2O_5 , ZrO_2 - Ta_2O_5 , SiO_2 , etc.) et dans des matériaux désordonnés (a -Si, a -Ge) [31]. De manière générale, les expériences concluent en général que l'angle de perte diminue avec un meilleur état de relaxation [31]. Il est bien connu qu'augmenter la température de dépôt d'un échantillon ou effectuer un recuit à haute température permet d'atteindre un meilleur état de relaxation, et permet ainsi de diminuer l'angle de perte (Figure 1.5). Dans certains cas, le dopage peut aussi être utilisé pour réduire l'angle de perte. Cette réduction de ϕ peut être directement liée à la présence du dopant, mais aussi, dans les matériaux désordonnés, la présence d'un dopant peut augmenter la température de cristallisation, et donc permettre

des recuits à plus haute température que dans le matériau non dopé. Par exemple, dans le Ta_2O_5 , le dopage au ZrO_2 et au TiO_2 a ces deux effets [50] et est donc utile pour réduire la DMI.

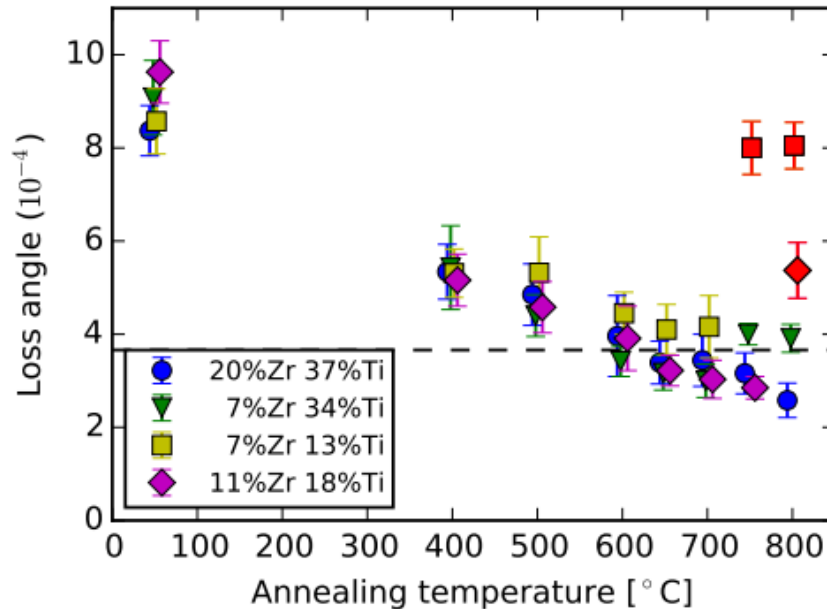


Fig. 1.5. Effet de la température de recuit sur l'angle de perte dans des alliages Ta_2O_5 - ZrO_2 . Tiré de Lalande et coll. [50].

Dans le *a*-Si en particulier, la méthode privilégiée pour réduire la DMI a d'abord été l'ajout d'hydrogène. L'hydrogène dans les matériaux covalents a tendance à passiver les liaisons pendantes, c'est-à-dire former des liens avec les atomes mal coordonnés. Cette passivation des liaisons pendantes réduirait le nombre de TLS et donc la DMI [53, 55].

Il a par la suite été démontré par Liu et coll. [54] qu'il était possible d'avoir du *a*-Si pur avec une DMI extrêmement faible, donc en principe avec extrêmement peu d'excitations à basses énergies. L'excellent état de relaxation du *a*-Si de Liu et coll., obtenu par évaporation par faisceau d'électron à haute température de substrat est à l'origine de cet DMI très basse.

Par la suite, Murray et coll. ont également déposés des couches minces de *a*-Si avec de très faibles angles de pertes (figure 1.7). Alors que les angles de perte de Liu et coll. ($\phi \approx 10^{-6}$) sont plus bas que ceux de Murray et coll. ($\phi \approx 10^{-5}$), l'intérêt principal de cette deuxième étude est la technique de dépôt utilisée. En effet, Murray et coll. ont utilisé la pulvérisation par faisceaux d'ions, une technique qui peut déposer des couches sur de grandes surfaces, ce qui est nécessaire lors de la conception des miroirs des GWD qui font environ 25 cm de diamètre.

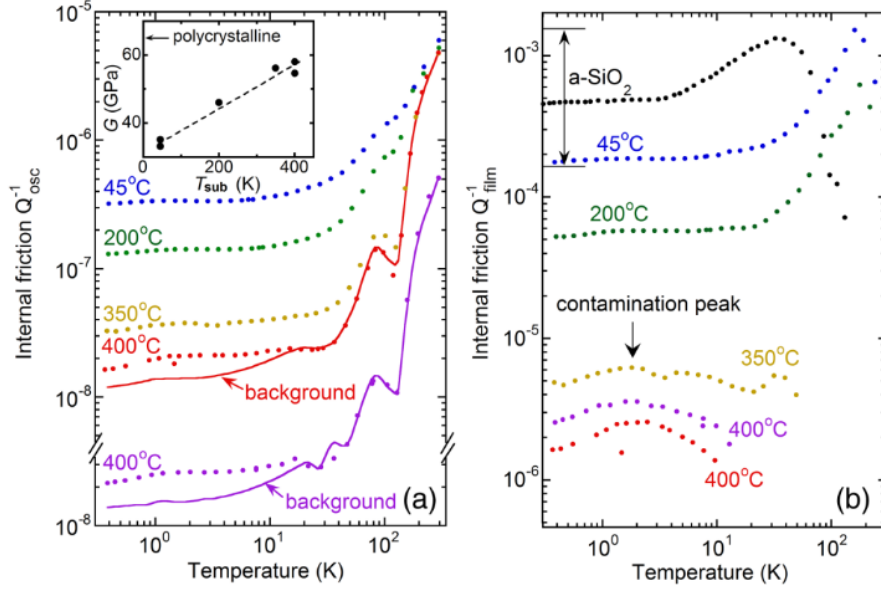


Fig. 1.6. Mesures d'angle de perte (Q^{-1} , aussi appelé ϕ dans le texte.) dans le a -Si pour différentes températures de dépôt. Tiré de Liu et coll. [54]. (a) Angle de perte des systèmes substrats-dépôts. (b) Angle de perte des dépôts de a -Si

Les résultats expérimentaux montrent donc qu'il est possible d'avoir une DMI très faible dans le a -Si et ce sans la nécessité de le doper avec de l'hydrogène. L'angle de perte montre une forte dépendance à la méthode et la température de dépôt de même qu'à la température de mesure. Dans notre travail, nous nous limiterons à des températures au-dessus de 100 K, où l'angle de perte semble avoir un plateau et se situe entre 2×10^{-5} et 10^{-3} dépendamment des conditions de dépôt.

Enfin, bien que les expériences puissent mesurer l'angle de perte, elles n'offrent pas beaucoup d'informations sur la nature des TLS à son origine. En effet, comme on l'a vu à l'équation 1.4.19, ϕ dépend d'un nombre de paramètres liés aux propriétés atomistiques des TLS, comme la distribution des potentiels de déformation γ , des barrières V et des asymétries Δ et des fréquences d'essai τ_0 et il est impossible d'isoler la contribution de chacun de ces paramètres seulement en mesurant la DMI, et ce même en complétant les mesures de la DMI par des mesures calorimétriques. Des études numériques sont donc nécessaires pour mieux comprendre les causes microscopiques de la DMI et ainsi nous permettre, entre-autres, de mieux comprendre la dépendance de ϕ sur les méthodes et les températures de dépôt.

1.6. Conclusion

Nous avons défini dans ce chapitre le cadre théorique pour la suite du mémoire. Le théorème de fluctuation-dissipation explique pourquoi nous pouvons calculer la DMI d'un matériau pour connaître son bruit thermique. Nous avons également présenté les TLS et leur

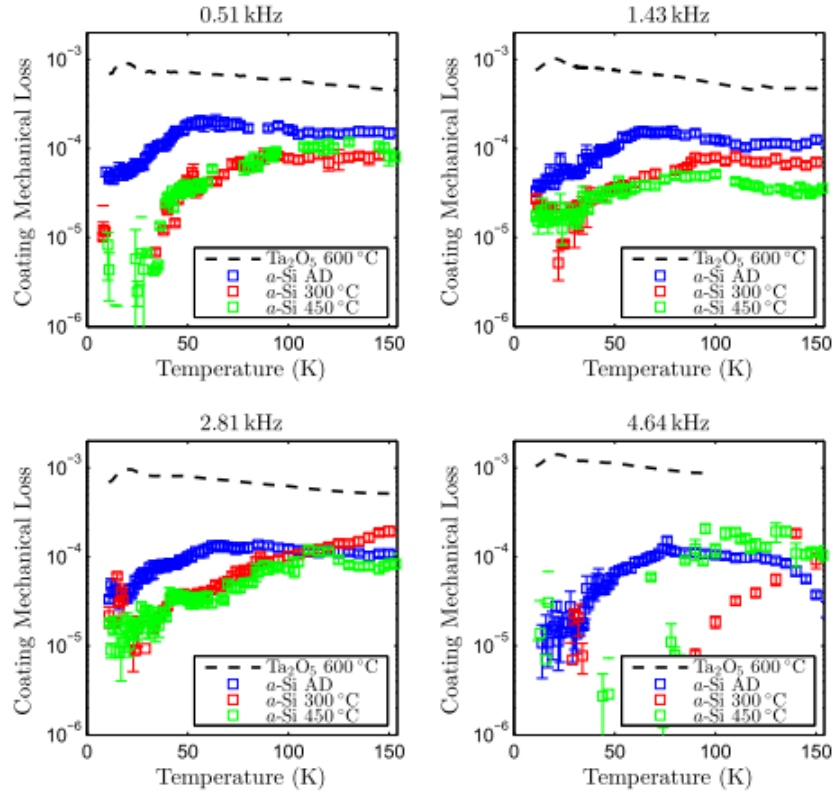


Fig. 1.7. Mesures d'angle de perte d'un dépôt de a -Si en fonction de la température à différentes fréquences. Les points bleus, verts et rouges représentent respectivement des échantillons tels que déposés, recuits à $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ et recuits à $450\text{ }^{\circ}\text{C}$. La ligne pointillée est l'angle de perte du Ta_2O_5 et sert de comparaison. Tiré de Murray et coll. [64].

relation aux pertes mécaniques. Enfin, un survol de l'état des données expérimentales a été fait. Des mesures de l'angle de perte du a -Si ont déjà été prises et pourront servir de balises à notre étude numérique. Cette dernière pourra permettre une meilleure compréhension des origines microscopiques de la DMI.

Chapitre 2

Méthodes

Ce chapitre introduit différentes méthodes entourant l'étude numérique de matériaux complexes et explique les choix qui ont été faits dans ce travail. Les méthodes d'exploration du PEP des solides sont abordés en premier, suivies des potentiels interatomiques et finalement les méthodes de préparation des configurations de α -Si sont détaillées.

2.1. Méthodes d'exploration du paysage d'énergie potentielle

Il existe un bon nombre de techniques permettant d'étudier le PEP des solides amorphes. Dans le cadre de la recherche de TLS, ce qui nous intéresse est de trouver des minimums connectés par des points de selle de premier ordre. Dans les travaux publiés sur la recherche de TLS jusqu'à présent [20, 32, 42, 79], des variantes d'une méthode assistée par dynamique moléculaire (MD), la bisection de la trajectoire, ont été utilisées. Dans ce travail, nous avons choisi une méthode différente, soit la Technique d'Activation et de Relaxation nouveau (ARTn). Les deux méthodes sont détaillées ici et cette décision est expliquée.

2.1.1. Méthode de la bisection de trajectoire

La méthode de la bisection de trajectoire [22] est une méthode de recherche de minimums dans le PEP assisté par dynamique moléculaire (MD). À partir d'une configuration atomique à un minimum local du PEP, une simulation de MD dans l'ensemble canonique (NVT) ou microcanonique (NVE) est lancée. Cette simulation est menée à une température ou une énergie élevée par rapport à la température où on souhaite connaître la DMI. Après un nombre donné de pas de temps, le système est minimisé à température nulle. On vérifie alors si le système est dans le même minimum que l'état initial. Si oui, on poursuit la MD là où on l'avait arrêtée. Si le minimum est différent, on a trouvé un nouveau minimum du PEP qu'on garde en mémoire. Afin d'explorer plus efficacement le PEP il est possible de lancer plusieurs trajectoires de MD indépendantes en parallèle et de partir de minimums locaux différents.

Cette méthode exploite l'éq. 1.4.1 qui montre que la fréquence des sauts de minimums augmente avec la température comme $\exp \frac{-V}{k_B T}$. Les transitions qui seraient rares en temps normal arrivent ici beaucoup plus fréquemment. En particulier, cette méthode est très efficace pour trouver des minimums séparés par de petites barrières V . Certaines contraintes sur la température T de la MD doivent cependant être considérées. Évidemment, la température de fusion du système constitue une limite supérieure à T . De plus, de hautes températures et des attentes trop longues entre les étapes de minimisation peuvent laisser le système effectuer plus d'une transition en même temps. Si cela se produit, le nouveau minimum trouvé ne sera pas connecté directement au minimum initial ce qui est problématique pour la recherche du point de selle subséquente. Pour ces raisons, la méthode de la bisection est moins pratique pour la recherche de minimums séparés par de grandes barrières.

La méthode de la bisection permet de trouver des minimums du PEP mais le chemin pris par la MD n'est généralement pas le chemin d'énergie potentielle minimale à cause de la température élevée. Cette méthode doit donc être couplée à une méthode de recherche de point de selle pour obtenir une description complète des TLS. Deux méthodes ont été utilisées dans la littérature [20, 32, 42, 79], la méthode de la crête non-locale décrite dans la Ref. [22] et la populaire méthode de la bande élastique biaisée décrite dans [36]. Les méthodes décrites plus haut trouvent d'abord des nouveaux minimums d'énergie potentielle, puis un point de selle les connectant. La partie la plus coûteuse de ces méthodes en temps de calcul est la recherche de nouveaux minimums, et non celle des points de selle. En conséquence, nous ne décrirons pas ici en détail les algorithmes de la bande élastique biaisée et de la crête non-locale.

2.1.2. ART nouveau

La technique d'activation-relaxation nouveau (ARTn) a été développé par Malek et Mousseau [57]. Il s'agit d'une amélioration de la technique d'activation-relaxation de Barkema et Mousseau [6]. Elle permet de trouver les points de selles et les minimums du PEP d'un solide. Il s'agit d'une technique particulièrement utile pour étudier les phénomènes se produisant sur de longues échelles de temps dans les matériaux, par exemple la relaxation [6, 12] et la diffusion [7]. Dans le cas présent, elle est appliquée à la recherche de TLS dans des systèmes de a -Si.

Un solide composé de N atomes compte $3N$ degrés de liberté (par exemple x , y et z pour chaque atome). Le PEP est une représentation utile d'un tel système lorsqu'on explore son énergie potentielle. Il s'agit d'une hypersurface dans un espace en $3N + 1$ dimensions, soit les $3N$ degrés de liberté du solide et son énergie potentielle.

La recherche d'évènements débute avec le système dans à un minimum local de l'énergie potentielle et à température nulle. Pour s'assurer de bien être à un minimum, l'algorithme de

minimisation *Fast Inertial Relaxation Engine* (FIRE) [11] est utilisé. Du minimum initial, une déformation dans une direction \vec{x} aléatoirement choisie est appliquée, sortant le système du minimum initial. On continue à pousser le système dans la direction \vec{x} en le minimisant dans l'hyperplan perpendiculaire à \vec{x} après chaque pas pour éviter d'éventuelles collisions entre les atomes. Cette minimisation est faite avec une version modifiée l'algorithme FIRE où on soustrait les forces dans la direction du déplacement.

La déformation dans la direction \vec{x} se poursuit jusqu'à ce que la concavité de la surface d'énergie potentielle change de concave à convexe, ce qui signifie qu'on approche un point de selle. Mathématiquement, ce changement de concavité se traduit par le changement de signe d'une des valeurs propres de la matrice hessienne du potentiel, dont les éléments s'écrivent

$$H_{ij}(\vec{q}) = \frac{\partial^2 V(\vec{q})}{\partial q_i \partial q_j} \quad (2.1.1)$$

où V est l'énergie potentielle et \vec{q} est un vecteur en $3N$ dimensions décrivant l'état du système. La matrice hessienne est donc une matrice $3N$ par $3N$; en conséquence, la diagonaliser peut être très coûteux. Pour éviter une diagonalisation totale, une version de l'algorithme de Lanczos, décrite par Martinica et coll. [58], est utilisée. Cet algorithme permet de trouver les valeurs propres maximales et minimales d'une matrice ainsi que les vecteurs propres qui y sont associés. La valeur propre qu'on cherche est celle qui passe de positive à négative, elle sera donc la plus petite.

La phase d'**activation** débute quand la valeur propre négative est trouvée. Le système est maintenant déplacé dans la direction du vecteur propre associé à la valeur propre négative jusqu'à un point de selle. Pour converger au point de selle, une version modifiée de l'algorithme de Newton-Raphon est utilisée. Le système, initialement à une position \vec{q}_n est déplacé à

$$\vec{q}_{n+1} = \vec{q}_n - \frac{F(\vec{q}_n)}{\lambda(\vec{q}_n)} \vec{u} \quad (2.1.2)$$

avec F la norme de la force, λ la valeur propre négative de la matrice hessienne et \vec{u} est un vecteur unitaire dans la direction du vecteur propre. Comme précédemment, après chaque déplacement dans la direction \vec{u} , une minimisation dans l'hyperplan perpendiculaire est effectuée. Lorsque la somme des forces sur le système est nulle (ou, pour des raisons pratiques, suffisamment petite) un point de selle a été atteint, ce qui met fin à l'activation.

La phase de **relaxation** débute une fois le point de selle atteint. De celui-ci, le système est poussé dans la direction du déplacement initial \vec{x} . De là une minimisation FIRE est lancée pour trouver le nouveau minimum. Le résultat est deux minimums connectés par un point de selle.

ARTn est d'abord une méthode avantageuse pour de grandes configurations atomiques, car il est possible de mener les recherches d'événements localement et en parallèle. En contraste, les méthodes basés sur la MD doivent simuler les vibrations thermiques de tout

le système pour chaque recherche, ce qui implique une augmentation du coût de calcul en $O(N)$.

De plus, cette méthode, contrairement aux méthodes basées sur la MD, n'est pas limitée par la taille des barrières. Dans notre cas, la DMI à la température de la pièce et à une fréquence de 50 Hz sera dominée par de grandes barrières, autour de 0.7 eV (Éq. 1.4.19) que la MD trouve très rarement. Il s'agit donc d'un avantage. Par contre, là où la MD trouve seulement de petites barrières, ARTn trouve en grande majorité de *très* grande barrières, entre 2 et 6 eV, qui ne contribuent pas à la DMI. La grande majorité des recherches faites par ARTn seront donc inutiles. Ceci est illustré par la figure 2.1 qui montre la densité de TLS trouvées par ARTn en fonction de la barrière dans un système de *a*-Si de 1000 atomes.

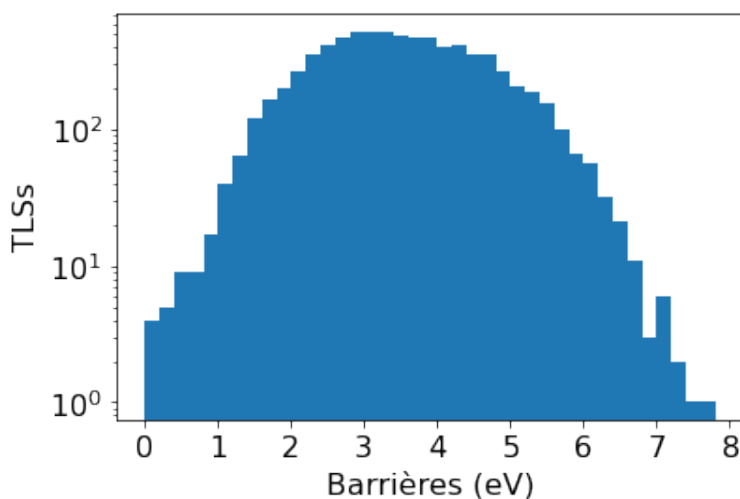


Fig. 2.1. Densité de barrières des événements trouvés par ARTn dans une configuration de *a*-Si de 1000 atomes.

Malgré cela, l'immense quantité de barrières trouvées par ARTn fait en sorte que le sous-ensemble des barrières intéressantes, entre 0.3 et 0.7 eV, reste significatif. Nous n'avons pas testé la méthode de la bisection de trajectoire dans ce travail, mais Daniel Wong et Joerg Rottler (UBC) ont obtenu des barrières sous 0.1 eV dans du *a*-Si avec le potentiel Tersoff. Leurs travaux n'ont pas encore été publiés, mais semblent donner des résultats en accord avec les nôtres, valides cependant à très basse température. Pour ces raisons, ARTn semble privilégié pour étudier la DMI à 300 K.

Comme la direction du déplacement initial de ARTn est aléatoire, il est nécessaire d'effectuer un nombre suffisant de recherches indépendantes pour avoir un portrait représentatif du paysage d'énergie potentielle du système étudié. Dans certains systèmes, il est possible de réduire le coût de calcul de l'algorithme en limitant les déformations initiales aux régions d'intérêt. Par exemple, si on étudie un solide cristallin avec un seul défaut, il est avantageux de limiter la recherche d'événements à la zone avoisinant le défaut. Au contraire, dans les

solides désordonnés, toutes les régions sont susceptibles de produire des évènements intéressants. Le nombre de recherches à faire doit donc être grand par rapport au nombre de degrés de liberté total du système. Dans notre cas, les déformations initiales étaient locales, c'est-à-dire qu'un seul atome était déplacé et chaque atome des configurations de *a*-Si a été déplacé environ trente fois dans une direction aléatoire, ce qui représente dix recherches par degré de liberté.

2.2. Potentiels interatomiques

Il existe de nombreuses méthodes pour calculer l'énergie potentielle d'un système d'atomes, celles ayant eu le plus de succès pouvant être séparées en trois catégories.

La première de ces méthodes est la théorie de la fonctionnelle de densité ou DFT [37, 48]. Elle utilise une approche *ab initio*, soit la résolution des équations de Schrödinger d'un gaz d'électrons interagissant, en exploitant le fait que l'état fondamental du gaz d'électron soit une fonctionnelle de la densité électronique. Cette méthode est applicable au *a*-Si [18] et est largement acceptée comme étant celle qui décrit le plus fidèlement la réalité à cause de son traitement essentiellement exact du problème.

Une deuxième méthode est celle des potentiels empiriques. Cette méthode utilise des fonctions mathématiques simples des positions atomiques pour décrire l'énergie potentielle du système. Un exemple très connu de ces fonctions est le potentiel de Lennard-Jones. Ces potentiels sont dits empiriques, car ils utilisent des fonctions dont les paramètres sont ajustés sur les données expérimentales pour reproduire le mieux possible la réalité. Dans les matériaux covalents comme le *a*-Si, ces potentiels sont généralement locaux, prenant en compte les interactions aux premiers voisins seulement.

Les potentiels par apprentissage machine forment la dernière catégorie. Il s'agit d'une méthode en plein développement qui est en quelque sorte à mi-chemin entre les potentiels empiriques et la DFT. Ces potentiels utilisent des codes d'apprentissage sur des simulations par DFT, le but étant de s'approcher de l'exactitude de la DFT en conservant des coûts de calculs modérés [72].

L'objectif des simulations de ce projet de maîtrise est d'identifier et d'analyser des TLS. Ces derniers sont des systèmes rares : le chapitre suivant montrera qu'on trouve environ 1 TLS par 1000 atomes. De plus, dans des systèmes désordonnés, dégager des tendances nécessite des quantités importantes de données, ici de TLS indépendants. En conséquence, il est nécessaire de simuler un grand nombre de configurations, ou bien de simuler quelques grandes configurations de plusieurs milliers d'atomes. Ceci est impossible à faire en DFT à cause de son très important coût de calcul.

Il n'existait pas de potentiel par apprentissage machine suffisamment testé pour produire des résultats publiables au moment de faire nos simulations. De plus le coût de calcul de ces

potentiels reste significativement plus élevés que celui des potentiels empiriques. Cependant, au moment de rédiger ce mémoire, un potentiel par apprentissage machine pour le *a*-Si a été publié par Zongo *et al.* [94]. Ces potentiels sont prometteurs pour de futurs travaux.

Pour les deux raisons données plus haut, un potentiel empirique à été utilisé dans ce travail. Le principal désavantage de ce type de potentiel est qu'ils représentent beaucoup moins bien la réalité que les méthodes *ab initio*. Les TLS spécifiques trouvés dans ce travail ne sont pas nécessairement retrouvables par une description *ab initio*. Cependant, la description qualitative des TLS trouvés par nos méthodes empiriques devrait être la même que celle qu'aurait obtenue une étude par DFT. En effet, il a été trouvé que les évènements génériques constituant les cascades de déplacements dans le Si et le Si-Ge trouvés avec un potentiel empirique sont retrouvables par DFT [40, 41]. Pour cette raison, au chapitre suivant, nous concentrerons nos efforts d'analyse à trouver des catégories génériques de TLS et des tendances globales.

De nombreux potentiels empiriques doivent être envisagés. Les potentiels populaires pour le silicium sont Tersoff [77] Stillinger-Weber (SW) [74], EIDP[43] et MEAM[23]. Parmi ces potentiels, le SW reproduit mieux les propriétés structurales (défauts, distribution radiale, densité) et vibrationnelles (v-DOS) du *a*-Si que EIDP et MEAM [60]. SW et Tersoff représentent deux choix intéressants, mais les deux ne reproduisent pas très bien la phase amorphe [5, 17]. Dans le cas du potentiel SW cependant, il existe une version modifiée (mSW) spécialement adaptée à la phase amorphe [86]. C'est ce potentiel qui sera utilisé pour la suite de ce travail.

Le potentiel SW est décrit par la fonction à trois corps

$$V = \epsilon A \sum_{\langle ij \rangle} v_{ij}^{(2)}(r_{ij}) + \epsilon \lambda \sum_{\langle ijk \rangle} v_{ijk}^{(3)}(r_{ij}, r_{ik}). \quad (2.2.1)$$

Le terme à deux corps s'explique

$$v_{ij}^{(2)}(r_{ij}) = \left[B \left(\frac{r_{ij}}{\sigma} \right)^{-p} - 1 \right] \exp \left(\frac{1}{r_{ij}/\sigma - a} \right) \Theta(a - r_{ij}/\sigma) \quad (2.2.2)$$

où la somme itère sur les paires ij uniques, r_{ij} est la distance entre les atomes i et j et Θ est la fonction marche de Heaviside. Le terme à trois corps s'écrit

$$v_{ijk}^{(3)}(r_{ij}, r_{ik}) = \exp \left(\frac{\gamma}{r_{ij}/\sigma - a} + \frac{\gamma}{r_{ik}/\sigma - a} \right) (\cos(\theta_{jik}) - \cos(\theta_0))^2 \Theta(a - r_{ij}/\sigma) \Theta(a - r_{ik}/\sigma) \quad (2.2.3)$$

où la somme est sur les triplets ijk uniques, θ_{jik} est l'angle formé par les trois atomes j , i et k dans cet ordre et $\theta_0 = \arccos(-1/3)$. Les paramètres sont donnés dans [86] et sont reproduits dans le tableau 2.1.

Ce potentiel a été ajusté sur les propriétés structurales (fonction de distribution radiale) et vibrationnelles (pics TO et TA de la V-DOS) du *a*-Si. Il a aussi été utilisé abondamment

Paramètre	Valeur
ϵ (eV)	1.64833
A	7.049556277
B	0.6022245584
σ (Å)	2.0951
p	4
a	1.80
λ	31.5
γ	1.20

Tableau 2.1. Paramètres du potentiel Stillinger-Weber modifié [86]

dans la littérature pour simuler divers phénomènes dans le a -Si, par exemple les propriétés vibrationnelles [16], plastiques [76] et la relaxation à long terme [12].

2.3. Préparation du a -Si

Il existe plusieurs méthodes de préparations numériques du silicium amorphe. Une méthode simple est la trempe [21, 47], nommée d’après l’opération métallurgique du même nom qui consiste à refroidir rapidement un métal chaud pour le conserver dans une phase métastable à température ambiante [61]. Dans le contexte de la préparation d’échantillons numériques, on utilise la dynamique moléculaire [78] pour simuler un refroidissement rapide. Le silicium est d’abord mis en phase liquide, ce qui permet d’éviter que le système garde en mémoire une phase cristalline. Ensuite, il est refroidi rapidement à un rythme de 10^{14} K/S, sous le point de fusion, à 1500 K. De cet état intermédiaire, qui correspond à un liquide en surfusion, le système est refroidi plus lentement, à un rythme de 10^{11} K/s, jusqu’à 300 K. La pression est gardée à zéro lors de ce processus par un barostat de Nosé-Hoover. Lors du refroidissement le silicium se solidifie dans un état amorphe généralement assez bien relaxé, c’est-à-dire énergétiquement stable, avec densité comparable à celle observée expérimentalement et une concentration de défauts de 2%.

Au début du refroidissement, les températures très élevées laissent le système franchir de hautes barrières de relaxation. En réduisant la température, les barrières pouvant être franchies deviennent de plus en plus petites, piégeant progressivement le système dans un état stable. Diminuer le rythme du refroidissement laisse plus de temps au système pour minimiser son énergie et résulte en des configurations mieux relaxées [21], mais cela augmente le coût de calcul de la méthode.

Une deuxième méthode, est l’approche développée par Wooten, Winer et Weaire (WWW) [91]. Dans la version modifiée par Barkema et Mousseau [8], le point de départ est un réseau aléatoire continu (CRN) de mauvaise qualité. Un réseau aléatoire continu est une configuration où tous les atomes sont idéalement coordonnés. Dans le cas du silicium, chaque

atome doit avoir exactement quatre voisins. Aucune condition n'est posée sur la distribution des longueurs de liens ou des angles, et on peut juger de la qualité d'un CRN par l'étroitesse de ces distributions.

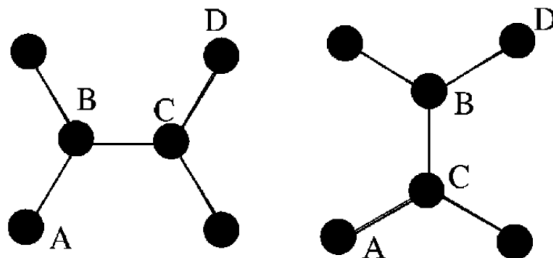


Fig. 2.2. Schématisation d'un évènement WWW. [8]

L'approche WWW fait évoluer le système en essayant des déplacements WWW. On sélectionne quatre atomes : A, B, C et D, liés en chaîne comme sur la fig. 2.2. Les liens AB et CD sont brisés et deux nouveaux liens, AC et BD sont formés. Le système est ensuite relaxé en préservant les nouveaux liens. La probabilité P d'accepter l'évènement proposé est donnée par la formule de Métropolis-Hasting,

$$P = \min \left[1, \exp \left(\frac{E_i - E_f}{k_B T} \right) \right] \quad (2.3.1)$$

où E_i et E_f sont les énergies potentielles avant et après le déplacement et T est la température. Barkema et Mousseau ont alterné entre des séquences à température de 0.25 eV et à température nulle. D'autres ajouts ont été apportés par Hejna *et al.* [35], dont une minimisation à pression nulle. Le résultat est un système de *a*-Si appelé presque hyperuniforme, car ses variations de densité à longue portée sont presque nulles.

2.4. Études numériques

La théorie des TLS décrite au chapitre 1 a été utilisée pour calculer numériquement la DMI dans les matériaux désordonnés. Les études numériques se sont concentrés pour le moment sur les verres à bases d'oxydes, notamment la silice (SiO_2) et l'oxyde de tantale (Ta_2O_5) [9, 20, 32, 42, 79]. Ces travaux ont privilégié la méthode de la bisection de la trajectoire, décrite à la section 2.1 pour trouver les transitions dans le PEP, et soit la méthode de la bande élastique biaisée ou de crête non-locale pour trouver les points de selle. Cette approche est efficace pour trouver des TLS ayant de petites barrières, ce qui est approprié pour l'étude de la DMI à basses températures.

Dans le SiO_2 et le Ta_2O_5 , l'angle de perte en fonction de la température montre un pic aux environs de 30 K. Ce pic a pu être reproduit par les simulations, qualitativement et quantitativement [32]. Il s'agit d'un résultat très encourageant pour les études numériques.

Il faut cependant noter qu'expérimentalement ce pic n'est parfois pas présent dans les échantillons qui n'ont pas été recuits, un comportement qui n'est pas reproduit par les simulations [69].

L'angle de perte à plus haute température est moins bien décrit par ces travaux. Les TLS avec de plus hautes barrières d'énergies étant responsables de l'angle de perte à plus haute température, il est possible que cette moins bonne description soit liée à l'utilisation de la méthode de la bisection de la trajectoire puisqu'elle identifie plus difficilement ces transitions.

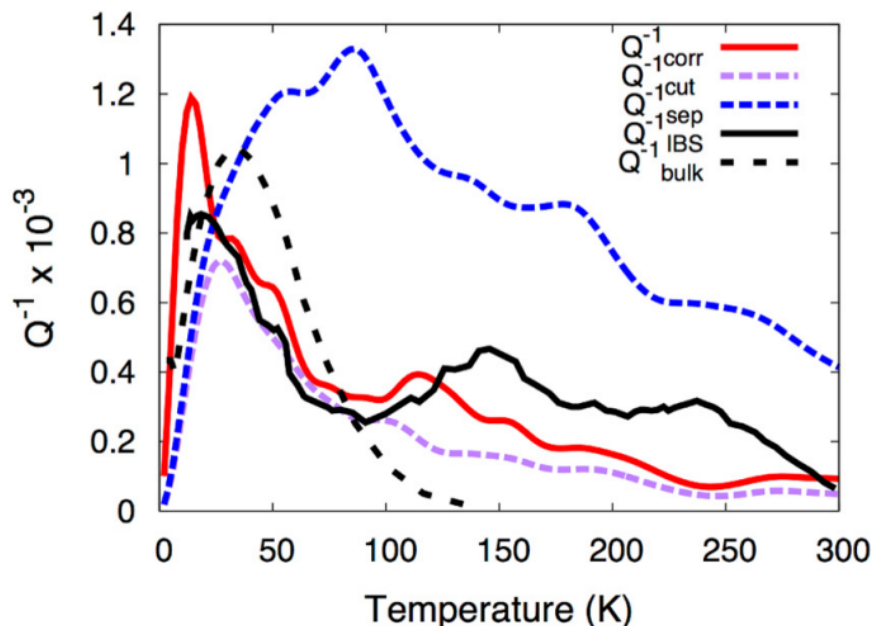


Fig. 2.3. Angle de perte ϕ (ici noté Q^{-1}) dans la silice, tiré de Billman et coll. [9]. Les courbes en couleur sont les calculs tirés des simulations numériques pour différentes distributions de TLS de barrières V et d'asymétries Δ . La courbe rouge pleine utilise une distribution corrélée de V et Δ et les courbes pointillées rose et bleue utilisent une distribution séparable de V et Δ . La courbe noire pleine est une mesure expérimentale dans la silice déposée par pulvérisation par faisceaux ioniques et la courbe noire pointillée est l'angle de perte expérimental de la silice massive (*bulk*). Notons le pic aux environs de 30 K.

Ces travaux fournissent également une description microscopique des TLS. Dans le SiO_2 , ces TLS sont séparables en trois types, des rotations de longues chaînes Si-O-Si-O..., le déplacement d'un atome de Si ou le déplacement d'un atome d'O [20]. Dans le Ta_2O_5 les TLS peuvent être séparés en transitions brisant des liens Ta-O et en transition ne brisant pas de lien Ta-O [42].

2.5. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons expliqué et justifié les différentes techniques utilisées dans cette étude. Alors que les travaux étudiant la dissipation générée par les TLS avec des méthodes numériques ont été faits avec des méthodes basées sur la MD, nous avons utilisé ARTn. Cette technique a tendance à trouver des barrières plus élevées que la MD, résultant en une description plus complète des TLS actifs à la température de la pièce. Nous avons utilisé un potentiel Stillinger-Weber modifié [86], qui se compare avantageusement aux autres potentiels empiriques pour la modélisation du *a*-Si. Bien qu'on sache que les potentiels empiriques ne soient pas d'aussi bons descripteurs que les méthodes *ab initio*, d'autres études [40, 41] ont montré que les potentiels empiriques permettaient quand même de dégager des tendances valides, à moindre coût. Enfin nous présentons les deux méthodes de préparation du *a*-Si, la trempe et l'approche WWW, qui seront comparées dans notre étude.

Chapitre 3

Article 1 : Internal mechanical dissipation mechanisms in amorphous silicon

Cette section présente les principaux résultats du projet de maîtrise sous forme d'article. J'ai réalisé toutes les simulations et les analyses de données. J'ai également rédigé la première version de l'article, qui a été révisée par les coauteurs. L'article est publié dans la revue *Physical Review Materials* [56].

Auteurs

Carl Lévesque, Sjoerd Roorda, François Schiettekatte, Normand Mousseau

Résumé

Nous utilisons la technique d'Activation-Relaxation nouveau pour trouver des systèmes à deux niveaux (TLS) dans le *a*-Si. Les TLS sont des mécanismes reliés à la dissipation mécanique interne et constituent la principale source de bruit dans la plage de fréquence la plus sensible des plus grands détecteurs d'ondes gravitationnelles, en même temps d'être une des principales sources de décohérence dans les ordinateurs quantiques. Nous montrons que dans le *a*-Si, la majorité des TLS d'intérêt appartiennent à deux catégories : les sauts de défauts de liaisons où deux voisins échangent un défaut topologique, et le mécanisme d'échange de lien Wooten-Winer-Weaire. La distribution de ces catégories dépend fortement de la routine de préparation du *a*-Si. Nous utilisons nos résultats pour calculer la dissipation mécanique dans le *a*-Si et nous trouvons un angle de perte de 10^{-3} à la température de la pièce, qui, dans certaines configurations, diminue jusqu'à 10^{-4} quand la température atteint 150 K. Nos modèles indiquent que de multiples classes d'évènements peuvent causer de la dissipation mesurable par les expériences dans les matériaux désordonnés, et, en conséquence, de multiples stratégies seraient nécessaires pour réduire leur impact.

Abstract

Using the Activation-Relaxation Technique-nouveau, we search for two-level systems (TLSs) in models of amorphous silicon (*a*-Si). The TLSs are mechanisms related to internal mechanical dissipation and represent the main source of noise in the most sensitive frequency range of the largest gravitational wave detectors as well as one of the main sources of decoherence in many quantum computers. We show that in *a*-Si, the majority of the TLSs of interest fall into two main categories: bond-defect hopping where neighbors exchange a topological defect and the Wooten-Winer-Weaire bond exchange. The distribution of these categories depends heavily on the preparation schedule of the *a*-Si. We use our results to compute the mechanical loss in amorphous silicon, leading to a loss angle of 10^{-3} at room temperature, decreasing to 10^{-4} at 150 K in some configurations. Our modeling results indicate that multiple classes of events can cause experimentally-relevant TLSs in disordered materials and, therefore, multiple attenuation strategies might be needed to reduce their impact.

3.1. Introduction

Current gravitational wave detectors (GWD) consist of Michelson interferometers with arms the length of a few km containing a Fabry-Perot cavity. Since 2015 [1], GWDs have successfully detected nearly a hundred events [2], at an accelerating pace thanks to continuous efforts. Among the targets for improvement are the test masses: massive dielectric mirrors at the end of each arm. Their reflective surface consist of a stack of alternating high refractive (HR) and low refractive (LR) index materials. In the current implementation of LIGO and VIRGO, the LR material for coating is amorphous silica and the HR material Ti-doped amorphous tantala [34]. Amorphous materials, especially in the HR layers, present intrinsic fluctuations that can be directly linked to the mechanical dissipation (Q^{-1}) and thermal noise through the fluctuation-dissipation theorem [49, 51, 71]. Such phenomena also cause decoherence in some quantum computers [66]. Despite considerable efforts to reduce these losses in the HR layers [3, 31, 50], low mechanical loss remains the limiting factor of noise at frequencies around 50 Hz in major GWDs, at which these detectors are the most sensitive [65].

Here, we investigate the origin of the mechanisms leading to internal mechanical dissipation through atomistic simulations, by finding two-level systems (TLSs). We conduct over 6 million event searches for TLSs in 201 amorphous solid configurations. This leads to the identification of 423 TLSs.

In order to simplify the problem, we investigate amorphous silicon (*a*-Si), a prototypical model of a continuous random network. *a*-Si consists of a single element and its structure and dynamics have been under investigation for more than 50 years [52]. Beyond its generic

interest, *a*-Si is directly relevant in the GWD context as it is considered for future generations of GWD [10]: it features a high refractive index, reducing the number of layers in the stack, and it can be synthesized with a ultra-low internal mechanical dissipation [54].

We show that (i) a distribution of TLSs within the experimentally-relevant energy and frequency range; (ii) depending on the relaxation state of the material, relevant events are dominated by a dangling bond hop or the more elaborated Wooten-Winer-Weaire (WWW) [91] bond exchange mechanism; and (iii) the loss angle deduced from our models is compatible with experiments. Overall, these results suggest that since multiple classes of events can be associated with TLSs in the same frequency range in disordered materials, so multiple strategies might be needed to reduce their number.

3.2. Theory and methods

3.2.1. Two-level systems

Due to metastability associated with structural disorder and a distribution in local strain, amorphous materials present, intrinsically, more possibilities for the presence of local minima separated by low-energy barriers than their crystalline counterparts. As they evolve over time, solid-state systems can be pictured as transiting from one local minimum to the other on a potential energy landscape [89]. In the context of amorphous solids, a two-level system happens when two minima are connected by a low-energy single saddle point and surrounded by much higher energy barriers so that the system is locally trapped in a two-state basin.

Two-level systems (TLSs) in amorphous solids were first introduced as a way to explain the behavior of their specific heat and thermal conductivity at low temperatures [87]. Atoms tunneling through saddle points of TLSs provide more degrees of freedom to the system, increasing its heat capacity. As illustrated in Fig. 3.1, a TLS can be characterized by the energy of its saddle point (S) relative to the minima (states 1 and 2), called the barrier (V), and the difference in energy between the two minima, called the asymmetry (Δ).

We note that while the rugged nature of the energy landscape of amorphous solids gives a very large, quasi-continuous global distribution of barriers and asymmetries [45], events are localized in space and distributed throughout all the sample. Therefore they can be trapped by important gaps in the local barrier distributions, making dissipation a local phenomenon.

Assuming that quantum tunneling is negligible and that the system has the time to thermalize in a local state after crossing a saddle point, the mean rate at which it will transition from minimum 1 to minimum 2, τ_{12} is given by the Arrhenius law

$$\tau_{12} = \tau_0 e^{\frac{E_S - E_1}{k_B T}}, \quad (3.2.1)$$

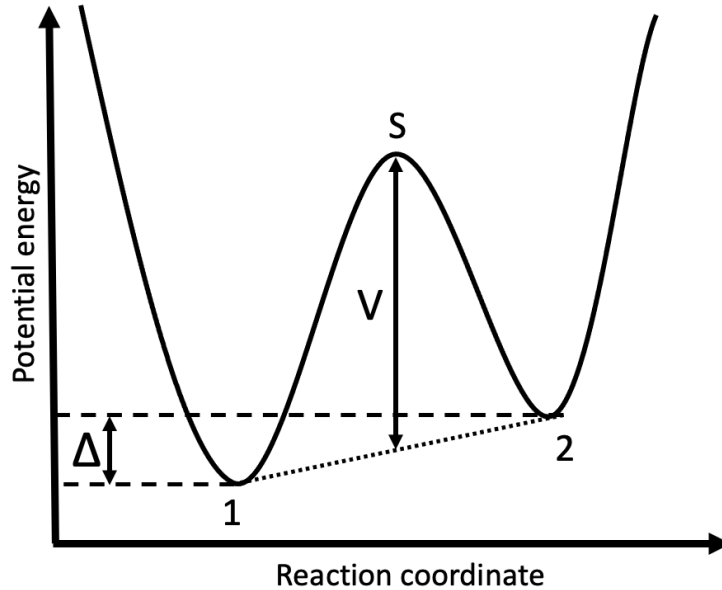


Fig. 3.1. Potential energy landscape representation of a two-level system. The minima 1 and 2 are connected by a saddle point S. The mean barrier is V and the asymmetry is Δ .

where τ_0^{-1} is the attempt frequency, E_s and E_1 are the energy levels at the saddle point and the first minimum, respectively. While attempt frequencies can vary considerably [28], calculations of these quantities in *a*-Si with the harmonic transition state theory were found to be close to 10^{13} s^{-1} with small fluctuations (see Fig. 9 in ref. [84]). To shorten the simulations, we shall use a constant value of $\tau_0 = 10^{-13} \text{ s}$.

Because of the finite asymmetry Δ , τ_{12} is different from τ_{21} . For the whole TLS, a relaxation time, τ is defined as a function of temperature T , V , Δ , and τ_0 [44]

$$\tau = \tau_0 \operatorname{sech} \left(\frac{\Delta}{2k_B T} \right) e^{\frac{V}{k_B T}}. \quad (3.2.2)$$

Mechanical dissipation in the frequency regime of Hz to MHz in amorphous materials, in response to a strain wave of frequency ω , is widely thought to originate from the excitation of TLSs [68]. Mechanical energy from the wave ($V \pm \Delta/2$) can push the TLS to its saddle point. The TLS will then relax to state 2, transforming the mechanical energy into thermal energy. Dissipation from a given TLS will be maximized when its relaxation time (Eq. 3.2.2) matches the inverse frequency of the dissipated excitation. An approximation for relevant barriers is given by

$$V \sim k_B T \ln \frac{1}{\omega \tau_0}. \quad (3.2.3)$$

In the context of gravitational wave detectors, mirrors are kept at temperatures ranging from room temperature down to cryogenic temperatures of 124 K [10]. At these temperatures

and frequencies, quantum tunneling will be completely negligible in comparison to thermal activation, such that Eq. 3.2.1 is valid. Taking $\omega = 50$ Hz we get relevant barriers of 0.28 eV and 0.67 eV for temperatures of 124 K and 300 K, respectively.

If the entire distribution of TLSs configuration is known, the inverse quality factor, Q^{-1} , also called the loss angle of the bulk material, can be computed as follows:

$$Q_{(\omega)}^{-1} = \frac{1}{E} \sum_i \frac{\gamma_i^2}{k_B T} \frac{\omega \tau_i}{1 + \omega^2 \tau_i^2} \operatorname{sech}^2 \left(\frac{\Delta_i}{2k_B T} \right). \quad (3.2.4)$$

A detailed derivation for this equation can be found in Ref. [68]. The sum runs over every TLS in the system. τ_i and Δ_i is the relaxation time and asymmetry of the TLS i . E is the elastic modulus and ω is the frequency of the applied strain. γ_i is the strength of the coupling between the TLS i and the strain called the deformation potential. This deformation potential can be obtained from the coupling tensor

$$\bar{\gamma} = \partial \Delta / \partial \bar{\epsilon}, \quad (3.2.5)$$

where $\bar{\epsilon}$ is the strain tensor.

Both γ and E depend on the nature of the strain. For example, to compute the attenuation of a longitudinal wave with Eq. 3.2.4, E will be the longitudinal modulus and γ will be the longitudinal deformation potential. A detailed derivation has been carried out by Damart and Rodney in Ref. [20].

3.2.2. Atomic models

To conduct this study, we consider quenched-melt and hyperuniform network models.

200 quenched-melt systems of 1000 atoms of a -Si are generated. All 200 models are prepared using the molecular dynamics (MD) simulation software LAMMPS [78] following the same melt-quench procedure: 1000 atoms are distributed randomly in a periodic box at a temperature of 3000 K, the system is then cooled (quenched) at a (relatively) slow rate of 10^{11} K/s, freezing in an amorphous configuration. This method has the advantage of moderate computing cost and melt quench methods with slow cooling rate have been shown to generate samples that are in good agreement with well-annealed experimental a -Si [21, 39].

We compare these models with a nearly hyperuniform network of a -Si developed by Hejna *et al.* [35]. This system was built using a modified version of the WWW algorithm [91] developed by Barkema and Mousseau [8]. The systems are then annealed for further relaxation and meticulously compared to experimental data.

While recent developments in machine-learning forcefields [21] offer an interesting alternative to empirical potentials, the computational effort needed to generate a sufficient set of TLSs (more than 6 million event searches) and uncertainty as to the validity of these models

regarding energy barriers associated with rare events, led us to turn to well characterized empirical potentials. More specifically, a modified version of the Stillinger-Weber potential parameter set, developed by Vink *et al.* [86] was used and applied to the original formulation to simulate the structural and vibrational properties of *a*-Si.

For our topological analysis we define a cutoff value for two atoms to be connected at the middle point between the first and the second peak of the radial distribution function (supplementary Fig. 1) of our configurations. This middle point lies around 3.05 Å. This is the same cutoff definition and value as Ref. [8].

3.2.3. Activation-Relaxation Technique

In this work we search for thermally activated events with characteristic times of the order of the millisecond to the second. Here we select to use the Activation-Relaxation Technique nouveau (ARTn) [6, 57], a saddle point search method that is ideally suited for such tasks as it focuses on finding high barrier events (with high characteristic times) without having to compute every thermal atomic vibration.

This technique samples events in the potential energy landscape and finds their barriers and asymmetries. Characteristic times are then found using Eq 3.2.2. MD-based methods can also be used to identify saddle points in such systems [20, 32]. Because the timescale on which such method operates (ns), only low-energy barriers are efficiently identified. Those contribute to dissipation at low temperature or high frequency according to Eq. 3.2.3. Hence, both methods are complementary.

3.3. Results and discussion

3.3.1. Sampling

Using ARTn, we first explore the energy landscape around the final structure of the 200 quenched-melt 1000-atom configurations. For each sample, 30 ARTn searches are conducted per local topology. Since in amorphous materials the number of different environments is much larger than 1000, which is the number of local environments centered on the atoms in each of the systems, there are 30 000 event searches per configuration. While events with energy barriers ranging from 0 to 5 eV cut-off are generated, only events with an activated barrier $0.2 \leq V \leq 0.7$ eV are considered in the study because, as explained in section II-A, TLS with lower or higher barriers will not contribute significantly to internal mechanical dissipation between temperatures of 124 and 300 K (Eq. 3.2.3). A cutoff in asymmetry is chosen at $V = \Delta/3$, represented by the diagonal lines in Fig. 3.2, because the contribution to dissipation of events with higher asymmetry is exponentially suppressed by large Δ (see Eq. 3.2.4). Damart and Rodney have also shown in [20] that TLSs with larger asymmetry do

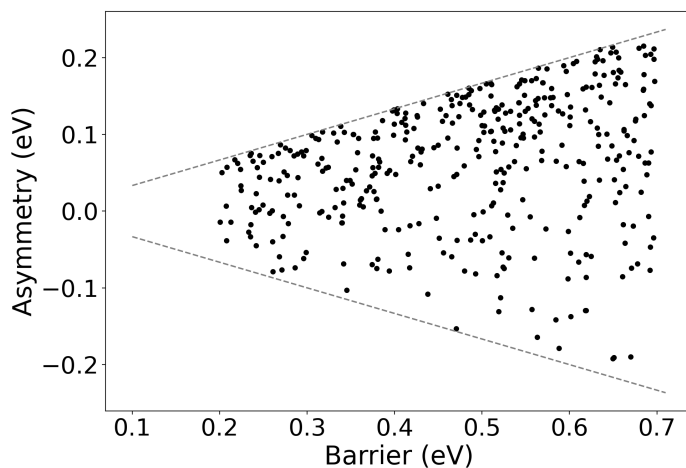


Fig. 3.2. Barrier and asymmetry of events found by ART. The gray dotted lines show the asymmetry cutoff.

not contribute to the mechanical loss. The barrier and asymmetry of the remaining events are plotted in Fig. 3.2. We note that the TLS considered here represent only a very small fraction of all events found in this search.

TLS events found by ARTn can be characterized by the norm of the displacement of the main atom (i.e. the one moving the most) when the system transitions between two minima of the potential energy landscape, and the number of atoms involved in the transition. An atom is considered to be active if its displacement is greater than 0.1 \AA .

Fig. 3.3 shows the root of the sum of squared displacements for active atoms; the marker color corresponds to the number of active atoms according to the scale on the right. We see that the magnitude of the atomic displacements is correlated with the energy barrier, although with considerable dispersion. In addition, large displacement for the main atoms is generally associated with a larger number of active atoms (green dots). Conversely, the blue dots, representing events with a few active atoms, are at the bottom of the graph while the green dots, representing events with several active atoms, are at the top. In contrast, we have not found any correlation between local environment descriptors, such as bond-length, bond-angle distribution or Voronoi volume, and barriers. In general, TLSs events involve between 5 to 30 active atoms, a number much smaller than the 20 to 150 active atoms found in oxide glasses [32, 79]. This indicates that TLSs are much more localized phenomena in a more locally rigid structure with a higher coordination number, such as amorphous silicon, than oxides.

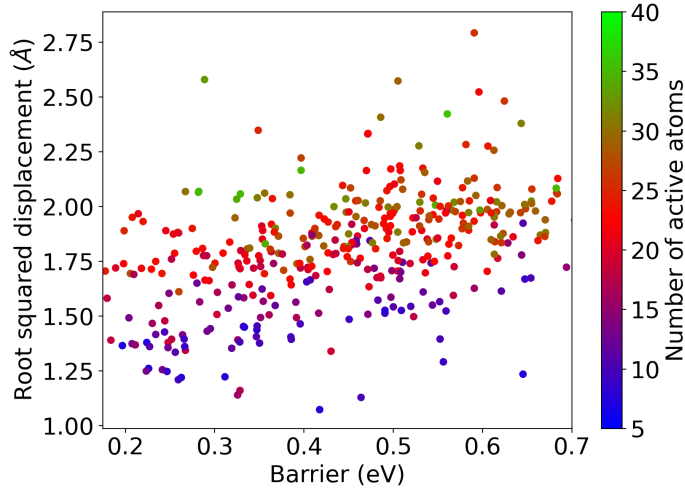


Fig. 3.3. Root of squared atomic displacement in each TLS as a function of the energy barrier for the events plotted in Fig. 3.2. Symbols are color-coded according to the number of active atoms during the event (right scale).

3.3.2. Categorizing TLSs

Following the classification of activated events in *a*-Si developed by Barkema and Mousseau in [7], we adopt a three-class categorization based the evolution of the bond network during events. The first category of TLSs (type 1) is associated with a bond hop from one atom to another. These events usually involve the diffusion of a coordination defect, such as dangling bond defects, and will be called *bond defect hopping TLSs*. These jumps are typically made possible by the movement of a single atom, leading to a relaxation of the surrounding environment.

In the example of Fig. 3.4, the main atom (B, in red) is 5-fold coordinated. As for the yellow atoms, which are the ones that change their bond with the main atom during the process, atom A (in yellow) initially features coordination of 4, but becomes 3-fold coordinated at the end of the event. The inverse happens to atom C (also in yellow): it is initially 3-fold coordinated and becomes 4-fold coordinated during the process.

The second category of TLSs (type 2) corresponds to the (WWW) bond exchange mechanism [91] and is called *bond-exchange TLS*. This mechanism is commonly observed in *a*-Si [7, 84] and has been described in other amorphous and crystalline solids such as graphene[75]. It involves two connected atoms exchanging their respective bonds between them. An example is provided in Fig. 3.5. The atoms A and B (in red) stay connected at all times and exchange their bonds to atoms C and D (in yellow). Interestingly, these events do not depend on the presence of a bond-defect to occur, as opposed to type 1 events, and can occur in a material featuring few voids.

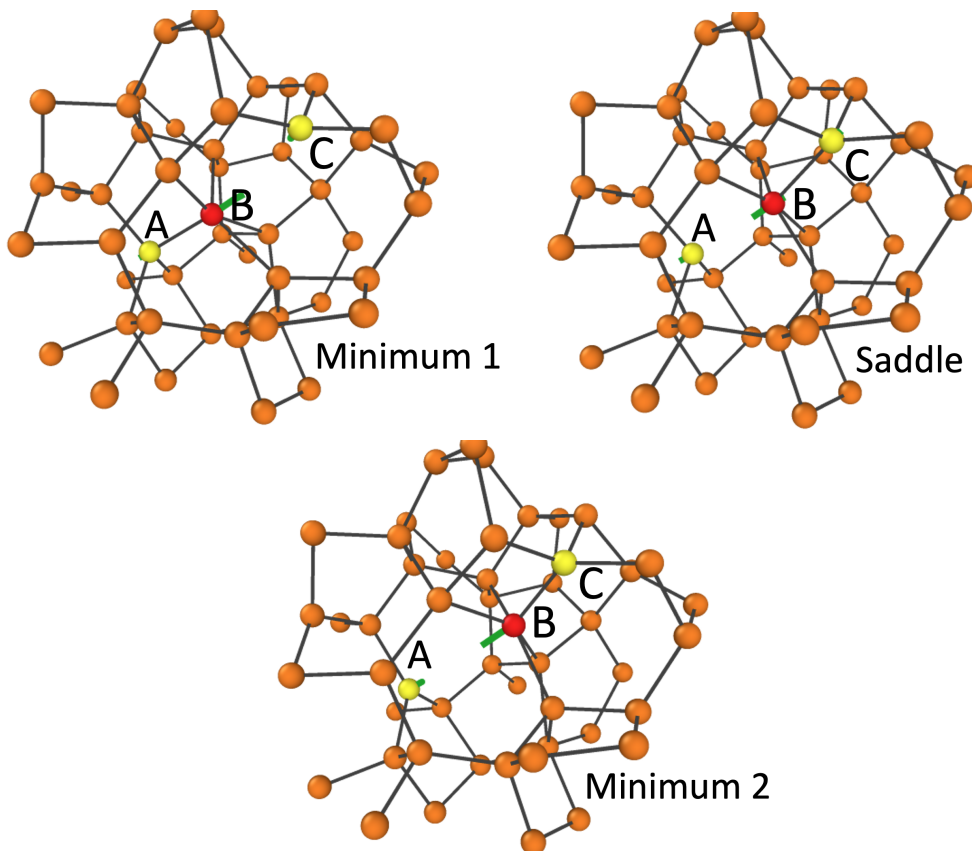


Fig. 3.4. Example of bond defect hopping event (type 1) showing the system at both minima and at the saddle point. The central atom is in red. The atoms in yellow change their bonding status with the main atom. The green lines show the displacement of the atoms between the images.

The third class of events includes all TLSs that do not fit the first or the second category. Typically, these TLSs involve three or more atoms. While it is formally possible to further analyze them [62, 84], their diversity limits the understanding we can gain from their detailed classification so we will focus on type 1 and 2 TLSs.

Fig. 3.6 shows that bond defect hopping and bond exchange TLSs exhibit different barrier distributions. Bond defect hopping TLSs are associated with lower barriers than bond exchange, due to the presence of a bonding defect on the central atoms. The strain associated these defects increases the potential energy of the two minima and lowers the saddle point barrier. Asymmetries, on the other hand, are distributed relatively evenly for all types of TLSs.

3.3.3. Mean trends

Local environments that support TLSs display some structural characteristics that separate them from the rest of the sample.

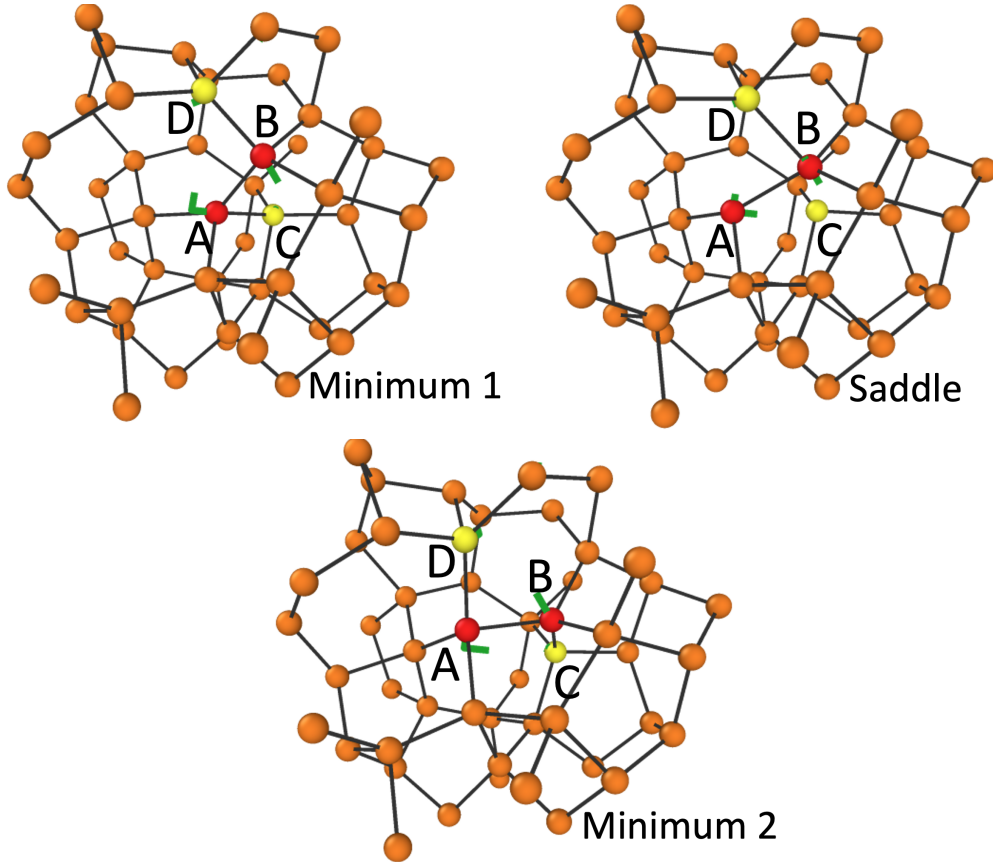


Fig. 3.5. Example of a bond exchange TLS (type 2). The red atoms are the main atoms. The yellow atoms break a bond with one red atom and form a new bond with the other red atom. The green lines show the displacement of the atoms between the images.

These can be summarized by looking at the local density obtained from computing the Voronoi volume surrounding each atom. While the average density, as measured over all atoms, is 2.20 g/cm^3 , the local value surrounding the dominant atom associated with TLSs is only 2.08 g/cm^3 . These zones of low density are associated with strained or under-coordinated atoms, creating local instabilities that favor the formation of TLSs. Figure 3.7 confirms this by showing that the dominant atom associated with TLSs have a longer bond (top graph, dashed curves) and a wider bond angle distributions (bottom graph, dashed curves) compared to all the atoms of the system (black solid curve).

3.3.4. Relation between structure and mechanical loss

Experiments have shown that thermal annealing or deposition at high substrate temperature reduces significantly the mechanical loss of amorphous materials [82], especially silicon [54]. It is generally argued that this reduction is due to thermal activation that allows the material to reach more relaxed states.

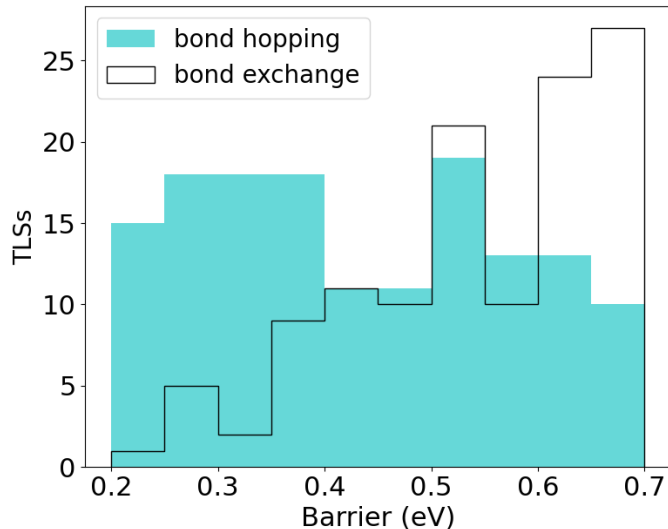


Fig. 3.6. Barrier distribution of bond defect hopping (cyan, full bars) and bond exchange TLSs (empty bars).

Table 3.1. Characteristics of *a*-Si configurations prepared by melt-quench (this work) and by bond-exchange (NHN) [35, 91]. Uncertainties in the first column correspond to the standard deviation computed over 200 independent samples.

Sample	Melt-Quench	bond-exchange (NHN)
Energy (eV per atom)	-3.078 ± 0.004	-3.089
Density (g/cm ³)	2.200 ± 0.006	2.21
Over-coordination defect (per 1000 atoms)	17 ± 4	0.4
Under-coordination defect (per 1000 atoms)	7 ± 2	0.45
TLSs found		
Nominal	390	33
Per 1000 atoms	1.95	1.65

To assess the importance of this effect here, we compare configurations obtained by different means. More specifically, we compare the systems discussed until now, obtained by melt-quench models, with a nearly hyperuniform network (NHN) model built by Hejna *et al.* [35] and presented in section 3.2.2.

We present some physical and structural characteristics of samples prepared using the two methods in Tab. 3.1. Despite similar atomic densities and potential energy per atom, the

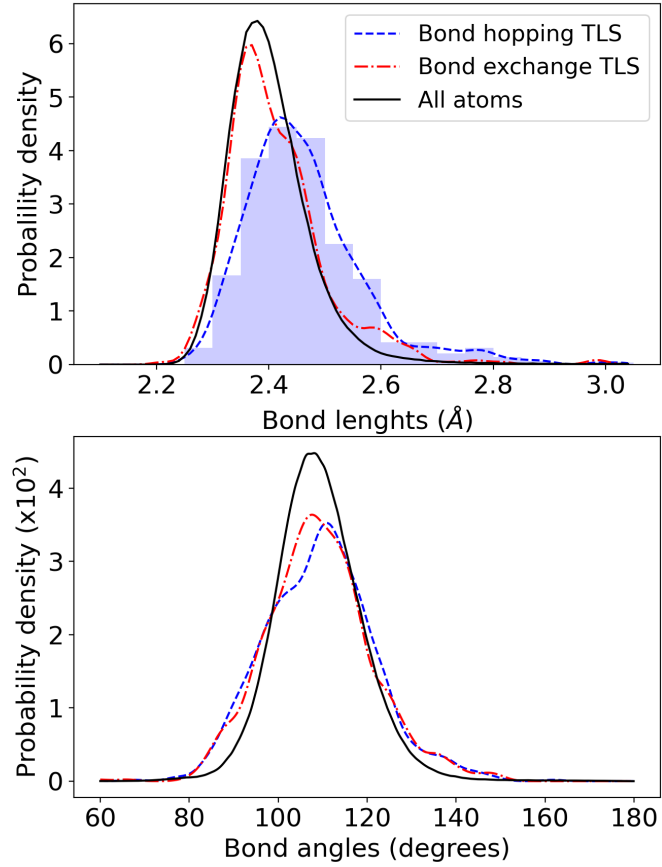


Fig. 3.7. Smoothed distribution of the bond lengths (top) and the bond angles (bottom) of the main active atom in the bond defect hopping (blue dashed curves) and bond exchange TLSs (red dotted curves). The black dotted lines represent the first peak and bond angle distribution of the RDF of our *a*-Si configurations. A raw histogram (blue, top) is also shown to illustrate the effect of the smoothing.

configuration obtained with a bond-exchange approach shows a significantly lower density of point-defects compared to those obtained by melt-quench.

The lower density of the NHN configuration is reflected in its TLSs distribution generated with ARTn, as before. Figure 3.8 shows a depleted TLS distribution in the NHN configuration at low barriers (between 0.1 to 0.4 eV) as compared with the melt-quench models. This depletion is associated with a reduced ratio of bond defect hopping (type 1) to bond exchange (type 2) TLSs. This is not too surprising considering that bond hopping events have in general lower barriers (Fig. 3.6) and often involve coordination defects, which are much rarer in the NHN model as seen from Tab. 3.1. Figure 3.9 shows histograms of the number of events by type in the melt-quench and NHM models normalized by the number of atoms

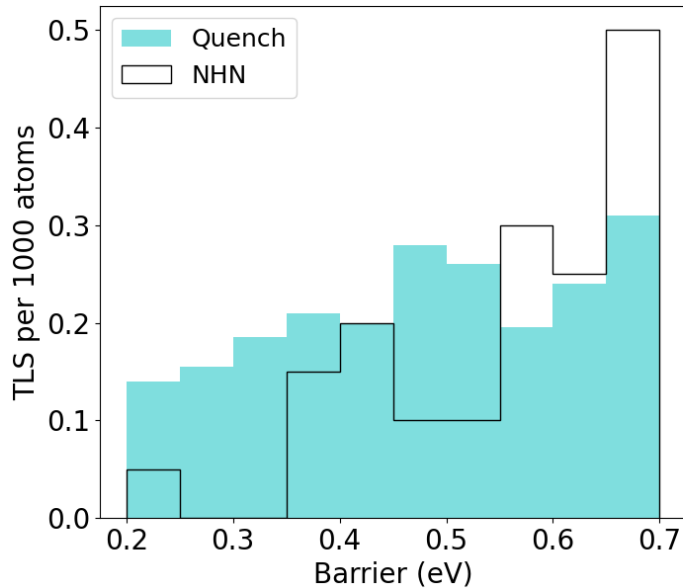


Fig. 3.8. Energy barrier distribution for the TLSs in models obtained by the melt-quench and NHN preparation methods (described in text).

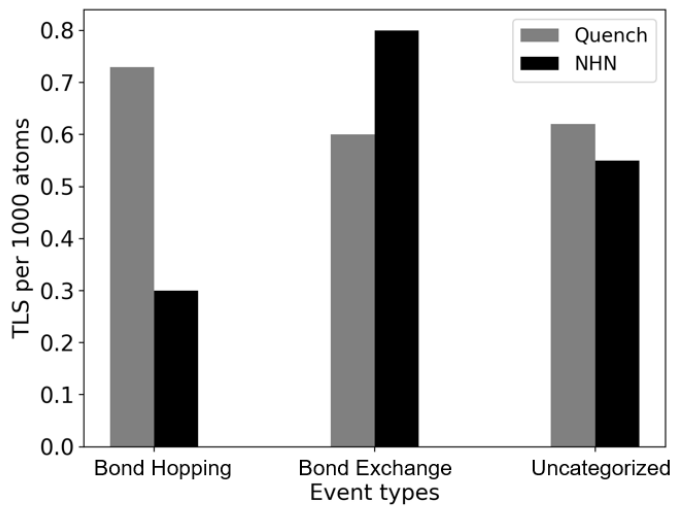


Fig. 3.9. Density of the three types of TLSs in quenched a -Si (blue) and NHN a -Si (orange).

in each model. This confirms the much lower density of bond defect hopping event in NHN models, but it also underlines that the similar strain leads to a roughly similar total density of TLSs on both the NHN and the melt-quenched systems (also see Tab 3.1).

3.3.5. Loss angle calculations

Knowing the microscopic details of TLSs, it is possible to compute directly the mechanical loss of *a*-Si using Eq. 3.2.4. The details and approximations used are described in section 3.2.1.

The first step is to compute the strain-asymmetry coupling tensor in Eq 3.2.5. We obtain this quantity by applying a small affine deformation to both minima of every TLS. The potential energy of each minimum is then computed. This is done for both positive and negative strain and results are averaged over both. We verify that varying the amplitude of the deformation does not change the results.

The deformation potentials for longitudinal and traverse strain waves are then computed using the formula derived by Damart and Rodney [20]. For the longitudinal deformation potentials, we get values between 0.5 and 9.1 eV and a mean value of 4.1 eV and for the transverse case we get energies ranging from 0.4 to 7.8 eV with a mean value of 3.4 eV. Deformation potentials are found to be uncorrelated to the barrier or the asymmetry. Experiments have reported average transverse deformation potentials of 1 eV [27], however those were conducted below 1 K, so barriers involved were much lower than those studied in this work, so we suppose the minima of active TLSs to be closer in geometry and their deformation potential to be lower.

Mechanical loss predictions are presented in Fig. 3.10 for both the melt-quench (black) and NHN configurations (red). The thin curves represent each term in the sum (Eq. 3.2.4), while the thick curves are the total. The melt-quench configurations lead to an almost constant Q^{-1} value close to 10^{-3} at temperatures between 100 and 300 K. This compares well with experimental measurements on *a*-Si deposited at 45°C and 200°C that show Q^{-1} values between 10^{-4} and 10^{-3} [54]. In particular, the loss angle in our melt-quenched systems is very close to the experimental loss angle in *a*-Si deposited at 45°C. This difference is expected because the short cooling time of our simulations is equivalent to a low deposition temperature in the sense that both leave little time for relaxation events to take place.

Because we consider only one sample, the NHN system presents a much lower absolute number of TLSs — 33 vs 390, leading to more noise: a few TLSs are causing peaks in the dissipation for this system, namely the ones centered at 100, 225 and 260 K. These TLSs have such high contributions because of their very low asymmetry (0.009, 0.021 and 0.034 eV, respectively). We expect that these peaks would flatten with more data obtained on a larger system or better statistics.

Nevertheless, it is remarkable that the NHN configuration yields a similar mechanical loss to that of the melt-quench around room temperature. Dropping down to cryogenic temperatures however, the mechanical loss decreases significantly, getting as low as 10^{-5} (although this result is strongly influence by single TLSs, such as the one producing a peak

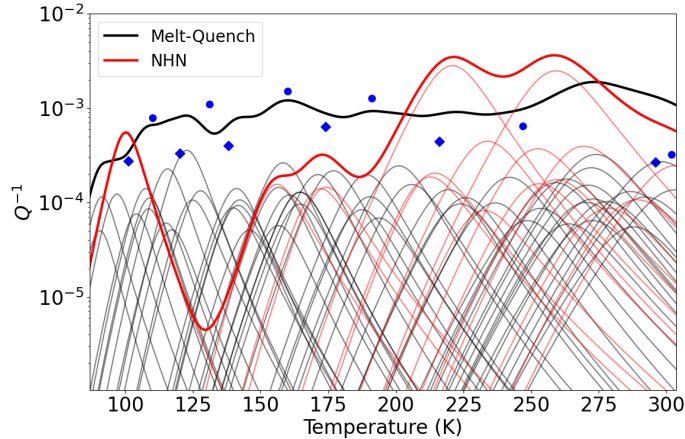


Fig. 3.10. Internal mechanical dissipation computed for quenched *a*-Si (black) and NHN *a*-Si (red). The pale curves show the contributions from individual TLSs. Blue circles and blue diamonds are experimental data in *a*-Si deposited at 45°C and 200°C respectively, from Ref. [54].

near 100 K). In the previous section we showed that the bond defect hopping TLSs, which compose most of the low barrier TLSs in *a*-Si (Fig. 3.9), are much less frequent in the NHN configuration, causing the rarefaction of low barriers in this configuration (Fig 3.8.). The same explanation applies here as well, as low barriers are active at these low temperatures. Despite the smaller sample size of the NHN causing sharp peaks in the mechanical loss calculations, the reduction of low barrier TLSs is very clear (Table. 3.1), therefore this decrease of the loss angle with temperature should be significant.

This behavior of Q^{-1} in the NHN *a*-Si is similar to that of experimental hydrogenated *a*-Si, where the mechanical loss is high at room temperature but decreases significantly between 300 and 10K [55]. We validate this calculation, made on TLSs selected in section 3.3.1 for consistency, by comparing with the the Q^{-1} computation over all events found with barriers less than 1.2 eV, and find that the results does not change (see supplementary Fig. 2)

3.4. Summary and conclusion

This study aims to identify the structural origin of internal mechanical dissipation in amorphous solids. To do so, we focus on *a*-Si, a classical reference for covalent disordered materials. More precisely, we characterize the two-level state mechanisms (TLSs) found in 200 sets of 1000 aotms of melt-quench generated configurations and a single 20 000 atoms nearly hyperuniform network (NHN) built built by Hejna, Steinhardt and Torquato [35] using the WWW algorithm. Both configurations feature similar energies per atoms, however melt-quench generated *a*-Si has around 2.5% topological defects (3 and 5 fold coordinated atoms), while the NHN shows almost none. The potentiel-energy landscape is explored

with ARTn [6, 57]. We keep only TLSs with small barriers (0.2-0.7 eV) and asymmetries ($< V/3$) because they correspond to the experimental observation window. 390 TLSs in the melt-quench *a*-Si and 33 in the NHN are considered relevant to our study and further analyzed.

Loss angle calculations on these systems lead to a high loss angle close to 10^{-3} for both NHN and melt-quench *a*-Si at room temperature. While the loss angle in the melt-quench configurations stays relatively constant with temperature, NHN *a*-Si shows an important decrease in loss angle when the temperature drops from 300 to 100 K, a similar behavior to that observed experimentally in well-relaxed *a*-Si [54].

With the detailed information obtained through ARTn, TLSs can be classified by the bond-network change associated with the two-level system. Two-thirds of events fall into two categories : bond defect hooping and bond exchange. These two types of TLSs are associated with different local configurations: bond defect hopping happen around coordination defects and where bonds are stretched; and bond exchange TLSs are found in regions where all atoms are 4-fold coordinated but present small angle defects.

Our simulations demonstrate that various classes of TLSs can occur with different concentrations according to the preparation schedule. Quenching from a melt result in bond defect hopping being the dominant TLS type, because of the high concentration of trapped point defects in these configurations. NHN of *a*-Si has next to no point defects. This drastically reduces the concentration of bond hopping TLSs but has little effect on the concentration of bond exchange TLSs. From this we learn that TLSs are independent: the presence of one type of TLSs do not depend on the existence of other types. We also show that types of TLSs we find in different configurations are also specific to the preparation, or the relaxation path of said configuration.

Investigating other systems is necessary to improve our understanding of the atomistic origin of TLSs and internal mechanical dissipation. Work on oxide glasses was done in Ref. [20, 32, 79]. In Ref. [20], Damart and Rodney analyzed TLSs in SiO₂, and found different archetypes of TLSs than in *a*-Si, such as rotations of Si-O-Si chains. This suggests that TLSs are also specific to the the nature of the material, for instance between *a*-Si and oxide glasses such as SiO₂ and Ta₂O₅.

This work aims to provide insight in the reduction of thermal noise (and at the same time mechanical loss) in the mirrors of GWDs. Here, we find that decreasing TLSs in amorphous materials means understanding the nature of events for specific systems, but also addressing separately each of the potential classes of TLSs. Our results suggest that reduction of mechanical loss in GWDs will necessitate the suppression of each different type of TLS. In the case of *a*-Si, this means directly addressing two well-defined major categories of TLSs and a collection of more diverse, uncategorized TLSs that makes up about a third

of all TLSs, all of which may require different strategies to eliminate, once overall strain reduction become impossible.

Because of the importance of specificity, further study would benefit from better physical description to ensure that the atomistic details of TLSs are accurate. Since larger amorphous configurations tend to better reproduce experimental observations [8, 38], *ab initio* approaches are probably not appropriate. Recent development in machine-learning force-fields [21] offer here, new opportunity to deepen our understanding of these fascinating problems, as we better understand their validity for describing the rare events associated with TLSs.

3.5. Code and data availability

The ARTn packages as well as the data reported here are distributed freely. Please contact Normand Mousseau (normand.mousseau@umontreal.ca).

3.6. Acknowledgments

This project is supported by a team grant from the Fonds de recherche du Québec - Nature et technologie. NM acknowledges partial support through a Discovery grant from the Natural Science and Engineering Research Council of Canada. We are grateful to Calcul Québec and Compute Canada for generous allocation of computational resources.

3.7. Supplementary material

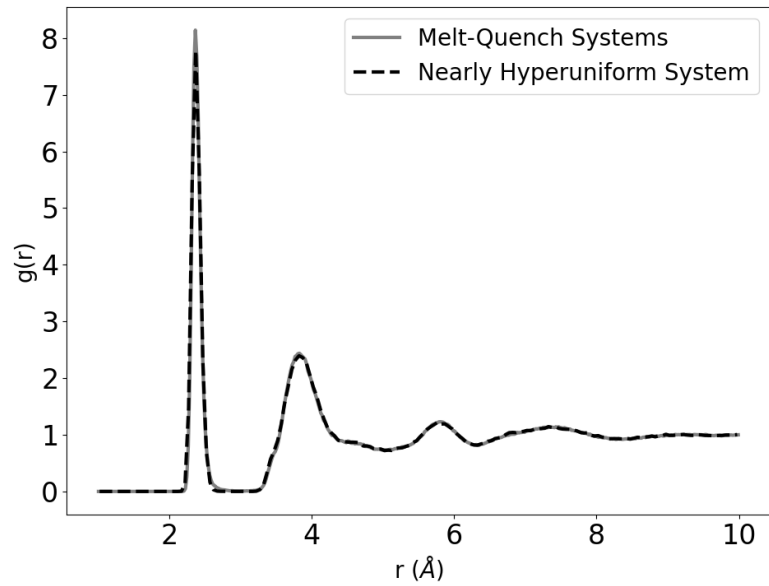


Fig. 3.11. Radial distribution functions for the melt-quench and the nearly hyperuniform a -Si structures. Both distributions are similar and show no outstanding differences.

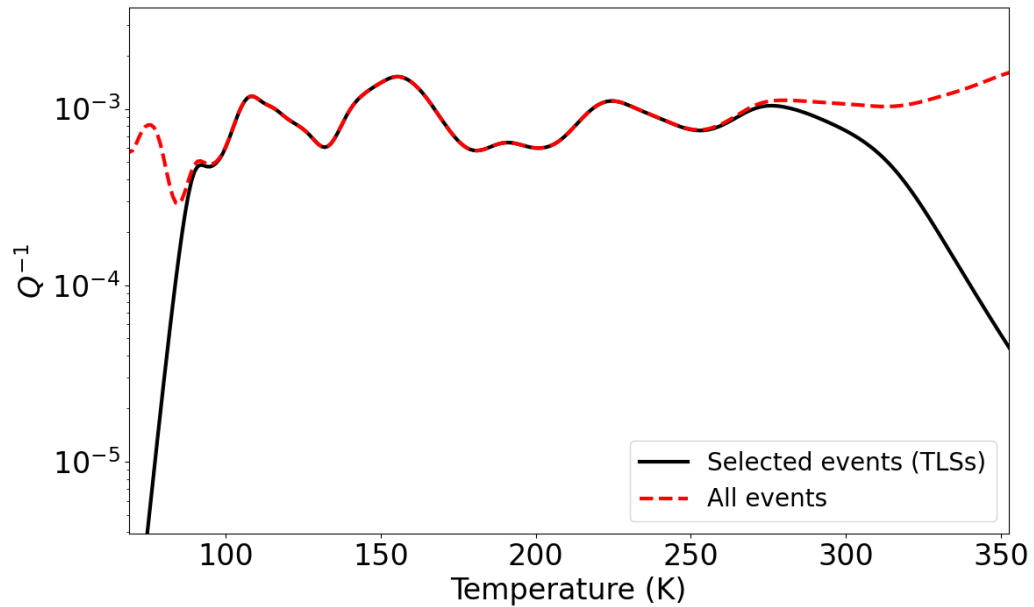


Fig. 3.12. Red solid curve : Loss angle of melt-quench *a*-Si structures shown in Fig. 10 of the main document. Black dotted line : Loss angle of melt-quench *a*-Si structures computed with all activated events found below a barrier of 1.2 eV. Both curves are almost perfectly superimposed between 124 K and 300 K, confirming that the selection criteria for TLSs have no incidence on our conclusions.

Chapitre 4

Spectroscopie mécanique dans le *a*-Si

4.1. Introduction et théorie

Les calculs de dissipation mécanique interne dans le *a*-Si aux chapitres précédents se sont appuyés sur le cadre théorique des TLS. Cette théorie s'est révélée un outil utile et a donné de bons résultats. Il a été mentionné que cette théorie s'appuie cependant sur certaines suppositions difficiles à vérifier. À cause de ces suppositions il est intéressant d'explorer une méthode plus directe de simuler et calculer la DMI : la spectroscopie mécanique.

La spectroscopie mécanique est originellement une technique expérimentale permettant de mesurer la DMI dans les polymères, les verres et les matériaux amorphes [70]. Elle consiste à imposer une déformation de la forme

$$\epsilon(t) = \epsilon_0 \cos(\omega t) \quad (4.1.1)$$

à ces matériaux.

Une contrainte

$$\sigma(t) = \sigma_0 \cos(\omega t + \delta(\omega)) \quad (4.1.2)$$

est observée en réponse, où δ est le déphasage entre la déformation et la contrainte, et est induit par les propriétés viscoélastique du matériau étudié et dépend de la fréquence d'excitation. Dans un solide cristallin parfait, par exemple, δ serait nul.

Le module de stockage élastique, décrivant la partie de l'énergie emmagasinée sous forme d'énergie élastique de déformation, est défini à partir de la déformation et de la contrainte comme

$$E'_{(\omega)} = \frac{\sigma_0}{\epsilon_0} \cos(\delta(\omega)). \quad (4.1.3)$$

On définit aussi un module de perte, décrivant l'énergie dissipée par le matériau.

$$E''_{(\omega)} = \frac{\sigma_0}{\epsilon_0} \sin(\delta(\omega)). \quad (4.1.4)$$

L'angle de perte, le ratio de l'énergie conservée et de l'énergie dissipée, est exprimé à partir de ces modules comme

$$\phi(\omega) = \frac{E''_{(\omega)}}{E'_{(\omega)}} = \tan(\delta(\omega)). \quad (4.1.5)$$

Une mesure de δ permet donc d’obtenir directement l’angle de perte.

Afin de déterminer l’angle de perte du *a*-Si, nous avons construit une simulation de dynamique moléculaire hors-équilibre en nous basant sur les travaux sur l’oxyde de tantale de Puosi et coll. [69]. Cette simulation imite la procédure expérimentale de la spectroscopie mécanique en appliquant une déformation périodique de la forme de l’équation 4.1.1 sur le système à l’étude. La contrainte résultante, $\sigma_{(t)}$, est ensuite calculée, et en s’appuyant sur l’équation 4.1.5, l’angle de perte est obtenu avec

$$\phi_{(\omega)} = \left[\int_0^{N_C T_\omega} \cos(\omega t) \sigma_{(t)} dt \right] / \left[\int_0^{N_C T_\omega} \sin(\omega t) \sigma_{(t)} dt \right], \quad (4.1.6)$$

où $T_\omega = 2\pi/\omega$ est la période de la déformation et N_C est le nombre de cycles de déformation simulés. Nous avons suivi les recommandations de Puosi et coll. et effectué nos calculs avec au moins 20 cycles de déformation ($N_C \geq 20$).

4.2. Modèle et paramètres

Les systèmes utilisés dans cette expérience sont des modèles de 1000 atomes de *a*-Si, construits avec la méthode de la trempe décrite dans la section 2.3. Les paramètres de cette procédure sont donnés dans la section 3.2.2.

Une déformation longitudinale dans les 3 dimensions est appliquée. Son amplitude est fixée à 1% ($\epsilon_0 = 0.01$) afin de s’assurer d’être dans le régime élastique linéaire. Il a été vérifié avec quelques simulations que varier l’amplitude de la déformation de 2% à 0.1% n’avait pas d’incidence sur les résultats. La simulation est menée avec le logiciel LAMMPS [78]. L’ensemble thermodynamique est NVT et un thermostat de Nosé-Hoover [59] est utilisé pour maintenir la température constante et dissiper la chaleur apportée par la déformation. Les équations du mouvement sont intégrés avec les équations SLLOD [24, 26], des équations adaptés aux systèmes soumis à des déformations dynamiques. En effet, les méthodes habituelle d’intégration des équations du mouvement, par exemple l’intégration de Verlet, ne peuvent pas être utilisés à cause de la déformation.

Les fréquences de déformation explorées se situent entre 1 THz et 2 GHz. À cause de la nécessité d’avoir au minimum 20 cycles de déformation pour calculer l’angle de perte, les coûts de calculs sont inversement proportionnels à la fréquence. Ceci impose une limite inférieure à la fréquence de déformation d’environ 1 GHz à ces simulations. À titre d’exemple, à une fréquence de 2 GHz, la simulation prend environ 12 heures sur un processeur de 16 coeurs. Malheureusement, cette contrainte nous garde très loin des fréquences d’intérêt des GWD, de l’ordre de 50 Hz.

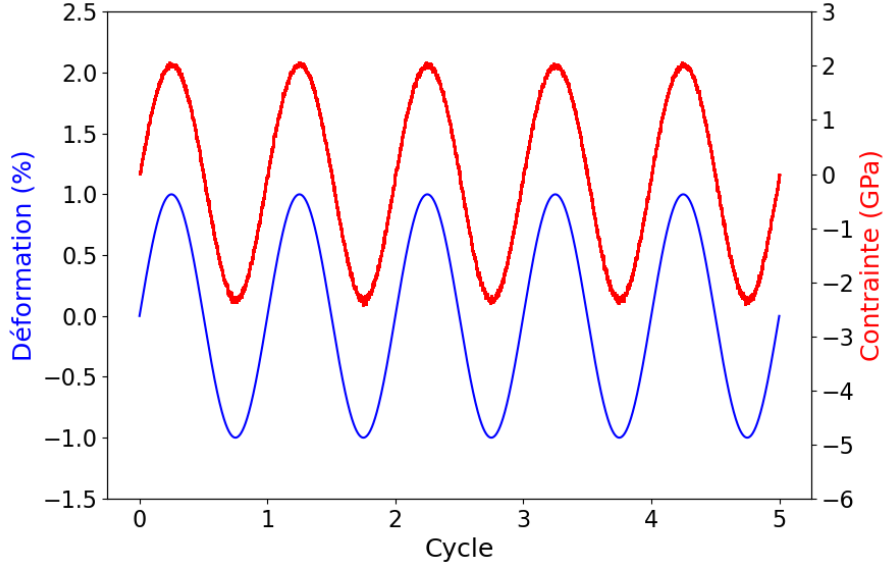


Fig. 4.1. Exemple d'une déformation périodique appliquée à une fréquence de 100GHz (bleu) et de la contrainte en résultant (rouge).

4.3. Résultats et discussion

L'angle de perte $\phi(\omega)$ a été calculé en fonction de la fréquence à des températures de 100 K, 200 K et 300 K. À des fréquences inférieures à environ 200GHz on observe sur la figure 4.2, comme la référence [69], que l'angle de perte obéit à une loi de puissance de la forme

$$\phi(\omega) \propto \left(\frac{\omega}{2\pi}\right)^{-\alpha}. \quad (4.3.1)$$

Notons que les angles de perte à plus haute fréquence ne suivent pas cette relation. En effet, le thermostat utilisé ne parvient pas à garder une température constante à ces hautes fréquences de déformation.

Les valeurs des exposants α sont présentés au tableau 4.1. On y remarque une forte dépendance de α sur la température. Puosi et coll. ont aussi trouvé une dépendance de α sur la température dans le Ta_2O_5 , mais uniquement dans leur systèmes les mieux relaxés.

Il est possible d'extrapoler les lois de puissances trouvées à la figure 4.1.5 jusqu'aux fréquences d'intérêt des GWD, aux environs de 50 Hz. Cette manœuvre est un peu hasardeuse : elle demande une extrapolation sur 7 ordres de grandeur, et donc de supposer que l'angle de perte obéisse à l'équation 4.3.1 avec un exposant α constant sur toute cette plage de fréquences. Les angles de pertes à 50 Hz obtenus de cette façon sont présentés au tableau 4.1. Ces valeurs sont de 2 à 4 ordres de grandeur sous les valeurs expérimentales (voir section 1.5)

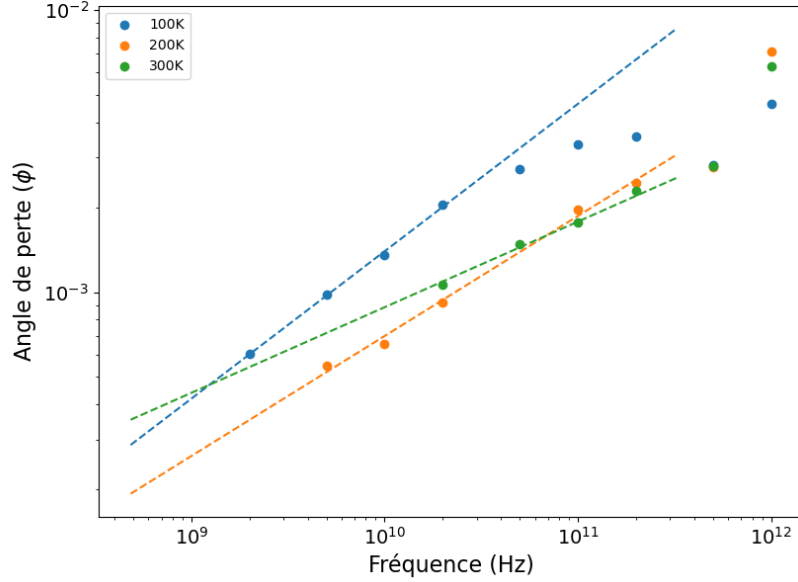


Fig. 4.2. Angles de perte dans le *a*-Si obtenus par spectroscopie mécanique simulée en fonction de la fréquence. Les simulations ont été faites à 300 K (vert), 200 K (jaune) et 100 K (bleu). Les lignes pointillés sont un ajustement de l'équation 4.3.1 sur les données.

Tableau 4.1

Température (K)	α Sans unités	$\phi_{(f=50Hz)}$ Sans unités
100	0.52	6.4×10^{-8}
200	0.43	2.1×10^{-7}
300	0.30	2.7×10^{-6}

Ce mauvais accord entre les données expérimentales et théoriques n'est pas incohérent avec nos résultats du chapitre 3. Nous trouvons que, dans le *a*-Si, les TLS donnant lieu à la DMI sont constitués de plusieurs catégories indépendantes. Les TLS actifs à hautes fréquences ont des barrières très faibles, sous 0.1 eV (équation 3.2.3). Il est donc fort probable que ces TLS appartiennent à des catégories totalement différentes de celles actives à 50 Hz. Corréler la DMI à très haute fréquence avec celle à 50 Hz est ainsi probablement incorrect dans ces systèmes.

4.4. Spectroscopie mécanique avec Monte-Carlo cinétique

Il a été mentionné qu'il est impossible de faire de la spectroscopie mécanique numérique à basses fréquences en raison de coûts de calculs trop important liés à la dynamique moléculaire.

Pour surmonter ce problème et faire de la spectroscopie mécanique à des fréquences de l'ordre du kHz, nous avons tenté de remplacer la dynamique moléculaire par technique d'activation-relaxation cinétique (ARTc) [25].

ARTc utilise la technique d'activation-relaxation pour trouver tous les évènements dans le système étudié et construire un catalogue d'évènements. La théorie de l'état de transition présentée à la section 1.2 prévoit qu'un évènement a un temps caractéristique d'activation τ qui dépend de la hauteur de sa barrière V et de son préfacteur τ_0

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{-V}{k_B T}\right). \quad (4.4.1)$$

Une fois le catalogue construit un évènement est choisi aléatoirement avec une probabilité proportionnelle à τ^{-1} . Le système est placé dans le second minimum de de l'évènement choisi et le temps de simulation est avancé de

$$\Delta t = \frac{\ln \mu}{\sum_i \tau_i^{-1}}, \quad (4.4.2)$$

où μ est un nombre aléatoire entre 0 et 1. ARTc ne sera pas décrit en détail ici, mais une description détaillée est disponible dans la référence [63].

La séquence suivie pour faire de la spectroscopie mécanique avec ARTc est la suivante

- (1) Le catalogue d'évènements est construit par ART.
- (2) Un évènement est choisi par kART et le temps de simulation est avancé de Δt , calculé selon le temps caractéristique de l'évènement sélectionné.
- (3) Le système est déformé par dynamique moléculaire à très basse température selon Δt et l'équation 4.1.1.
- (4) On retourne à l'étape 1.

En utilisant cette méthode, il a été possible de faire un cycle de déformation à une fréquence de 1 à 1000 kHz, mais malheureusement sans plus. Deux problèmes font obstacle à cette technique. Premièrement l'apparition d'évènements avec de petites barrières (moins de 0.1 eV) suite aux déformations par dynamique moléculaire. Ces petites barrières ont un très faible temps caractéristique et seront presque toujours sélectionnées les premières par kART. La simulation évoluera donc très lentement dans le temps en sélectionnant uniquement ces petites barrières. Il a été possible de mitiger ce problème en minimisant le système après chaque déformation, en déformant doucement, c'est-à-dire en augmentant le nombre de pas de temps de la dynamique moléculaire, et en choisissant une petite amplitude de déformation ($\epsilon_0 < 0.001$).

Le deuxième obstacle à cette technique est la nécessité de recalculer le catalogue d'évènements entièrement après chaque déformation. Cette étape peut être très longue, en particulier dans de gros systèmes désordonnés, et elle apporte un coût de calcul important.

4.5. Conclusion

Nous avons mené des expériences de spectroscopie mécanique numérique dans le *a*-Si. La dynamique moléculaire et ARTc ont été utilisés. Pour les expériences en dynamique moléculaire, l'angle de perte mesuré était loin des résultats expérimentaux, probablement à cause de la fréquence élevée utilisée. Il n'a pas été possible de mesurer l'angle de perte en utilisant ARTc.

Conclusion

Pour récapituler, nous nous sommes basés sur la théorie des systèmes à deux niveaux (TLS) pour identifier les mécanismes à l'échelle atomique responsables de la dissipation mécanique interne (DMI) dans le *a*-Si. Nous étudions 200 configurations de 1000 atomes de *a*-Si préparés par la méthode de la trempe en dynamique moléculaire et une configuration de 20 000 atomes qui a été construite avec l'approche du *sillium* par Hejna et coll. (référence [35]). Nous nous intéressons à la DMI à des fréquences autour de 50 Hz et à des températures entre 100 et 300 K. Les TLS contribuant à la DMI à ces températures et fréquences ont des constantes de temps près de 0.02 secondes et des asymétries petites par rapport à $k_B T$. Au total nous trouvons 423 TLS répondant à ces critères que nous analysons.

Nous observons que la plupart de ces TLS appartiennent à deux classes distinctes. Dans la première classe, le TLS est causé par un défaut de coordination, comme une liaison pendante, sautant d'un atome à un autre. La deuxième classe est analogue au déplacement de WWW, où deux atomes échangent un de leurs liens respectifs. La présence de ces classes de TLS dans nos configurations de *a*-Si est liée à la manière dont la configuration a été préparée : les TLS où un défaut se déplace sont les plus communs dans le *a*-Si préparé par tempe, alors que les TLS WWW dominent dans le *a*-Si préparé avec l'approche du *sillium*. De cette dépendance des classes de TLS sur la préparation des configurations et de la différence topologique qui les caractérise (présence de défauts de coordination pour une classe, absence pour l'autre) on conclut que ces TLS sont indépendants. Dans les cas des miroirs des GWD, différentes stratégies devront donc être utilisés pour la suppression de chacune de ces classes de TLS.

Pour comparer nos résultats numériques aux résultats expérimentaux nous avons calculé l'angle de perte dans le *a*-Si. Nous trouvons un comportement de l'angle de perte et un ordre de grandeur compatibles avec ce qui a été mesuré dans le *a*-Si par Liu et coll. 2.3. Ce bon accord suggère que les TLS trouvés par notre méthode d'exploration, en l'occurrence la technique d'activation et de relaxation nouveau, sont une bonne représentation de la vraie distribution de TLS dans le *a*-Si.

Cette technique est prometteuse pour l'étude de la dissipation mécanique interne dans les matériaux désordonnés et certaines améliorations devraient être envisagées pour la suite. La majorité des systèmes à l'étude étaient composés de 1000 atomes. Comme il est bien connu que, dans les solides désordonnés, de plus grands systèmes reproduisent mieux les observations expérimentales, il serait intéressant de répéter ce travail sur de plus grands

systèmes. Avec des coûts de calcul raisonnable, nous avons pu faire des recherches de TLS dans un système de 20 000 atomes, il est donc parfaitement envisageable d'étudier plusieurs autres systèmes de cette taille.

Une seconde piste concerne les potentiels. Le potentiel que nous avons utilisé est un potentiel empirique dont les faibles coûts de calcul sont un attrait majeur. Cependant, il est bien connu que les potentiels empiriques reproduisent mal les barrières expérimentales des événements. Les potentiels par apprentissage machine, développés récemment devraient être considérés comme alternative à notre potentiel empirique. En effet, ces nouveaux potentiels combinent un coût de calcul modeste à une précision se rapprochant des méthodes *ab initio*. Il faut toutefois noter que si ces potentiels ont généralement été testés pour leurs propriétés structurelles et vibrationnelles, ce n'est souvent pas le cas pour les transitions activées thermiquement à l'étude dans ce travail. Il faudrait donc s'assurer de leur validité dans ce cadre d'utilisation avant de s'en servir.

Une troisième idée pouvant améliorer ce qui a été fait dans ce projet de maîtrise est de compléter la recherche de TLS avec une seconde méthode de recherche de points de selle, par exemple la méthode de la bisection, déjà testée dans le *a*-Si par Daniel Wong [90]. Ceci permettrait de trouver de plus petites barrières que celles trouvés par ARTn et ainsi étendre le calcul d'angle de pertes à de plus basses températures.

Références bibliographiques

- [1] B. P. ABBOTT *et al.* : Observation of gravitational waves from a binary black hole merger. *Phys. Rev. Lett.*, 116:061102, Feb 2016.
- [2] R. ABBOTT *et al.* : Gwtc-3: Compact binary coalescences observed by ligo and virgo during the second part of the third observing run, 2021.
- [3] M ABERNATHY, A AMATO, A ANANYEVA, S ANGELOVA, B BALOUKAS, R BASSIRI, G BILLINGSLEY, R BIRNEY, G CAGNOLI, M CANEPA, M COULON, J DEGALLAIX, A Di MICHELE, M A FAZIO, M M FEJER, D FOREST, C GIER, M GRANATA, A M GRETARSSON, E M GRETARSSON, E GUSTAFSON, E J HOUGH, M IRVING, É LALANDE, C LÉVESQUE, A W LUSSIER, A MARKOSYAN, I W MARTIN, L MARTINU, B MAYNARD, C S MENONI, C MICHEL, P G MURRAY, C OSTHELDER, S PENN, L PINARD, K PRASAI, S REID, R ROBIE, S ROWAN, B SASSOLAS, F SCHIETTEKATTE, R SHINK, S TAIT, J TEILLON, G VAJENTE, M WARD et L YANG : Exploration of co-sputtered ta₂o₅-zro₂ thin films for gravitational-wave detectors. *Classical and Quantum Gravity*, 38(19):195021, sep 2021.
- [4] Shefford P. BAKER, Peter BØRGESEN, Caroline A. ROSS, Paul H. TOWNSEND et Cynthia A. VOLKERT, éditeurs. *Thin Films: Volume 356: Stresses and Mechanical Properties V*. Materials Research Society, Pittsburgh, Pa, juin 1995.
- [5] H. BALAMANE, T. HALICIOGLU et W. A. TILLER : Comparative study of silicon empirical interatomic potentials. *Physical Review B*, 46(4):2250–2279, juillet 1992.
- [6] G. T. BARKEMA et Normand MOUSSEAU : Event-Based Relaxation of Continuous Disordered Systems. *Physical Review Letters*, 77(21):4358–4361, novembre 1996.
- [7] G. T. BARKEMA et Normand MOUSSEAU : Identification of Relaxation and Diffusion Mechanisms in Amorphous Silicon. *Physical Review Letters*, 81(9):1865–1868, août 1998.
- [8] G. T. BARKEMA et Normand MOUSSEAU : High-quality continuous random networks. *Physical Review B*, 62(8):4985–4990, août 2000.
- [9] C. R. BILLMAN, J. P. TRINASTIC, D. J. DAVIS, R. HAMDAN et H.-P. CHENG : Origin of the second peak in the mechanical loss function of amorphous silica. *Physical Review B*, 95(1):014109, janvier 2017. Publisher: American Physical Society.
- [10] R. BIRNEY, J. STEINLECHNER, Z. TORNASI, S. MACFOY, D. VINE, A. S. BELL, D. GIBSON, J. HOUGH, S. ROWAN, P. SORTAIS, S. SPROULES, S. TAIT, I. W. MARTIN et S. REID : Amorphous Silicon with Extremely Low Absorption: Beating Thermal Noise in Gravitational Astronomy. *Physical Review Letters*, 121(19):191101, novembre 2018.
- [11] Erik BITZEK, Pekka KOSKINEN, Franz GÄHLER, Michael MOSELER et Peter GUMBSCH : Structural Relaxation Made Simple. *Physical Review Letters*, 97(17):170201, octobre 2006.
- [12] Laurent BÉLAND et Normand MOUSSEAU : Long-time relaxation of ion-bombarded silicon studied with the kinetic activation-relaxation technique: Microscopic description of slow aging in a disordered system. *Physical Review B*, 88, décembre 2013.

- [13] Herbert B. CALLEN et Richard F. GREENE : On a Theorem of Irreversible Thermodynamics. *Physical Review*, 86(5):702–710, juin 1952.
- [14] Herbert B. CALLEN et Theodore A. WELTON : Irreversibility and Generalized Noise. *Physical Review*, 83(1):34–40, juillet 1951.
- [15] E. CESARINI, M. LORENZINI, E. CAMPAGNA, F. MARTELLI, F. PIERGIOVANNI, F. VETRANO, G. LOSURDO et G. CAGNOLI : A “gentle” nodal suspension for measurements of the acoustic attenuation in materials. *Review of Scientific Instruments*, 80(5):053904, mai 2009.
- [16] J. K. CHRISTIE, S. N. TARASKIN et S. R. ELLIOTT : Vibrational behavior of a realistic amorphous-silicon model. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 353(22):2272–2279, juillet 2007.
- [17] Stephen J. COOK et Paulette CLANCY : Comparison of semi-empirical potential functions for silicon and germanium. *Physical Review B*, 47(13):7686–7699, avril 1993.
- [18] N. C. COOPER, C. M. GORINGE et D. R. MCKENZIE : Density functional theory modelling of amorphous silicon. *Computational Materials Science*, 17(1):1–6, janvier 2000.
- [19] D. R. M. CROOKS, G. CAGNOLI, M. M. FEJER, G. HARRY, J. HOUGH, B. T. KHURI-YAKUB, S. PENN, R. ROUTE, S. ROWAN, P. H. SNEDDON, I. O. WYGANT et G. G. YARALIOGLU : Experimental measurements of mechanical dissipation associated with dielectric coatings formed using SiO_2 , Ta_2O_5 and Al_2O_3 . *Classical and Quantum Gravity*, 23(15):4953–4965, juillet 2006.
- [20] T. DAMART et D. RODNEY : Atomistic study of two-level systems in amorphous silica. *Physical Review B*, 97(1):014201, janvier 2018.
- [21] Volker L. DERINGER, Noam BERNSTEIN, Albert P. BARTÓK, Matthew J. CLIFFE, Rachel N. KERBER, Lauren E. MARBELLA, Clare P. GREY, Stephen R. ELLIOTT et Gábor CSÁNYI : Realistic Atomistic Structure of Amorphous Silicon from Machine-Learning-Driven Molecular Dynamics. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 9(11):2879–2885, juin 2018.
- [22] B. DOLIWA et A. HEUER : Energy barriers and activated dynamics in a supercooled Lennard-Jones liquid. *Physical Review E*, 67(3):031506, mars 2003.
- [23] Y. A. DU, T. J. LENOSKY, R. G. HENNIG, S. GOEDECKER et J. W. WILKINS : Energy landscape of silicon tetra-interstitials using an optimized classical potential. *physica status solidi (b)*, 248(9):2050–2055, 2011.
- [24] B. J. EDWARDS, C. BAIG et D. J. KEFFER : A validation of the p-SLLOD equations of motion for homogeneous steady-state flows. *The Journal of Chemical Physics*, 124(19):194104, 2006. Publisher: American Institute of Physics.
- [25] Fedwa EL-MELLOUHI, Normand MOUSSEAU et Laurent J. LEWIS : Kinetic activation-relaxation technique: An off-lattice self-learning kinetic Monte Carlo algorithm. *Physical Review B*, 78(15):153202, octobre 2008.
- [26] D. J. EVANS et G. P. MORRIS : Nonlinear-response theory for steady planar Couette flow. *Physical Review A*, 30(3):1528–1530, 1984. Publisher: American Physical Society.
- [27] Andrew FEFFERMAN, Ana MALDONADO, Eddy COLLIN, Xiao LIU, Tom METCALF et Glenn JERNIGAN : Elastic Measurements of Amorphous Silicon Films at mK Temperatures. *Journal of Low Temperature Physics*, 187, juin 2017.
- [28] Simon GELIN, Alexandre CHAMPAGNE-RUEL et Normand MOUSSEAU : Enthalpy-entropy compensation of atomic diffusion originates from softening of low frequency phonons. *Nature Communications*, 11(1):3977, août 2020.

- [29] Samuel GLASSTONE, Keith James LAIDLER et Henry EYRING : The theory of rate processes; the kinetics of chemical reactions, viscosity, diffusion and electrochemical phenomena. Rapport technique, McGraw-Hill Book Company,, 1941.
- [30] M. GRANATA, A. AMATO, L. BALZARINI, M. CANEPA, J. DEGALLAIX, D. FOREST, V. DOLIQUE, L. MERENI, C. MICHEL, L. PINARD, B. SASSOLAS, J. TEILLON et G. CAGNOLI : Amorphous optical coatings of present gravitational-wave interferometers. *Classical and Quantum Gravity*, 37(9):095004, avril 2020.
- [31] M. GRANATA, A. AMATO, G. CAGNOLI, M. COULON, J. DEGALLAIX, D. FOREST, L. MERENI, C. MICHEL, L. PINARD, B. SASSOLAS et J. TEILLON : Progress in the measurement and reduction of thermal noise in optical coatings for gravitational-wave detectors. *Applied Optics*, 59(5):A229–A235, février 2020.
- [32] Rashid HAMDAN, Jonathan P. TRINASTIC et H. P. CHENG : Molecular dynamics study of the mechanical loss in amorphous pure and doped silica. *The Journal of Chemical Physics*, 141(5):054501, août 2014.
- [33] Gregory HARRY, Timothy P. BODIYA et Riccardo DESALVO, éditeurs. *Optical Coatings and Thermal Noise in Precision Measurement*. Cambridge University Press, Cambridge ; New York, 1st edition édition, février 2012.
- [34] Gregory M HARRY, Matthew R ABERNATHY, Andres E BECERRA-TOLEDO, Helena ARMANDULA, Eric BLACK, Kate DOOLEY, Matt EICHENFIELD, Chinyere NWABUGWU, Akira VILLAR, D R M CROOKS, Gianpietro CAGNOLI, Jim HOUGH, Colin R HOW, Ian MACLAREN, Peter MURRAY, Stuart REID, Sheila ROWAN, Peter H SNEDDON, Martin M FEJER, Roger ROUTE, Steven D PENN, Patrick GANAU, Jean-Marie MACKOWSKI, Christophe MICHEL, Laurent PINARD et Alban REMILLIEUX : Titania-doped tantalum/silica coatings for gravitational-wave detection. *Classical and Quantum Gravity*, 24(2):405–415, dec 2006.
- [35] Miroslav HEJNA, Paul J. STEINHARDT et Salvatore TORQUATO : Nearly hyperuniform network models of amorphous silicon. *Physical Review B*, 87(24):245204, juin 2013.
- [36] Graeme HENKELMAN, Blas P. UBERUAGA et Hannes JÓNSSON : A climbing image nudged elastic band method for finding saddle points and minimum energy paths. *The Journal of Chemical Physics*, 113(22):9901–9904, décembre 2000.
- [37] P. HOHENBERG et W. KOHN : Inhomogeneous Electron Gas. *Physical Review*, 136(3B):B864–B871, novembre 1964.
- [38] D. IGRAM, B. BHATTARAI, P. BISWAS et D. A. DRABOLD : Large and realistic models of amorphous silicon. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 492:27–32, juillet 2018.
- [39] Manabu ISHIMARU, Shinji MUNETOH et Teruaki MOTOOKA : Generation of amorphous silicon structures by rapid quenching: A molecular-dynamics study. *Physical Review B*, 56(23):15133–15138, décembre 1997.
- [40] Thomas JARRIN, Antoine JAY, Mélanie RAINE, Normand MOUSSEAU, Anne HÉMERYCK et Nicolas RICHARD : Simulation of Single Particle Displacement Damage in Si_{1-x}G_x alloys – Interaction of Primary Particles with the Material and Generation of the Damage Structure. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 67(7):1273 – 1283, juillet 2020.
- [41] Antoine JAY, Anne HÉMERYCK, Nicolas RICHARD, Layla MARTIN-SAMOS, Mélanie RAINE, Alexandre LE ROCH, Normand MOUSSEAU, Vincent GOIFFON, Philippe PAILLET, Marc GAILLARDIN et Pierre MAGNAN : Simulation of Single-Particle Displacement Damage in Silicon—Part III: First Principle Characterization of Defect Properties. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 65(2):724–731, février 2018.
- [42] Jun JIANG, Alec S. MISHKIN, Kiran PRASAI, Rui ZHANG, Maher YAZBACK, Riccardo BASSIRI, Martin M. FEJER et Hai-Ping CHENG : Analysis of two-level systems and mechanical loss in amorphous

- ZrO₂-doped Ta₂O₅ by non-cage-breaking and cage-breaking transitions. *The Journal of Chemical Physics*, 154(17):174502, mai 2021.
- [43] J. F. JUSTO, M. Z. BAZANT, E. KAXIRAS, V. V. BULATOV et S. YIP : Interatomic potential for silicon defects and disordered phases. *Physical Review B*, 58(5):2539–2550, août 1998.
- [44] J. JÄCKLE, L. PICHÉ, W. ARNOLD et S. HUNKLINGER : Elastic effects of structural relaxation in glasses at low temperatures. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 20(3):365–391, mai 1976.
- [45] H. KALLEL, N. MOUSSEAU et F. SCHIETTEKATTE : Evolution of the potential-energy surface of amorphous silicon. *Phys. Rev. Lett.*, 105:045503, Jul 2010.
- [46] Charles KITTEL : *Introduction to Solid State Physics*. John Wiley and Sons, New York, 8 édition, 2004.
- [47] Mark D. KLUGE, John R. RAY et Aneesur RAHMAN : Amorphous-silicon formation by rapid quenching: A molecular-dynamics study. *Physical Review B*, 36(8):4234–4237, septembre 1987.
- [48] W. KOHN et L. J. SHAM : Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects. *Physical Review*, 140(4A):A1133–A1138, novembre 1965.
- [49] R. KUBO : The fluctuation-dissipation theorem. *Reports on Progress in Physics*, 29(1):255–284, janvier 1966.
- [50] Émile LALANDE, Alexandre W. LUSSIER, Carl LÉVESQUE, Marianne WARD, Bill BALOUKAS, Ludvik MARTINU, Gabriele VAJENTE, Garilynn BILLINGSLEY, Alena ANANYEVA, Riccardo BASSIRI, Martin M. FEJER et François SCHIETTEKATTE : Zirconia-titania-doped tantala optical coatings for low mechanical loss bragg mirrors. *Journal of Vacuum Science & Technology A*, 39(4):043416, 2021.
- [51] Yu. LEVIN : Internal thermal noise in the ligo test masses: A direct approach. *Phys. Rev. D*, 57:659–663, Jan 1998.
- [52] Laurent J. LEWIS : Fifty years of amorphous silicon models : the end of the story? *Journal of Non-Crystalline Solids*, 580:121383, 2022.
- [53] Xiao LIU et R. O. POHL : Low-energy excitations in amorphous films of silicon and germanium. *Physical Review B*, 58(14):9067–9081, octobre 1998.
- [54] Xiao LIU, Daniel R. QUEEN, Thomas H. METCALF, Julie E. KAREL et Frances HELLMAN : Hydrogen-Free Amorphous Silicon with No Tunneling States. *Physical Review Letters*, 113(2):025503, juillet 2014.
- [55] Xiao LIU, B. E. WHITE, Jr., R. O. POHL, E. IWANIZCKO, K. M. JONES, A. H. MAHAN, B. N. NELSON, R. S. CRANDALL et S. VEPREK : Amorphous Solid without Low Energy Excitations. *Physical Review Letters*, 78(23):4418–4421, juin 1997.
- [56] C. LÉVESQUE, S. ROORDA, F. SCHIETTEKATTE et N. MOUSSEAU : Internal mechanical dissipation mechanisms in amorphous silicon. *Physical Review Materials*, 6(12):123604, décembre 2022. Publisher: American Physical Society.
- [57] Rachid MALEK et Normand MOUSSEAU : Dynamics of Lennard-Jones clusters: A characterization of the activation-relaxation technique. *Physical Review E*, 62(6):7723–7728, décembre 2000.
- [58] M.-C. MARINICA, F. WILLAIME et N. MOUSSEAU : Energy landscape of small clusters of self-interstitial dumbbells in iron. *Physical Review B*, 83(9):094119, mars 2011.
- [59] Glenn J. MARTYNA, Michael L. KLEIN et Mark TUCKERMAN : Nosé–Hoover chains: The canonical ensemble via continuous dynamics. *The Journal of Chemical Physics*, 97(4):2635–2643, août 1992.
- [60] José V. MICHELIN, Luis G. V. GONÇALVES et José P. RINO : On the transferability of interaction potentials for condensed phases of silicon. *Journal of Molecular Liquids*, 285:488–499, juillet 2019.
- [61] D. L. MOFFAT et D. C. LARBALESTIER : The competition between the alpha and omega phases in aged Ti-Nb alloys. *Metallurgical Transactions A*, 19(7):1687–1694, juillet 1988.

- [62] Normand MOUSSEAU et G. T. BARKEMA : Activated mechanisms in amorphous silicon: An activation-relaxation-technique study. *Physical Review B*, 61(3):1898–1906, janvier 2000.
- [63] Normand MOUSSEAU, Laurent Karim BÉLAND, Peter BROMMER, Fedwa EL-MELLOUHI, Jean-François JOLY, Gawonou Kokou N'TSOUAGLO, Oscar RESTREPO et Mickaël TROCHET : Following atomistic kinetics on experimental timescales with the kinetic Activation–Relaxation Technique. *Computational Materials Science*, 100:111–123, avril 2015.
- [64] Peter G. MURRAY, Iain W. MARTIN, Kieran CRAIG, James HOUGH, Raymond ROBIE, Sheila ROWAN, Matt R. ABERNATHY, Teal PERSHING et Steven PENN : Ion-beam sputtered amorphous silicon films for cryogenic precision measurement systems. *Physical Review D*, 92(6):062001, septembre 2015.
- [65] Ronny NAWRODT, Sheila ROWAN, Jim HOUGH, Michele PUNTURO, Fulvio RICCI et Jean-Yves VINET : Challenges in thermal noise for 3rd generation of gravitational wave detectors. *General Relativity and Gravitation*, 43(2):593–622, février 2011.
- [66] G. M. PALMA, K.-A. SUOMINEN et A. K. EKERT : Quantum computers and dissipation. *Proc. Math. Phys. Eng. Sci.*, 452(1946):567–584, décembre 1996.
- [67] W. A. PHILLIPS : Tunneling states in amorphous solids. *Journal of Low Temperature Physics*, 7(3-4):351–360, mai 1972.
- [68] W A PHILLIPS : Two-level states in glasses. *Reports on Progress in Physics*, 50(12):1657–1708, décembre 1987.
- [69] F. PUOSI, F. FIDECARO, S. CAPACCIOLI, D. PISIGNANO et D. LEPORINI : In silico broadband mechanical spectroscopy of amorphous tantalum. *Physical Review Research*, 1(3):033121, novembre 2019.
- [70] Jichao QIAO, Jean-Marc PELLETIER et Riccardo CASALINI : Relaxation of Bulk Metallic Glasses Studied by Mechanical Spectroscopy. *The Journal of Physical Chemistry B*, 117(43):13658–13666, octobre 2013. Publisher: American Chemical Society.
- [71] Peter R. SAULSON : Thermal noise in mechanical experiments. *Physical Review D*, 42(8):2437–2445, octobre 1990.
- [72] Alexander V. SHAPEEV : Moment Tensor Potentials: A Class of Systematically Improvable Interatomic Potentials. *Multiscale Modeling & Simulation*, 14(3):1153–1173, janvier 2016.
- [73] J. STEINLECHNER et I. W. MARTIN : How can amorphous silicon improve current gravitational-wave detectors? *Physical Review D*, 103(4):042001, février 2021.
- [74] Frank H. STILLINGER et Thomas A. WEBER : Computer simulation of local order in condensed phases of silicon. *Physical Review B*, 31(8):5262–5271, avril 1985.
- [75] A.J. STONE et D.J. WALES : Theoretical studies of icosahedral c60 and some related species. *Chemical Physics Letters*, 128(5):501–503, 1986.
- [76] M. TALATI, T. ALBARET et A. TANGUY : Atomistic simulations of elastic and plastic properties in amorphous silicon. *EPL (Europhysics Letters)*, 86(6):66005, juin 2009.
- [77] J. TERSOFF : Empirical interatomic potential for silicon with improved elastic properties. *Physical Review B*, 38(14):9902–9905, novembre 1988.
- [78] Aidan P. THOMPSON, H. Metin AKTULGA, Richard BERGER, Dan S. BOLINTINEANU, W. Michael BROWN, Paul S. CROZIER, Pieter J. in 't VELD, Axel KOHLMAYER, Stan G. MOORE, Trung Dac NGUYEN, Ray SHAN, Mark J. STEVENS, Julien TRANCHIDA, Christian TROTT et Steven J. PLIMPTON : LAMMPS - a flexible simulation tool for particle-based materials modeling at the atomic, meso, and continuum scales. *Computer Physics Communications*, 271:108171, février 2022.

- [79] Jonathan P. TRINASTIC, Rashid HAMDAN, Chris BILLMAN et Hai-Ping CHENG : Molecular dynamics modeling of mechanical loss in amorphous tantala and titania-doped tantala. *Physical Review B*, 93(1): 014105, janvier 2016.
- [80] G. VAJENTE, A. ANANYEVA, G. BILLINGSLEY, E. GUSTAFSON, A. HEPTONSTALL, E. SANCHEZ et C. TORRIE : A high throughput instrument to measure mechanical losses in thin film coatings. *Review of Scientific Instruments*, 88(7):073901, juillet 2017.
- [81] G. VAJENTE, R. BIRNEY, A. ANANYEVA, S. ANGELOVA, R. ASSELIN, B. BALOUKAS, R. BASSIRI, G. BILLINGSLEY, M. M. FEJER, D. GIBSON, L. J. GODBOUT, E. GUSTAFSON, A. HEPTONSTALL, J. HOUGH, S. MACFOY, A. MARKOSYAN, I. W. MARTIN, L. MARTINU, P. G. MURRAY, S. PENN, S. ROORDA, S. ROWAN, F. SCHIETTEKATTE, R. SHINK, C. TORRIE, D. VINE, S. REID et R. X. ADHIKARI : Effect of elevated substrate temperature deposition on the mechanical losses in tantala thin film coatings. *Classical and Quantum Gravity*, 35(7):075001, février 2018.
- [82] G. VAJENTE, R. BIRNEY, A. ANANYEVA, S. ANGELOVA, R. ASSELIN, B. BALOUKAS, R. BASSIRI, G. BILLINGSLEY, M. M. FEJER, D. GIBSON, L. J. GODBOUT, E. GUSTAFSON, A. HEPTONSTALL, J. HOUGH, S. MACFOY, A. MARKOSYAN, I. W. MARTIN, L. MARTINU, P. G. MURRAY, S. PENN, S. ROORDA, S. ROWAN, F. SCHIETTEKATTE, R. SHINK, C. TORRIE, D. VINE, S. REID et R. X. ADHIKARI : Effect of elevated substrate temperature deposition on the mechanical losses in tantala thin film coatings. *Classical and Quantum Gravity*, 35(7):075001, feb 2018.
- [83] Gabriele VAJENTE, Le YANG, Aaron DAVENPORT, Mariana FAZIO, Alena ANANYEVA, Liyuan ZHANG, Garilynn BILLINGSLEY, Kiran PRASAI, Ashot MARKOSYAN, Riccardo BASSIRI, Martin M. FEJER, Martin CHICOINE, François SCHIETTEKATTE et Carmen S. MENONI : Low Mechanical Loss $\{\mathrm{TiO}\}_2\{\mathrm{GeO}\}_2$ Coatings for Reduced Thermal Noise in Gravitational Wave Interferometers. *Physical Review Letters*, 127(7):071101, août 2021. Publisher: American Physical Society.
- [84] Francis VALIQUETTE et Normand MOUSSEAU : Energy landscape of relaxed amorphous silicon. *Physical Review B*, 68(12):125209, septembre 2003.
- [85] George H. VINEYARD : Frequency factors and isotope effects in solid state rate processes. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 3(1):121–127, janvier 1957.
- [86] R. L. C. VINK, G. T. BARKEMA, W. F. van der WEG et Normand MOUSSEAU : Fitting the Stillinger–Weber potential to amorphous silicon. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 282(2):248–255, avril 2001.
- [87] P. w. ANDERSON, B. I. HALPERIN et c. M. VARMA : Anomalous low-temperature thermal properties of glasses and spin glasses. *The Philosophical Magazine: A Journal of Theoretical Experimental and Applied Physics*, 25(1):1–9, 1972.
- [88] S. J. WALDMAN : The Advanced LIGO Gravitational Wave Detector. Rapport technique arXiv:1103.2728, arXiv, mars 2011.
- [89] D. WALES : *Energy Landscapes: Applications to Clusters, Biomolecules and Glasses*. Cambridge Molecular Science. Cambridge University Press, Cambridge, 2004.
- [90] Daniel Ka Sing WONG : *Atomistic studies of mechanical loss in amorphous silicon*. Thèse de doctorat, University of British Columbia, 2022.
- [91] F. WOOTEN, K. WINER et D. WEAIRE : Computer Generation of Structural Models of Amorphous Si and Ge. *Physical Review Letters*, 54(13):1392–1395, avril 1985.
- [92] R. C. ZELLER et R. O. POHL : Thermal Conductivity and Specific Heat of Noncrystalline Solids. *Physical Review B*, 4(6):2029–2041, septembre 1971.

- [93] B. L. ZINK, R. PIETRI et F. HELLMAN : Thermal Conductivity and Specific Heat of Thin-Film Amorphous Silicon. *Physical Review Letters*, 96(5):055902, février 2006.
- [94] K. ZONGO, L. K. BÉLAND et C. OUELLET-PLAMONDON : First-principles database for fitting a machine-learning silicon interatomic force field. *MRS Advances*, 7(2):39–47, février 2022.