

**Direction des bibliothèques**

**AVIS**

Ce document a été numérisé par la Division de la gestion des documents et des archives de l'Université de Montréal.

L'auteur a autorisé l'Université de Montréal à reproduire et diffuser, en totalité ou en partie, par quelque moyen que ce soit et sur quelque support que ce soit, et exclusivement à des fins non lucratives d'enseignement et de recherche, des copies de ce mémoire ou de cette thèse.

L'auteur et les coauteurs le cas échéant conservent la propriété du droit d'auteur et des droits moraux qui protègent ce document. Ni la thèse ou le mémoire, ni des extraits substantiels de ce document, ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans l'autorisation de l'auteur.

Afin de se conformer à la Loi canadienne sur la protection des renseignements personnels, quelques formulaires secondaires, coordonnées ou signatures intégrées au texte ont pu être enlevés de ce document. Bien que cela ait pu affecter la pagination, il n'y a aucun contenu manquant.

**NOTICE**

This document was digitized by the Records Management & Archives Division of Université de Montréal.

The author of this thesis or dissertation has granted a nonexclusive license allowing Université de Montréal to reproduce and publish the document, in part or in whole, and in any format, solely for noncommercial educational and research purposes.

The author and co-authors if applicable retain copyright ownership and moral rights in this document. Neither the whole thesis or dissertation, nor substantial extracts from it, may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

In compliance with the Canadian Privacy Act some supporting forms, contact information or signatures may have been removed from the document. While this may affect the document page count, it does not represent any loss of content from the document.

Université de Montréal

Étude théorique des mécanismes de transfert d'énergie suivant le  
passage d'un ion rapide dans un matériau

par  
Philip Baril

Département de Physique  
Faculté des arts et des sciences

Mémoire présenté à la Faculté des études supérieures  
en vue de l'obtention du grade de Maître ès sciences (M.Sc.)  
en Physique

Mai, 2008

© Philip Baril, 2008.



Université de Montréal  
Faculté des études supérieures

Ce mémoire intitulé:

**Étude théorique des mécanismes de transfert d'énergie suivant le  
passage d'un ion rapide dans un matériau**

présenté par:

Philip Baril

a été évalué par un jury composé des personnes suivantes:

Yves Lépine,	président-rapporteur
Laurent J. Lewis,	directeur de recherche
Sjoerd Roorda,	codirecteur
Alain Rochefort,	membre du jury

## RÉSUMÉ

Le passage d'un ion rapide dans la matière excite les électrons et engendre parfois des déplacements atomiques permanents. Le moyen par lequel l'excitation électronique se traduit en mouvement atomique nous intéresse. Deux théories sont discutées à ce sujet : l'explosion de Coulomb et la pointe thermique. Une méthode numérique classique est suggérée pour modéliser les électrons et le noyau d'un atome au sein d'un matériau générique. Nous suivons la trajectoire de ces particules par dynamique moléculaire. L'excitation produite par un ion rapide est modélisée conformément aux connaissances actuelles sur le sujet. En observant la croissance temporelle de l'énergie cinétique des atomes, nous trouvons que le transfert d'énergie entre les électrons et les atomes s'effectue en deux parties. Un chauffage coulombien débute le mouvement atomique en leur inculquant une vitesse radiale. Cette phase se distingue de l'explosion de Coulomb du fait que le mouvement atomique ne dépasse pas une distance inter-atomique. Il s'en suit un transfert d'énergie purement thermique. Nous trouvons aussi qu'une onde de pression se forme dû au chauffage de Coulomb. Cette onde pourrait expliquer les modifications structurales parfois présentes après le passage d'un ion rapide. Notre modèle offre une description qualitative adéquate du passage d'un ion rapide dans un solide et confirme la théorie de la pointe thermique qui est déjà utilisée pour prédire la taille des déformations. Le modèle pourrait éventuellement être adapté pour décrire un solide particulier.

**Mots clés :** modifications structurales, ion lourd et rapide, pointe thermique, explosion de Coulomb.

## ABSTRACT

A fast heavy ion passing through matter excites the electrons and sometimes generates permanent atomic displacements. We are interested by the energy transfer mechanisms that bring electronic excitation into atomic motion. Two theories are discussed on this subject : Coulomb explosion and thermal spike. We suggest a classical numerical method to represent the electrons and the nuclei of an atom from a generic material. We follow the trajectories of those particles with molecular dynamics. The electronic excitation produced by a fast ion is modelled according to present knowledge on the subject. Looking at the temporal evolution of the atomic kinetic energy, we find that the energy transfer between the electrons and nuclei can be divided in two parts. A Coulomb heating starts the atomic motion by giving them a radial speed. This process differs from Coulomb explosion because the atoms are not displaced over an interatomic distances. After the Coulomb heating phase, a thermal energy transfer, as described in linear transport theory, begins. We also find that a pressure wave is generated from the Coulomb heating. This wave possibly explains the structural modifications that sometimes follow fast ion impact. Our model gives a correct qualitative description of a fast ion interaction with material and confirms the thermal spike theory, which is already largely used to predict track size. The model could eventually be adapted to describe a particular solid.

**Keywords :** structural modifications, fast heavy ion, swift ion, thermal spike, Coulomb explosion.

## TABLE DES MATIÈRES

<b>RÉSUMÉ</b> . . . . .	<b>iv</b>
<b>ABSTRACT</b> . . . . .	<b>v</b>
<b>TABLE DES MATIÈRES</b> . . . . .	<b>vi</b>
<b>LISTE DES TABLEAUX</b> . . . . .	<b>viii</b>
<b>LISTE DES FIGURES</b> . . . . .	<b>ix</b>
<b>LISTE DES NOTATIONS ET DES SYMBOLES</b> . . . . .	<b>xii</b>
<b>REMERCIEMENTS</b> . . . . .	<b>xiii</b>
<b>INTRODUCTION</b> . . . . .	<b>1</b>
<b>CHAPITRE 1 : REVUE DE LA LITTÉRATURE</b> . . . . .	<b>7</b>
1.1 Excitation électronique . . . . .	7
1.2 Éjection d'atomes . . . . .	10
1.3 Modifications structurales . . . . .	10
<b>CHAPITRE 2 : NOTIONS THÉORIQUES</b> . . . . .	<b>15</b>
2.1 Explosion de Coulomb . . . . .	15
2.2 Pointe thermique . . . . .	18
2.3 Autres théories . . . . .	20
2.4 Comparaisons entre l'explosion de Coulomb et la pointe thermique .	21
<b>CHAPITRE 3 : MODÈLE</b> . . . . .	<b>23</b>
3.1 Forces d'interaction . . . . .	24
3.1.1 Force entre deux atomes. . . . .	26
3.1.2 Procédure pour l'interaction à longue portée . . . . .	27

3.2	Spécifications du système . . . . .	27
3.3	Validation du modèle . . . . .	29
3.3.1	Densité électronique . . . . .	29
3.3.2	Potentiel inter-atomique. . . . .	30
3.3.3	Transport d'énergie . . . . .	32
3.4	Dépôt d'énergie . . . . .	33
<b>CHAPITRE 4 : RÉSULTATS DES SIMULATIONS . . . . .</b>		<b>35</b>
4.1	Description . . . . .	35
4.2	Mécanismes de transfert d'énergie . . . . .	43
4.2.1	Attraction de Coulomb . . . . .	45
4.2.2	Répulsion de Coulomb . . . . .	46
4.2.3	Pointe thermique . . . . .	47
4.2.4	Remarques générales . . . . .	49
4.3	Impact des paramètres variables . . . . .	50
4.3.1	Point d'impact du projectile . . . . .	50
4.3.2	Largeur de l'excitation initiale . . . . .	51
<b>CONCLUSION . . . . .</b>		<b>56</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE . . . . .</b>		<b>58</b>

## LISTE DES TABLEAUX

- 1.1 Longueurs ( $d$ ) et rayons ( $r$ ) de différents défauts structuraux observés expérimentalement. 11
- 3.1 Valeurs du temps de relaxation ( $\tau_{ne}$ ) pour différentes masses atomiques ( $M$ ). 33



## LISTE DES FIGURES

1	Images de déformations suivant le passage d'un ion rapide. À gauche : image dans le plan perpendiculaire à la direction de l'ion incident ; la région modifiée apparaît plus claire. À droite : coupe transversale d'un échantillon irradié par un ion rapide, ce dernier entre par la droite sur la figure ; les déformations apparaissent foncées et ont un profil grossièrement cylindrique. . . . .	3
2	Schématisation de l'explosion de Coulomb et de la pointe thermique. Les points indiquent les atomes comme suit : bleu pour l'état solide, rouge pour l'état liquide et orange pour un atome ionisé. Le fond coloré indique l'excitation électronique.	5
3	Schématisation du passage d'un ion lourd et rapide dans un solide. La géométrie cylindrique ( $\rho, \phi, z$ ) indiquée est utilisée dans tout le texte. . . . .	6
1.1	Perte d'énergie d'un ion $\text{Xe}^{36+}$ (1 MeV/n) dans le silicium ( $dE/dx = 17.2$ keV/nm). La ligne verticale indique la distance du plus proche voisin et les lignes horizontales indiquent l'énergie de première ionisation des couches 2S (527 eV) et 2P (248 eV). . . . .	8
1.2	Images de couches amorphes (parrallèles à l'ion incident) dans le SiC à des températures de 120 K (a) et 373 K (b) suite au passage d'un faisceau d'ions rapides <sup>[1]</sup> . Les régions foncées sont cristallines ; les régions plus pâles, immédiatement au dessus, sont amorphes et la surface de la cible apparaît encore plus claire au sommet de chaque image. Le patron de diffraction des électrons correspondant à chaque image est indiqué dans l'encadré. . . . .	12
1.3	Image du plan perpendiculaire au faisceau d'ion incident (prise par Dunlop <i>et coll.</i> <sup>[2]</sup> ) de trois régions cylindriques amorphes de Si. Sur l'image, ces régions sont moins foncées que le silicium cristallin les entourant. L'encadré indique le patron de diffraction des électrons correspondant à l'image. . . . .	13
2.1	Énergie cinétique d'une particule chargée due au potentiel d'un cylindre chargé en fonction du temps. La position $x$ et la densité de charge $\lambda$ sont également indiquées. . . . .	17

3.1	Projection bidimensionnelle des positions des noyaux (cercles rouges) et des PE (carrés turquoise) dans une cellule CFC conventionnelle. . . . .	30
3.2	Énergie potentielle d'un électron ( $U_e$ ), en unité arbitraire ( <i>u.a.</i> ), à une distance $r$ d'un noyau faisant partie d'un solide. Le résultat de la théorie de Thomas-Fermi est également présenté. . . . .	31
3.3	Projection 2D de la trajectoire des noyaux dans une cellule CFC conventionnelle à trois températures différentes. Les trajectoires couvrent une période de 20 fs à raison d'une image par 0.5 fs. . . . .	33
4.1	Température moyenne des électrons ( $T_e$ ) après équilibre thermique ( $t = 1.5$ fs) en fonction de l'énergie par unité de longueur initialement introduite dans le système ( $Q_e$ ). . . . .	36
4.2	Composantes de l'énergie cinétique moyenne des électrons ( $K_e^\rho, K_e^\phi$ et $K_e^z$ ). L'encadré présente les résultats pour une petite échelle de temps. . . . .	37
4.3	Vitesse radiale moyenne des noyaux et des PE dans l'ensemble du système suivant une excitation initiale de $Q_e = 80$ eV/Å. . . . .	38
4.4	Vitesse atomique dans la coquille $5\text{Å} < \rho < 10\text{Å}$ et charge au centre ( $\rho \leq 5\text{Å}$ ) avec une excitation initiale de $Q_e = 80$ eV/Å. Les unités correspondant à la charge sont arbitraires. . . . .	39
4.5	Énergie cinétique moyenne des noyaux ( $K_n$ ) à différentes distances du centre pour un dépôt d'énergie $Q_e = 80$ eV/Å. Chaque région est une coquille cylindrique de 5 Å d'épaisseur. . . . .	40
4.6	Représentation linéarisée de la fraction de l'énergie cinétique des noyaux qui est radiale ( $K_n^\rho/K_n$ ) pour différentes énergies en fonction du temps ( $t$ ). La droite représente une régression linéaire effectuée sur nos résultats. . . . .	41
4.7	Déplacement moyen des noyaux calculé avec l'équation 4.2 pour différentes coquilles cylindriques dans le solide. L'énergie par unité de longueur introduite est $Q_e = 80$ eV/Å. . . . .	42
4.8	Composantes de l'énergie potentielle dans l'ensemble du solide après un dépôt d'énergie $Q_e = 80$ eV/Å. . . . .	43

4.9	Énergie cinétique des noyaux ( $K_n(t)$ ) pour plusieurs niveaux d'excitation dans un cylindre de 15 Å de rayon. Les lignes horizontales indiquent la fin d'une phase de gain d'énergie. . . . .	44
4.10	Relation entre l'énergie cinétique des noyaux au premier plateau ( $K_{n1}$ ) et l'excitation initiale des électrons par unité de longueur ( $Q_e$ ). . . . .	45
4.11	Relation entre l'énergie du deuxième plateau ( $K_{n2}$ ) et le nombre de PE éjectés ( $N_s$ ) pour des simulations avec les dépôts d'énergie différents. La droite met en évidence la relation linéaire attendue. . . . .	47
4.12	Droites d'évolution thermique qui représentent l'évolution temporelle de l'énergie cinétique des noyaux ( $K_n$ ). . . . .	48
4.13	Reproduction de la densité électronique présentée à la figure 3.1 avec les points d'impact localisés par des "o" et identifiés avec un numéro. . . . .	51
4.14	Énergie cinétique des noyaux pour différents points d'impact en fonction du temps ( $t$ ). Les symboles vides correspondent à une excitation initiale $Q_e = 80$ eV/Å et les symboles pleins correspondent à $Q_e = 2000$ eV/Å. . . . .	52
4.15	Température moyenne des électrons ( $T_e$ ) après l'évacuation d'énergie aux frontières ( $t = 2.0$ fs) en fonction de l'énergie par unité de longueur initialement introduite $Q_e$ . . . . .	53
4.16	Énergie cinétique des noyaux ( $K_n$ ) pour différentes largeurs de dépôt d'énergie $\sigma$ . Deux excitations initiales ( $Q_e$ ) sont présentées et une région cylindrique de 15 Å de rayon est considérée. . . . .	54
4.17	Énergie cinétique des noyaux en fonction du temps ( $t$ ) accompagnées de courbes représentant un chauffage de Coulomb. Deux largeurs de dépôt d'énergie $\sigma$ sont présentées. Nous considérons une région cylindrique de 15 Å de rayon et une excitation électronique initiale de $Q_e = 80$ eV/Å. . . . .	55

## LISTE DES NOTATIONS ET DES SYMBOLES

- $m_e$  : masse de l'électron ( $9.109 \times 10^{-31} kg$ )  
 $e$  : charge élémentaire ( $1.60 \times 10^{-19} C$ )  
 $M$  : masse des noyaux  
 $N$  : Nombre de pseudo-particules par électron  
 $a$  : Paramètre de maille  
 $\rho$  : Paramètre d'impact  
 $K_n$  : Énergie cinétique des noyaux

## REMERCIEMENTS

J'aimerais remercier avant tout M. Lewis et M. Roorda pour m'avoir permis de réaliser mes études de maîtrise sous leur direction. Je leur suis grandement reconnaissant pour le support continu qu'ils m'ont fourni au long de ces années de recherche. J'espère être en mesure d'honorer la formation de qualité qu'ils m'ont offerte. Je remercie également mes collègues (Christian Chénard Lemire et Catherine Hudon) avec qui j'ai eu des discussions instructives et fort utiles.

Je tiens aussi à remercier mes parents pour le soutien moral et monétaire qu'ils m'ont fourni tout au long de mes études. Je remercie également mes amis ainsi que ma copine Marie-Claude pour avoir contribué à me faire apprécier pleinement ces deux années de recherche.

## INTRODUCTION

L'étude du passage d'ions dans la matière a débuté avec les premières expériences sur la radiation de Rutherford au début du siècle dernier. Depuis, l'interaction ion-matière a grandement contribué à la compréhension de la physique des matériaux. Ces recherches ont aussi permis de nombreuses innovations technologiques.

En connaissant la manière dont les ions interagissent avec la matière, l'endroit où ils s'arrêtent dans un matériau peut être contrôlé. Ainsi, des impuretés peuvent être localisées adéquatement dans un semiconducteur. L'implantation d'impuretés est la base du processus de dopage qui consiste à modifier localement les propriétés électroniques d'un matériau. De tels matériaux dopés permettent de fabriquer plusieurs dispositifs électroniques comme le transistor. Aussi, l'endroit où l'ion cause des modifications maximales peut être prévu. La surface de la cible qu'il rencontre ne subit pas nécessairement le plus de dommage. En médecine, cette connaissance permet l'irradiation d'une tumeur de sorte que les tissus sains l'entourant sont peu affectés. De plus, aucune chirurgie n'est nécessaire ; les ions peuvent traverser la peau sans l'affecter significativement et ensuite détruire les cellules cancéreuses.

L'interaction des ions avec la matière dépend grandement de l'énergie de ceux-ci. Cette énergie est souvent normalisée par la masse atomique de l'ion pour donner une meilleure indication de la vitesse avec laquelle il frappe la cible. Un ion de faible vitesse ( $\sim \text{eV/n}$ ) interagit avec les atomes de la cible par collisions binaires. Il communique ainsi une partie de son énergie à chaque atome avec lequel il entre en collision. Il en résulte que sa trajectoire dans un matériau est en bonne partie aléatoire et le projectile n'a pas une grande portée. Un ion rapide ( $\sim \text{MeV/n}$ ) interagit peu avec les atomes ; il excite principalement les électrons. L'excitation d'un électron ne demande pas un grand transfert d'impulsion, ce qui permet à l'ion rapide d'avoir une trajectoire presque rectiligne dans un matériau. Dans ce dernier cas, l'ion s'arrête beaucoup plus loin de la surface qu'un ion lent. De nombreuses

données sont disponibles sur ce sujet [3,4].

Dans cette étude, nous nous intéressons à l'interaction d'un ion lourd et rapide avec la matière. Plus de 90% de la perte d'énergie totale de l'ion se fait au profit de l'énergie cinétique des électrons de la cible [5,6]. Cette interaction se décompose en deux processus distincts dont l'importance peut varier en fonction de l'ion utilisé. Premièrement, l'ion incident change de charge en parcourant la cible. L'échange d'électrons entre la cible et l'ion persiste jusqu'à ce qu'il atteigne une charge d'équilibre. Cette charge dépend de la cible et de la vitesse de l'ion [7-11]. De nombreuses études expérimentales documentent ce phénomène. Pour obtenir la charge d'équilibre, il suffit de calculer la charge moyenne des ions sortant d'un échantillon suffisamment mince pour ne pas ralentir les ions et assez épais pour permettre l'équilibre (typiquement  $\sim 100$  nm). Il existe peu de prédictions théoriques de cette charge et celles qui existent se limitent souvent à des cas précis [12,13]. Schiwietz *et coll.* suggèrent plutôt une formule empirique qui correspond bien aux résultats expérimentaux [7]. Deuxièmement, par attraction coulombienne, l'ion incident transfère de l'énergie aux noyaux et aux électrons de la cible. Étant donnée la faible masse des électrons, le champ électrique de l'ion incident les affecte davantage que les noyaux [4,5]. En effet, l'énergie ainsi transférée est inversement proportionnelle à la masse. Ce champ attire les électrons vers le centre. L'évolution de cette excitation demeure incomprise. Nous discutons plus en détail le gain d'énergie des électrons de la cible dans le chapitre suivant.

Malgré qu'un ion rapide excite majoritairement les électrons, des modifications structurales au niveau atomique apparaissent le long de sa trajectoire dans certaines conditions que nous détaillerons plus loin [14]. Nous montrons des observations de régions modifiées faites par Szenes *et coll.* dans le InSb et le InP à la figure 1. Il s'agit d'image par microscope à transmission électronique. Typiquement, les modifications peuvent aller du défaut ponctuel à l'amorphisation d'une région cylindrique. Le type de modifications dépend du matériau et des conditions d'irra-

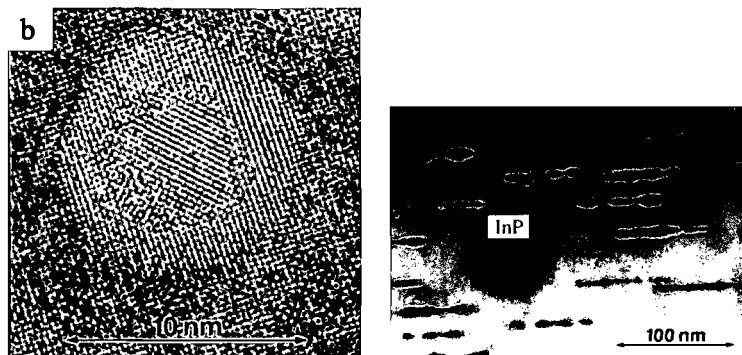


FIG. 1 – Images de déformations suivant le passage d'un ion rapide. À gauche : image dans le plan perpendiculaire à la direction de l'ion incident ; la région modifiée apparaît plus claire. À droite : coupe transversale d'un échantillon irradié par un ion rapide, ce dernier entre par la droite sur la figure ; les déformations apparaissent foncées et ont un profil grossièrement cylindrique.

diation ; il dépend aussi de l'ion projectile et de sa charge. Dans les cas présentés ici, le InSb (à gauche) recristallise dans une direction différente du cristal original et le InP (à droite) devient amorphe. Dû à la variété des modifications observables et de l'intérêt technologique qu'ils offrent, les semiconducteurs du type III-V s'utilisent fréquemment dans les études expérimentales.

En parallèle avec ces observations, des mesures témoignent d'une éjection d'électrons [7, 15, 16] et d'atomes [17] à la surface de la cible. Il s'agit toutefois de phénomènes de surface qui n'ont pas de lien direct avec la présence de modifications structurales. L'éjection d'électrons fournit toutefois quelques indications sur la charge nette présente au centre. De plus, on observe un étirement anisotrope de la cible lorsque celle-ci est bombardée par un faisceau d'ions [18-20]. Les dimensions perpendiculaires au faisceau augmentent tandis que l'épaisseur diminue. Ce phénomène est connu sous le nom d'*effet marteau* puisque le faisceau d'ions agit comme un marteau écrasant la cible.

Ces différentes modifications structurales indiquent qu'il existe un mécanisme de transfert d'énergie efficace entre les électrons et les atomes de la cible. Nous



études dans ce qui va suivre les mécanismes de transfert d'énergie à l'oeuvre lors de ce processus.

Deux théories se retrouvent fréquemment dans la littérature. La première, l'explosion de Coulomb proposée par Fleischer <sup>[14,21]</sup>, postule que l'ion expulse les électrons du centre de la trajectoire de l'ion. La charge positive de l'ion attire les électrons vers le centre; ils poursuivent ensuite leur trajet vers l'extérieur du solide. Les électrons étant absents du centre, une charge nette positive y apparaît. La théorie nécessite que cette charge s'écrante suffisamment lentement pour que le gain d'énergie des atomes cibles s'effectue par répulsion coulombienne. La deuxième théorie, la pointe thermique, décrit un transfert d'énergie des électrons vers les atomes cibles par un ensemble de collisions aléatoires. Dans ce modèle, le système électronique est excité thermiquement pour une courte période ( $\sim 10$  fs) de façon non-uniforme. Ensuite, par collisions, l'énergie se transfère non-uniformément aux atomes, faisant fondre une région cylindrique autour de la trajectoire du projectile. Le refroidissement rapide subséquent permet alors une amorphisation cylindrique ou une recristallisation partielle. Nous schématisons les deux scénarios décrits ci-dessus à la figure 2.

Un problème similaire se rencontre dans l'étude de l'ablation laser <sup>[22,23]</sup>. Toutefois, la gamme d'énergies atteintes par les électrons est plus restreinte dans ce dernier cas. Aussi, l'irradiation par laser fournit de l'énergie au système électronique sur une période allant de 1 fs à 1 ps et plus. L'apport d'énergie est donc beaucoup plus soutenu que celui fait par l'ion projectile ( $\sim 0.01$  fs). Pour l'ablation laser, le mécanisme principal en régime non thermique est l'explosion de Coulomb <sup>[22,24,25]</sup>.

Il semble acquis que ces deux théories expliquent en grande partie le gain d'énergie des atomes, en quel cas, il conviendrait de déterminer laquelle contribue majoritairement à ce gain. L'importance relative de chacun des mécanismes dépend du temps de neutralisation de la charge et du couplage électron-phonon. Le

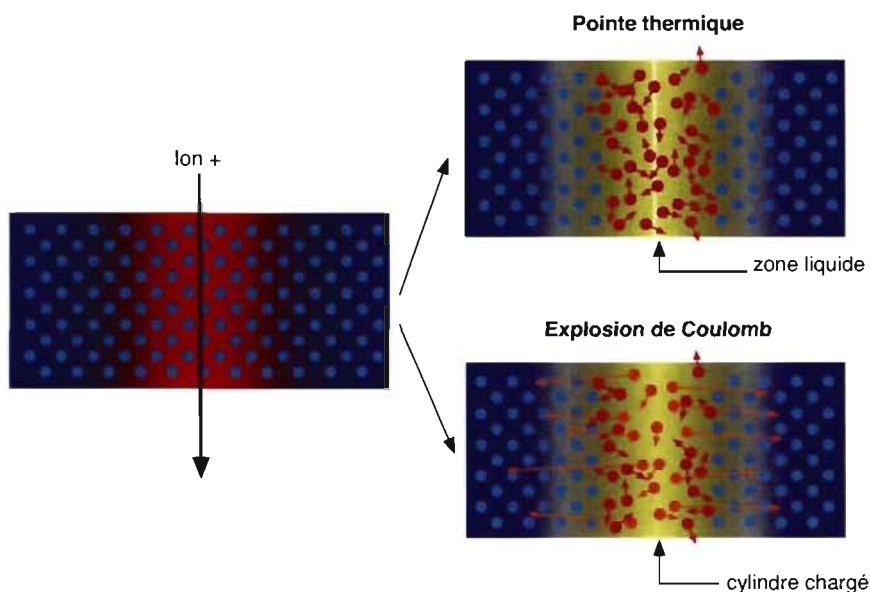


FIG. 2 – Schématisation de l'explosion de Coulomb et de la pointe thermique. Les points indiquent les atomes comme suit : bleu pour l'état solide, rouge pour l'état liquide et orange pour un atome ionisé. Le fond coloré indique l'excitation électronique.

modèle de la pointe thermique est de plus en plus utilisé dans les études récentes [26,27] sans toutefois qu'il y ait une preuve formelle justifiant cela. Les arguments favorisant la pointe thermique se basent souvent sur la bonne reproduction de résultats expérimentaux par ce modèle. Nous nous proposons de valider ces affirmations d'une façon plus formelle en distinguant clairement l'impact des deux mécanismes les plus suggérés.

Aucune information expérimentale ne permet de trancher cette question : les informations disponibles n'expliquent pas la dynamique des atomes lors du processus. Une méthode numérique s'impose pour résoudre ce problème. Nous développons donc un modèle qui offre une description qualitative correcte d'un matériau. Ce modèle permet de déterminer les mécanismes de transfert d'énergie des électrons aux atomes. Contrairement aux méthodes numériques présentées jusqu'ici [5, 28, 29], nous étudions le mouvement atomique en tenant compte des électrons sans faire

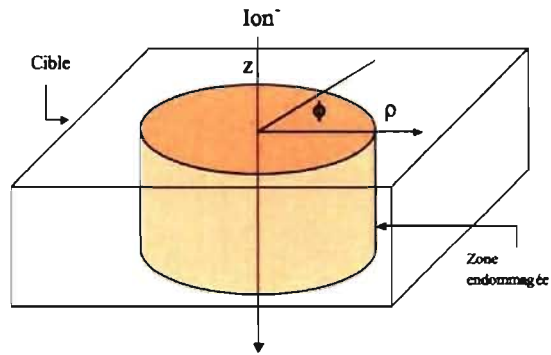


FIG. 3 – Schématisation du passage d'un ion lourd et rapide dans un solide. La géométrie cylindrique  $(\rho, \phi, z)$  indiquée est utilisée dans tout le texte.

intervenir d'hypothèse sur le mécanisme de transfert.

Nous commençons au chapitre 1 par décrire les études pertinentes sur le passage d'un ion rapide dans la matière. Nous y détaillons les phénomènes observables pertinents et nous mentionnons certaines études théoriques sur le sujet. La théorie nécessaire à l'analyse de nos résultats apparaît au chapitre 2. Nous détaillons la théorie de l'explosion de Coulomb et de la pointe thermique. Nous présentons en particulier l'impact que chaque théorie aurait sur les noyaux. Ensuite nous présentons notre modèle numérique de dynamique moléculaire. Nous décrivons la méthode utilisée afin de tenir compte des électrons et des noyaux. La manière dont le passage de l'ion affecte notre système y est également décrite. Après avoir présenté les résultats obtenus avec notre modèle, nous les analysons avec l'objectif de déterminer les mécanismes de transfert. Finalement, nous évaluons l'impact qualitatif de certains paramètres du modèle sur les résultats.

Nous utilisons la géométrie indiquée à la figure 3 dans le texte qui va suivre. Le centre du système correspond à l'axe définissant la trajectoire de l'ion à  $\rho = 0$ . Aussi dans le reste du texte, les noyaux désignent aussi bien des atomes cibles partiellement ionisés pour éviter toute confusion avec le projectile.

## CHAPITRE 1

### REVUE DE LA LITTÉRATURE

Cette section présente les différents résultats publiés au sujet du passage d'un ion rapide dans la matière. Nous nous attardons en particulier aux résultats utiles pour notre modèle numérique ainsi qu'aux études traitant des mécanismes de transfert d'énergie entre les électrons et les noyaux.

#### 1.1 Excitation électronique

L'excitation électronique n'est pas uniforme : les électrons près de la trajectoire de l'ion seront davantage perturbés que ceux plus éloignés. Pour bien décrire cette situation, il faut connaître l'énergie par unité de volume que l'ion transfère aux électrons  $S_e(\rho)$  en fonction de la distance  $\rho$  qui correspond aussi au paramètre d'impact. La symétrie du problème fait en sorte qu'il n'y a aucune dépendance angulaire (en  $\phi$ ) et la dépendance azimutale (en  $z$ ) est éliminée en considérant la vitesse de l'ion grande et constante. Plusieurs études portent sur le calcul de  $Q_e = 2\pi \int S_e(\rho)\rho d\rho$ , la perte d'énergie par unité de longueur. Cette quantité a l'avantage de se mesurer expérimentalement. Pour un ion rapide, elle correspond au pouvoir d'arrêt. Un tel ion dépose une énergie  $Q_e$  entre 1 et 100 keV/nm dans une cible.

Beaucoup de travaux sur le calcul de  $Q_e$  ne considèrent que les atomes projectiles légers <sup>[30-32]</sup>. Toutefois quelques uns s'intéressent aux ions lourds : *la théorie binaire* <sup>[33]</sup>, *l'approximation de convolution unitaire* <sup>[34]</sup>, *la théorie cinétique convergente* <sup>[35]</sup>, *la section efficace de transport non linéaire* <sup>[36]</sup> et *la méthode de la trajectoire Monte-Carlo classique* <sup>[37]</sup>. L'approximation de convolution unitaire nous intéresse du fait qu'elle fournit une dépendance de la perte d'énergie sur le paramètre d'impact ( $S_e(\rho)$ ). Nous utilisons cette dépendance pour bien reproduire

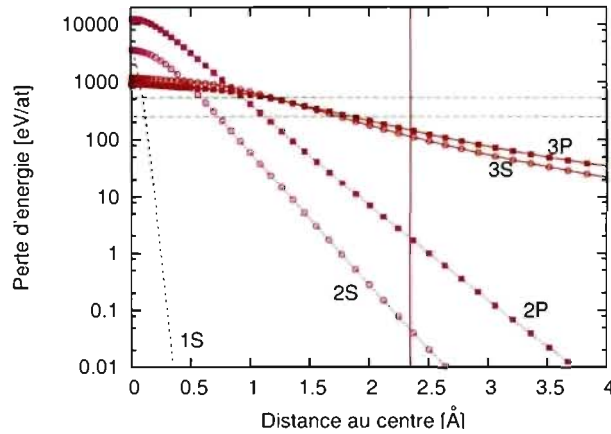


FIG. 1.1 – Perte d'énergie d'un ion  $\text{Xe}^{36+}$  (1 MeV/n) dans le silicium ( $dE/dx = 17.2$  keV/nm). La ligne verticale indique la distance du plus proche voisin et les lignes horizontales indiquent l'énergie de première ionisation des couches 2S (527 eV) et 2P (248 eV).

l'effet de l'ion rapide sur les électrons de notre système.

Grande et Schiwietz trouvent  $S_e(\rho)$  en considérant l'effet du champ électrique d'un projectile traversant la cible à vitesse constante. Ils traitent ce champ comme une perturbation dépendante du temps qui agit sur les états quantiques correspondant aux différentes couches électroniques des atomes cibles [34, 38]. Leur programme (CASP pour *Convolution Approximation for Swift Particles*) permet de faire ce calcul pour tous les projectiles monoatomiques sur n'importe quelle cible et fournit une perte d'énergie pour chaque couche électronique. À titre d'exemple, nous présentons à la figure 1.1 la perte d'énergie typique pour une cible de silicium.

Pour faire le calcul de  $S_e(\rho)$ , ils extrapolent une solution entre deux approximations : les grands et les petits paramètres d'impact. Pour les grands paramètres d'impact, ils considèrent l'ionisation des électrons et pour les petits paramètres d'impact, l'excitation à des niveaux d'énergie plus élevés est considérée. En regardant différentes combinaisons de cible et d'ion projectile, nous remarquons que les électrons des couches externes reçoivent davantage d'énergie que les autres. Aussi,

les électrons les plus sollicités se trouvent à moins de 1 Å du centre.

D'ailleurs, Meftah *et coll.* montrent l'importance de la distribution radiale de l'énergie [39]. En gardant  $Q_e$  constant lors de l'irradiation d'une cible de  $Y_3Fe_5O_{12}$ , ils montrent que le rayon de la région amorphe produite dépend aussi de la vitesse de l'ion incident. La région en question augmente si l'énergie de l'ion incident diminue. Des calculs avec CASP révèlent que si la vitesse du projectile diminue, le gradient spatial de l'énergie déposée  $S_e$  diminue et la charge d'équilibre  $\bar{q}$  augmente. Ce fait illustre l'importance de connaître la forme particulière de  $S_e(\rho)$ .

Aussi, si le projectile passe suffisamment près d'un atome de la cible, les électrons de coeur peuvent être ionisés [7,40]. Parfois, une telle ionisation s'observe loin de la trajectoire du projectile [15]. Dans ce cas, un électron rapide provenant du centre de la trajectoire est en cause. Ce dernier processus contribue à environ 30% des ionisations d'électrons de coeur observées. Les recombinaisons subséquentes de ces électrons se produisent par processus Auger : un électron se recombine avec un site vacant en donnant l'énergie libérée à un autre électron.

En bombardant des films minces, Schiwietz *et coll.* observent l'émission d'électrons provenant du centre de la trajectoire du projectile. Ils mesurent la largeur des raies Auger dans le spectre d'énergie des électrons pour estimer la température électronique suite au passage de l'ion rapide ( $\sim 10$  fs). Ainsi, ils trouvent qu'elle peut atteindre 80 000 K [40]. La quantité d'électrons captés de cette façon permet une estimation du potentiel positif laissé au centre [16,41]. Ces mesures conviennent à l'explosion de Coulomb. Elles ne démontrent toutefois pas la justesse de cette théorie qui dépend grandement du temps de blindage de la charge ( $\tau_r$ ).

À elle seule, l'excitation électronique ne permet aucune conclusion sur les mécanismes de transfert d'énergie. Par contre, nous nous inspirons des résultats numériques fournis par CASP afin de simuler un dépôt d'énergie convenable dans notre

modèle.

## 1.2 Éjection d'atomes

Le passage d'un ion suffisamment rapide dans une cible isolante entraîne l'éjection d'atomes. Ce phénomène s'observe également avec des semiconducteurs. Comme l'ion rapide n'affecte pas directement les atomes en surface, ceux-ci gagnent de l'énergie par l'intermédiaire des électrons.

Bringa et Johnson affirment que le nombre d'atomes éjectés ( $Y_S$ ) dépend du mécanisme de transfert d'énergie entre les électrons et les noyaux [26,28,42]. Ils constatent que la relation entre  $Y_S$  et  $Q_e$  permet d'identifier le mécanisme de transfert. En simulant la dynamique d'atomes ionisés dans une région cylindrique, ils concluent qu'un processus thermique suit l'explosion de Coulomb. Ils associent le temps d'action de l'explosion de Coulomb à une fraction de la période de vibration atomique ( $0.2\tau_D$ ).

Par ailleurs, Toulemonde *et coll.* montrent expérimentalement que la présence de déformations ne se lie pas automatiquement à l'éjection d'atomes [17]. Ils trouvent que les énergies critiques pour observer ces phénomènes diffèrent. Par contre, leurs mesures de l'éjection d'atomes et des déformations dans le LiF concordent bien avec le modèle de la pointe thermique. Ils discutent abondamment de la distribution angulaire de l'éjection d'atomes dans le LiF pour appuyer leur thèse.

## 1.3 Modifications structurales

Les modifications structurales causées par un seul ion rapide s'observent difficilement en raison de leur petite taille. Par contre, les régions concernées réagissent chimiquement et changent de résistivité [14,21], ce qui permet de détecter leur présence. Une attaque chimique au HF révèle parfois ces modifications du solide [44]. Elles s'observent aussi avec un microscope à transmission électronique (TEM).

Cible	Proj.	$E$ [Mev/u]	$d$ [ $\mu$ m]	$r$ [nm]	source
Si	Xe	2.97	-	5.71	[19]
SiO <sub>2</sub>	S	1.56	-	2.0	[43]
SiO <sub>2</sub>	Xe	1.5	-	4.0	[43]
SiO <sub>2</sub>	Pb	5.0	-	8.2	[43]
InP	Xe	1.91	$\sim 7$	$\sim 3$	[5]

TAB. 1.1 – Longueurs ( $d$ ) et rayons ( $r$ ) de différents défauts structuraux observés expérimentalement.

Toutefois, ce procédé affecte les structures ainsi formées <sup>[5]</sup> et peut même les faire disparaître dans certains cas. De la même façon, la présence de déplacements atomiques se détecte par rétrodiffusion de Rutherford (*Rutherford backscattering*). Pour ce dernier procédé, un faisceau d’atomes  $^4\text{He}^+$  est utilisé pour faire l’analyse de l’échantillon.

Les modifications structurales apparaissent cylindriques, reflétant ainsi la symétrie du dépôt d’énergie. La longueur de ces structures excède leur diamètre par un facteur de 1000 et plus (voir tableau 1.1). On observe parfois que la région n’est pas parfaitement cylindrique mais intermittente <sup>[45–48]</sup>. Dans ce cas, la modification le long de la trajectoire est de forme cylindrique mais avec un rayon changeant ; nous avons montré un tel profil à la figure 1. Le profil intermittent s’explique par la variation de la charge du projectile autour de la valeur d’équilibre <sup>[46]</sup>.

La nature du réarrangement atomique varie. Une amorphisation cylindrique s’observe dans l’InP <sup>[5]</sup> et, plus difficilement, dans le silicium <sup>[2,49]</sup> et le germanium <sup>[50]</sup>. Dans ces deux derniers matériaux, un ion ne suffit pas à engendrer une déformation et les auteurs utilisent des fullerènes ( $\text{C}_{60}$ ) rapides. Si l’énergie du projectile ne permet pas l’amorphisation dans le InP, l’ion laisse parfois des défauts ponctuels isolés ou regroupés <sup>[5]</sup>. Aussi, Dunlop *et coll.* observent la recristallisation d’une cible amorphe suite au passage d’un ion rapide <sup>[49]</sup>.



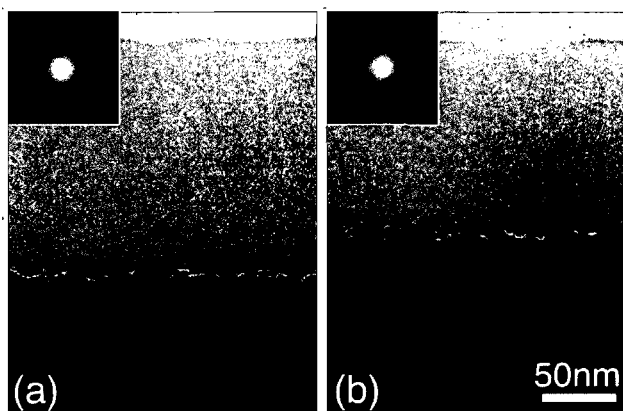


FIG. 1.2. – Images de couches amorphes (parrallèles à l'ion incident) dans le SiC à des températures de 120 K (a) et 373 K (b) suite au passage d'un faisceau d'ions rapides <sup>[1]</sup>. Les régions foncées sont cristallines ; les régions plus pâles, immédiatement au dessus, sont amorphes et la surface de la cible apparaît encore plus claire au sommet de chaque image. Le patron de diffraction des électrons correspondant à chaque image est indiqué dans l'encadré.

Par ailleurs, une surface amorphe se forme sur un échantillon irradié par un faisceau d'ions: Il s'agit en fait de plusieurs cylindres individuels qui se recouvrent lorsque la cible est suffisamment bombardée. L'épaisseur de la surface amorphe ainsi produite donne une bonne indication de la longueur des modifications structurales produites par un seul ion.

Nous montrons des images prises par Ishimaru *et coll.* <sup>[1]</sup> de surfaces amorphes produites par un faisceau d'ions à la figure 1.2. L'échantillon de SiC utilisé était originalement cristallin. Nous voyons sur la figure que la région amorphe, qui apparaît gris pâle, est plus grande pour une température faible (a). Les auteurs mesurent une surface amorphe de 120 nm pour une température élevée (373 K) et 150 nm pour une température plus faible (120 K). Ils montrent ainsi que l'épaisseur de la surface amorphe dépend de la température de la cible.

Lors d'un tel bombardement, on constate souvent un étirement anisotrope de

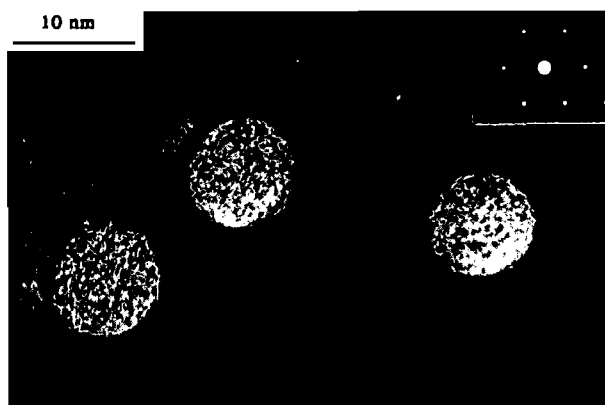


FIG. 1.3 – Image du plan perpendiculaire au faisceau d’ion incident (prise par Dunlop *et coll.* [2]) de trois régions cylindriques amorphes de Si. Sur l’image, ces régions sont moins foncées que le silicium cristallin les entourant. L’encadré indique le patron de diffraction des électrons correspondant à l’image.

la cible (effet marteau) [18,20,51]. Dans ce cas, l’épaisseur d’un échantillon diminue et les dimensions perpendiculaires au faisceau augmentent.

Dans la littérature, un intérêt particulier est porté au silicium lorsqu’on parle de déformation. En effet, il se pourrait que lors du processus de déformation, une transition vitreuse se produise [18]. L’existence d’une telle transition nécessite un refroidissement rapide ( $> 10^9$  K/s). Notons qu’aucune déformation isolée n’a été observée dans le silicium suite au passage d’ions monoatomiques [52] : des groupes d’atomes sont nécessaire. Nous montrons à la figure 1.3 une observation faite par Dunlop *et coll.* de cylindres amorphes présent dans le Si cristallin suite au passage de fullerènes [2,49].

Les déformations s’observent plus fréquemment dans les isolants que dans les métaux et les semiconducteurs. À ce sujet, Fleischer suggère que la présence de déformations dépend de la mobilité des porteurs de charges positives. Un mécanisme visant à décrire le mouvement atomique doit nécessairement tenir compte de cette dépendance. Ces considérations confirment que les déformations ne résultent pas

de l'excitation directe des noyaux par l'ion incident.

Gaiduk *et coll.* montrent que la présence et la nature des déformations dépend de la température de la cible <sup>[47]</sup>. Ils envoient un projectile de Xe à 1.91 MeV/n sur une cible d'InP à trois températures : 80, 300 et 400 Kelvin. Seule la cible à 300 K présente des modifications continues après irradiation. La cible à 80 K ne présente aucun défaut et celle à 400 K possède des défauts discontinus. Les résultats de Ishimaru *et coll.* présentés plus haut montrent également l'importance de la température de la cible.

Ces études, majoritairement expérimentales, relatent beaucoup de phénomènes permanents suivant l'interaction d'un ion lourd et rapide avec la matière. Par contre, il existe peu de certitudes sur les mécanismes conduisant à ces observations. L'information sur la dynamique des électrons et des atomes demeure inaccessible expérimentalement. À cet effet, des modèles théoriques ont été suggérés pour expliquer cette dynamique complexe et certains de ces modèles prédisent correctement les caractéristiques des déformations pour des cas précis et vérifiables expérimentalement. Dans ce sens, les prédictions se basant sur le modèle de la pointe thermique fournissent les meilleurs résultats de sorte que ce modèle est désormais largement accepté pour expliquer les déformations. Toutefois, il n'existe aucune étude purement théorique qui permet de décrire la dynamique des électrons et des atomes jusqu'à l'apparition de déformations permanentes et ainsi valider l'utilisation du modèle de la pointe thermique. Il reste donc plusieurs problèmes à résoudre dans ce sens, notamment celui qui nous intéresse ici, à savoir, par quel mécanisme les électrons transfèrent leur énergie aux atomes du solide.

## CHAPITRE 2

### NOTIONS THÉORIQUES

Nous décrivons dans la présente section la démarche utilisée pour identifier les mécanismes de transfert d'énergie. Nous détaillons la théorie encadrant cette démarche. Nous décrivons les conséquences de chaque théorie suggérée sur les mécanismes de transfert.

Nous retrouvons dans la littérature différents outils d'analyse visant à décrire le mécanisme de transfert d'énergie des électrons vers les noyaux. Plusieurs d'entre eux apparaissent dans le contexte de l'ablation laser. Pour l'étude de petits agrégats d'atomes, certains auteurs suggèrent <sup>[22,23]</sup> de déterminer la relation entre la charge du système et l'énergie atomique moyenne. Une relation linéaire indique un régime hydrodynamique et une relation quadratique est liée à l'explosion de Coulomb. Dans la mesure où il n'y a aucune charge nette dans notre système, nous ne pouvons utiliser cette méthode.

Pour identifier le processus par lequel les électrons transfèrent leur énergie aux noyaux, nous proposons de regarder l'évolution temporelle de l'énergie cinétique des noyaux  $[K_n(\vec{r}, t)]$ . Cette évolution dépend du mécanisme de transfert d'énergie. En effet, nous verrons que l'explosion de Coulomb doit se produire rapidement et entraîne un gain rapide d'énergie en comparaison d'un processus thermique.

#### 2.1 Explosion de Coulomb

Selon ce mécanisme, l'ion incident crée une séparation des charges. L'ion attire d'abord les électrons vers le centre et ceux-ci quittent ensuite cette région. Par conséquent, une charge nette positive apparaît autour de la trajectoire du projectile. Les noyaux les plus près du centre parcourent quelques distances inter-atomiques

en réaction à cette charge. Leur vitesse radiale domine les autres composantes et elle est fortement corrélée avec la charge au centre. Ensuite, la densité électronique se rétablit et le champ électrique se blinde. Une simple réorganisation des atomes avoisinants ne suffit pas à rétablir le réseau ; des déformations permanentes se créent ainsi.

L'explosion de Coulomb dépend principalement du temps de neutralisation de la charge ( $\tau_r$ ) laissée au centre. L'importance de ce phénomène dépend aussi de la grandeur de la charge et de la taille de la région cylindrique.

Nous savons que la fluidité électronique des métaux est plus grande que celle des isolants. Par conséquent, le blindage de la charge s'effectue plus rapidement dans les métaux. Ceci peut expliquer l'absence de déformations dans les métaux. D'ailleurs, le gradient de  $S_e$  influence la charge nette qui se retrouve au centre. Le nombre d'électrons éjectés diminue lorsque l'excitation électronique est restreinte à une petite région, ce qui limite l'explosion de Coulomb.

Pour déterminer l'évolution temporelle de l'énergie cinétique des noyaux, nous devons connaître la force agissant sur les noyaux dans ce contexte. La force  $[\vec{F}(\rho)]$  produite par un cylindre de densité linéaire de charge  $\lambda$  sur une charge  $Q$  est :

$$\vec{F} = \frac{\lambda}{2\pi\epsilon_0} \frac{Q}{\rho} \hat{\rho}. \quad (2.1)$$

De cette expression, nous pouvons résoudre l'équation du mouvement d'un noyau et trouver son énergie en fonction du temps. Nous illustrons un tel calcul avec une densité de charge variable  $[\lambda(t) = \lambda_0 \exp(-t/\tau_r)]$  à la figure 2.1. La variation de la charge du cylindre tient compte du blindage qui se produit. Nous constatons qu'après une croissance rapide, l'énergie plafonne. Ce calcul ne tient pas compte de la dynamique complexe entre les noyaux et il ne doit donc être considéré qu'à titre indicatif.

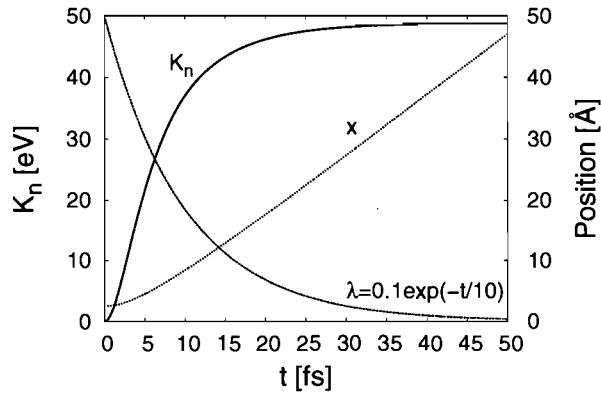


FIG. 2.1 – Énergie cinétique d'une particule chargée due au potentiel d'un cylindre chargé en fonction du temps. La position  $x$  et la densité de charge  $\lambda$  sont également indiquées.

Nous pouvons obtenir une expression analytique si nous considérons que les noyaux bougent peu. Cette supposition ne correspond pas du tout avec le mécanisme de l'explosion de Coulomb mais s'avèrera valable dans ce qui va suivre. Avec cette condition, la distance  $\rho$  est constante et la vitesse des noyaux se trouve aisément avec l'équation du mouvement :

$$v_n(t) = \int \frac{\lambda(t) Q}{2\pi\epsilon_0 \rho} dt. \quad (2.2)$$

Or la seule dépendance sur le temps se trouve à l'intérieur de  $\lambda$  :

$$v_n(t) = \frac{Q}{2\pi\epsilon_0 \rho} \tau_r \lambda_0 \exp(-t/\tau_r) + v_0. \quad (2.3)$$

Considérant que la vitesse des noyaux est nulle à  $t = 0$ , nous pouvons écrire une expression pour l'énergie plus simple :

$$K_n = \frac{1}{2} m v_n^2 = K_0 [1 - \exp(-t/\tau_r)]^2, \quad (2.4)$$

où  $K_0$  est une constante qui dépend de  $\lambda_0$  et  $\tau_r$ . Cette expression représente l'ac-

croissement d'énergie causée par l'explosion de Coulomb dans la mesure où les noyaux bougent peu.

## 2.2 Pointe thermique

Ce modèle suggère que l'excitation des électrons devient rapidement thermique, c'est-à-dire qu'ils acquièrent une distribution maxwellienne des vitesses. L'énergie électronique majoritairement concentrée au centre se transfère par collisions aléatoires aux noyaux. Les noyaux acquièrent ainsi une énergie plus élevée au centre. Pour trouver une déformation, l'énergie atomique doit suffire à faire fondre une région cylindrique dans le solide. Un refroidissement rapide suit la fusion et permet une amorphisation cylindrique autour de la trajectoire du projectile.

La force du couplage électron-phonon affecte la vitesse du transfert d'énergie et, par conséquent, la quantité d'énergie transférée entre les électrons et les noyaux. Aussi, la diffusion peut influencer ce transfert. Une diffusion d'énergie rapide, autant au niveau des électrons que des noyaux, évacue l'énergie avant que la fusion ne se produise.

Les électrons quasi-libres d'un métal interagissent peu avec les noyaux. Le couplage électron-phonon est donc plus faible que pour un isolant. L'absence de déformations dans les métaux est naturelle selon cette théorie. Ce modèle explique aussi la dépendance des déformations sur la température de la cible trouvée par Gaiduk *et coll.* <sup>[47]</sup>. Plus celle-ci est chaude, moins elle nécessite d'énergie pour fondre et se déformer. Par contre, si la cible est trop chaude, le refroidissement suivant la fusion ralentit et permet une recristallisation. Dans ce dernier cas, les déformations disparaissent.

Nous décrivons les électrons et les noyaux par leur température  $T_e(\vec{r}, t)$  et  $T_n(\vec{r}, t)$  respectivement ; une description qui correspond au modèle à deux tempéra-

tures [5,53]. Le lien avec l'énergie cinétique par particule se fait avec les capacités calorifiques totales  $C_e$  et  $C_n$  de sorte que  $K_e = C_e T_e / N_e$  et  $K_n = C_n T_n / N_n$  si  $N_e$  et  $N_n$  représentent respectivement le nombre d'électrons et d'atomes. En considérant les valeurs classiques des capacités calorifiques par particule, lesquelles sont constantes, l'énergie cinétique par atome  $K(\vec{r}, t)$  est liée aux températures et énergies précédentes par :

$$\begin{aligned} K(\vec{r}, t) &= [C_n T_n(\vec{r}, t) + C_e T_e(\vec{r}, t)] / N_n \\ &= K_n(\vec{r}, t) + (N_e / N_n) K_e(\vec{r}, t), \end{aligned} \quad (2.5)$$

puisque le nombre de noyaux est identique au nombre d'atomes. Pour notre étude, les énergies dépendent uniquement de  $\rho$  à cause de la forme de l'équation 3.11.

L'évolution temporelle de deux fluides en contact thermique est généralement décrite par les équations de la chaleur :

$$\begin{aligned} C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} &= \kappa_e \nabla^2 T_e - G(T_e - T_n), \\ C_n \frac{\partial T_n}{\partial t} &= \kappa_n \nabla^2 T_n + G(T_e - T_n). \end{aligned} \quad (2.6)$$

Ici,  $\kappa_e$  et  $\kappa_n$  sont les conductivités thermiques des électrons et des noyaux respectivement et  $G$  est la constante de couplage thermique entre les deux espèces. En effectuant une moyenne spatiale des températures ( $\bar{T}$ ), nous trouvons :

$$\begin{aligned} C_e \frac{\partial \bar{T}_e}{\partial t} &= -G(\bar{T}_e - \bar{T}_n), \\ C_n \frac{\partial \bar{T}_n}{\partial t} &= G(\bar{T}_e - \bar{T}_n). \end{aligned} \quad (2.7)$$

La solution générale pour  $\bar{K}_n(t)$  s'écrit en fonction d'un paramètre  $\tau_{ne}$ , le temps de relaxation noyau-électron, qui dépend des constantes de l'équation précédente :

$$\bar{K}_n(t) = K_1 e^{-t/\tau_{ne}} + K_2, \quad (2.8)$$



où  $K_1$  et  $K_2$  sont déterminés par les conditions initiales.

Toutefois, il faut aussi considérer l'énergie potentielle ( $\Delta V$ ) pour décrire convenablement le système. Il existe aussi un couplage linéaire entre  $T_e$ ,  $T_n$  et  $\Delta V$  de la même forme que l'équation 2.6. Par conséquent, l'énergie cinétique atomique doit s'écrire :

$$\overline{K}_n(t) = K_1 e^{-t/\tau_1} + K_2 e^{-t/\tau_2} + K_3. \quad (2.9)$$

Pour vérifier ces formules, nous excitons thermiquement les électrons et nous regardons l'évolution de l'énergie cinétique et potentielle. Nous trouvons que l'équation 2.8 décrit correctement l'évolution de  $\overline{K}_n(t)$ .

### 2.3 Autres théories

D'autres théories apparaissent dans la littérature afin d'expliquer le transfert d'énergie entre les électrons et les atomes lors du passage d'un ion rapide. Toutefois ces théories possèdent des lacunes importantes et n'expliquent pas convenablement les observations expérimentales.

Certains auteurs suggèrent que la diffusion thermique ne suffit pas à bien expliquer les modifications structurales. Ils suggèrent d'autres phénomènes hydrodynamiques comme la présence d'une onde de pression <sup>[26,54]</sup> ou bien des variations de la densité et de la vitesse des atomes <sup>[55]</sup>. Ces éléments améliorent le modèle de la pointe thermique et décrivent un transport d'énergie au niveau des atomes. Toutefois, ils n'expliquent pas le transfert d'énergie entre les électrons et les noyaux qui nous intéresse ici.

Aussi, le modèle de relaxation du réseau se base sur l'apparition d'une force inter-atomique répulsive due à la grande excitation électronique. En effet, l'excitation des électrons à la bande de conduction réduit les liens covalents entre les atomes et cause une répulsion supplémentaire <sup>[56]</sup>. Cette nouvelle répulsion n'est pas cou-

lombienne car la densité d'électrons demeure constante ; seul leur état d'excitation change. Le changement de la force inter-atomique qui résulte de cette excitation pourrait engendrer la fusion du matériau, lequel formerait possiblement un solide amorphe après le refroidissement.

Les électrons avec une grande vitesse radiale ( $v_e^p$ ) peuvent causer une friction sur les noyaux. Cette force agit avant que les électrons n'atteignent l'équilibre thermique. Dans ce régime, la force agissant sur les atomes dépend de la vitesse des électrons. Par conséquent, la vitesse radiale des noyaux ( $v_n^p$ ) augmente radialement et l'évolution de l'énergie atomique est de la forme :

$$\overline{K}_n(t) \propto \frac{1}{m} \left[ \int v_e^p(t) dt \right]^2. \quad (2.10)$$

#### 2.4 Comparaisons entre l'explosion de Coulomb et la pointe thermique

D'abord, les deux modèles expliquent correctement l'absence de déformations dans les métaux. En fait, la plupart des théories le font du fait qu'il s'agit du principal résultat expérimental.

Par contre, l'impact de la température de la cible s'explique plus naturellement avec le modèle de la pointe thermique. Le chauffage peut être facilité et le refroidissement ralenti en augmentant la température. Dans le cadre de l'explosion de Coulomb, la température de la cible n'affecte pas le nombre de noyaux expulsés du centre sous l'effet d'un champ électrique. Par contre, cette température peut modifier le temps de recombinaison et la charge au centre et ainsi jouer un rôle.

D'autre part, l'impact de la forme du dépôt d'énergie s'explique avec l'explosion de Coulomb. Lorsque la région affectée augmente, le nombre d'électrons éjectés augmente aussi. Dans un processus purement thermique, cette dépendance est moins

intuitive; il n'existe toutefois aucune contradiction entre cette observation et le modèle de la pointe thermique.

En somme, aucun des mécanismes mentionnés n'expliquent parfaitement les observations expérimentales. Le transfert d'énergie s'effectue probablement par une combinaison des théories mentionnées plus haut. Nous tenterons donc de déterminer les différentes contributions avec notre modèle.

## CHAPITRE 3

### MODÈLE

Aucune étude jusqu'ici n'a identifié clairement les mécanismes de transfert d'énergie entre les électrons et les noyaux. La plupart des modèles ne traitent pas les électrons explicitement et ceux qui les considèrent supposent d'emblée que le transfert est thermique. Nous proposons un modèle qui tient compte correctement des électrons et qui ne suppose aucune hypothèse sur les mécanismes de transfert d'énergie. Notre modèle décrit correctement un solide et permet d'obtenir un résultat qualitatif valable.

Pour étudier la dynamique des électrons correctement, il convient d'utiliser une méthode liée de près à l'équation de Schrödinger comme, par exemple, la théorie de la fonctionnelle de densité. Toutefois, les méthodes de ce genre demandent un temps de calcul élevé et, par conséquent, ne permettent pas de suivre la dynamique des atomes sur une période convenable pour notre étude. Le même problème se retrouve dans l'étude de l'ablation laser et, pour résoudre ce problème, Mijoule *et coll.* ont développé une méthode semi-classique qui se base sur les équations hydrodynamiques de Madelung, lesquelles sont une reformulation de l'équation de Schrödinger <sup>[22]</sup>. Dans leur méthode, des approximations interviennent pour limiter le temps de calcul mais elles se font en sacrifiant la modélisation de certains phénomènes quantiques non pertinents. Nous adoptons une procédure très similaire pour générer notre modèle numérique.

Nous avons adapté le modèle de Mijoule *et coll.* <sup>[22]</sup> à un environnement à trois dimensions et nous utilisons des conditions frontières périodiques. Nous représentons un solide en considérant les noyaux et les électrons comme des particules distinctes. Pour tenir compte de la délocalisation des électrons, nous les fractionnons en  $N$  particules, nommées pseudo-électrons (PE), lesquelles sont traités comme des par-

ticules classiques, au même titre que les noyaux. Ces PE possèdent une charge  $e/N$  et une masse  $m_e/N$ . En fractionnant ainsi les électrons, nous pouvons choisir la charge des noyaux et le nombre de PE de façon indépendante. La charge des noyaux n'affecte que les valeurs numériques de nos calculs puisqu'elle change uniquement l'échelle d'énergie de notre système. Par contre, des contraintes apparaissent sur le nombre de particules. En fractionnant les électrons de la sorte, nous pouvons considérer toutes les valeurs de charge des noyaux et ajuster convenablement le nombre de PE par la suite. Puisque le modèle est classique, et que nous ne nous intéressons qu'au transfert d'énergie, le nombre de PE n'affecte pas *a priori* les résultats recherchés.

La force entre chaque particule se base sur l'interaction de Coulomb et, pour cette raison, correspond bien à la dynamique d'un solide réel. Ce modèle permet de bien simuler l'effet attractif de l'ion sur les électrons. Contrairement aux autres modèles traitant le passage d'un ion rapide <sup>[5,29]</sup>, le nôtre tient compte correctement de la grande vitesse radiale que l'ion inculque aux électrons. Les méthodes représentant les électrons comme un fluide uniforme ne s'appliquent pas à ce problème étant donnée la grande perturbation qu'on leur impose. La trajectoire des électrons est donc suivie par une méthode de dynamique moléculaire, une méthode qui révèle leurs rôles précis. Ce modèle permet de distinguer les deux principales théories sur le transfert d'énergie suivant le passage d'un ion rapide (pointe thermique et explosion de Coulomb) puisque ces dernières s'expliquent dans un contexte classique. Pour ces raisons, l'approche classique utilisée ici convient à nos fins et fournit une description qualitative correcte du phénomène.

### 3.1 Forces d'interaction

Les particules présentes dans notre modèle interagissent entre elles. Il faut donc définir trois forces d'interaction : noyau-noyau ( $\vec{f}_{nn}$ ), noyau-PE ( $\vec{f}_{ne}$ ) et PE-PE ( $\vec{f}_{ee}$ ). Le choix des forces doit permettre une liaison entre deux atomes ; nous

déterminons un critère à cet effet à la section 3.1.1.

Un noyau possède une charge positive ; le potentiel entre deux noyaux ( $V_{nn}$ ) de charges  $Q_1$  et  $Q_2$  est donc celui de Coulomb :

$$V_{nn}(\vec{r}) = \frac{Q_1 Q_2}{r}, \quad (3.1)$$

$$\vec{f}_{nn}(\vec{r}) = \frac{Q_1 Q_2}{r^2} \hat{r}. \quad (3.2)$$

Les noyaux et les PE possèdent des charges de signes opposés ( $Q$  et  $q$  respectivement) ; ils devraient en principe interagir par la force de Coulomb. Toutefois, un problème apparaît avec cette force : elle attire irréversiblement les PE sur un noyau. Nous ajoutons une contribution répulsive à courte distance pour contourner le problème. D'autres alternatives seraient possibles <sup>[23]</sup>.

Le terme répulsif de la force noyau-PE doit quand même représenter adéquatement le transfert d'énergie des électrons vers les noyaux. Pour cette raison, nous choisissons un potentiel ( $V_{ne}$ ) qui rejoint l'interaction de Coulomb pour  $r \ll 1$  et  $r \gg 1$  :

$$V_{ne}(\vec{r}) = Qq \left( \frac{2e^{-\alpha r} - 1}{r} \right), \quad (3.3)$$

$$\vec{f}_{ne}(\vec{r}) = Qq \left[ \frac{2(1 + \alpha r)e^{-\alpha r} - 1}{r^2} \right] \hat{r}. \quad (3.4)$$

Dans cette expression,  $\alpha$  fixe le minimum de l'énergie potentielle  $V_{ne}$ . Ce paramètre détermine en grande partie le paramètre de maille du réseau.

En réduisant légèrement l'interaction de Coulomb entre les PE, nous pouvons obtenir un système où deux atomes (noyau + PE) s'attirent lorsque suffisamment éloignés. Nous devons toutefois respecter certaines contraintes pour choisir la force

PE-PE. Cette force doit toujours être répulsive et elle doit décroître lorsque la distance entre deux PE augmente. Une suggestion raisonnable d'interaction entre deux PE de charge  $q_1$  et  $q_2$ , avec un paramètre ajustable  $\gamma$ , serait donc :

$$V_{ee}(\vec{r}) = - \int \vec{f}_{ee} \bullet d\vec{r}, \quad (3.5)$$

$$\vec{f}_{ee}(\vec{r}) = \frac{q_1 q_2 \operatorname{erf}(\gamma r)}{r^2} \hat{r}. \quad (3.6)$$

Ici  $\operatorname{erf}(x)$  est la fonction erreur :  $\operatorname{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt$ . Donc, avec  $\gamma \rightarrow \infty$ , nous retrouvons la force de Coulomb. En fait,  $\gamma^{-1}$  représente la distance à partir de laquelle l'interaction PE-PE devient coulombienne.

Outre l'interaction noyau-PE, les forces ressemblent beaucoup à la force Coulombienne classique. Nous voyons le potentiel noyau-PE comme un pseudopotentiel permettant de reproduire une distribution électronique adéquate dans le solide simulé.

### 3.1.1 Force entre deux atomes.

Pour estimer la force entre deux atomes, nous supposons qu'un atome se compose d'un noyau et de  $N$  PE superposés et n'interagissant pas entre eux. En séparant deux tels atomes d'une distance  $r$ , nous trouvons la force  $\vec{F}_2$  entre deux atomes :

$$\vec{F}_2(\vec{r}) = \vec{f}_{nn}(\vec{r}) + \vec{f}_{ee}(\vec{r}) + 2\vec{f}_{ne}(\vec{r}), \quad (3.7)$$

et pour le cas qui nous intéresse :

$$\vec{F}_2(\vec{r}) = \left( \frac{4(1 + \alpha r)e^{-\alpha r}}{r^2} - \frac{\operatorname{erfc}(\gamma r)}{r^2} \right) \hat{r}. \quad (3.8)$$

Nous validons cette expression en mesurant l'énergie potentielle d'un système à deux atomes pour différents rayons. La force s'obtient en dérivant l'énergie potentielle trouvée par rapport au rayon. Il est à noter que  $F_2$  serait nul si nous avions

gardé les interactions de Coulomb originales.

Notre modèle contient trois paramètres libres à choisir  $(N, \alpha, \gamma)$ . Par contre, nous devons choisir  $\alpha$  et  $\gamma$  de sorte que  $\vec{F}_2$  est répulsif à courte distance et attractif à grande distance.

### 3.1.2 Procédure pour l'interaction à longue portée

La force coulombienne entre dans la catégorie des interactions à longue portée [57]. En utilisant des conditions périodiques dans notre système, le nombre de paires de particules à considérer dans le calcul des forces devient infini. Des astuces s'imposent pour calculer ces termes d'interactions. La somme de Ewald demeure la méthode la plus répandue ; nous en retrouvons une description dans le livre de Frenkel et Smit [57].

Nous choisissons plutôt de couper et de décaler les interactions à longues portées pour éviter toutes complications. Fennel et Gezelter montrent que cette procédure équivaut à la sommation de Ewald pour un bon choix du rayon de coupure ( $r_c$ ) [58]. Ils utilisent cette procédure pour l'étude des cristaux ioniques. Dans les deux cas, la nature des interactions est la même. Par conséquent, pour  $r > r_c$ , les forces et potentiels sont nuls et, pour  $r < r_c$ , les forces deviennent :

$$\vec{f}(r) = (f(r) - f(r_c)) \hat{r}. \quad (3.9)$$

Dans ce qui suit, nous fixons  $r_c$  à 12 Å puisque Fennel et Gezelter suggèrent de prendre une valeur supérieure à 9 Å. La valeur choisie restreint l'interaction au volume de simulation ; ce dernier impose une borne supérieure à  $r_c$ .

## 3.2 Spécifications du système

Initialement, nous fixons les noyaux dans la configuration CFC puisque celle-ci minimise l'énergie de cohésion. Ensuite les PE sont disposés aléatoirement dans



l'ensemble du système. Une procédure simple de relaxation permet d'obtenir le minimum d'énergie en suivant le gradient d'énergie potentielle pour chaque PE. Ensuite, le système est perturbé, selon la procédure indiquée à la section 3.4, et un code de dynamique moléculaire permet de suivre l'évolution temporelle des particules. Nous intégrons les équations du mouvement de ce système avec l'algorithme de Verlet et un pas de temps  $\Delta t = 10^{-18}$  s. Nos simulations suivent le mouvement des particules jusqu'à 25 fs après le passage de l'ion.

Notre système comprend 2400 atomes. Les paramètres  $\alpha$  et  $\gamma$  introduits plus tôt sont choisis pour donner une cellule CFC conventionnelle avec un paramètre de maille ( $a$ ) de 5 Å. Nous utilisons un volume de simulation rectangulaire de côté 50Åx50Åx30Å. Aussi, pour amplifier le mouvement des atomes, nous diminuons la masse des noyaux ( $M$ ) à une fraction de la masse d'un nucléon ( $M = 0.01$  u.m.a.). Ici, il est seulement important d'avoir un rapport assez grand entre la masse d'un noyau et celle des PE. Nous discuterons de l'impact de ce choix lors de la discussion des résultats.

Pour simuler un solide infini, nous utilisons des conditions frontières périodiques. Toutefois, nous ajoutons une procédure pour arrêter les électrons avec une vitesse radiale trop élevée lorsqu'ils franchissent la frontière. Sans cette procédure, notre simulation représenterait le passage d'un faisceau d'ions, ce que l'on souhaite éviter. Nous fixons l'énergie limite permise à la frontière à 3000 eV. Cette limite permet d'arrêter seulement les électrons rapides provenant du centre en début de simulation ; aucune fluctuation d'énergie ne se produit après qu'ils soient éjectés.

Le nombre de PE par électron choisi doit fournir une distribution des PE correcte dans le solide. Nous discuterons dans la prochaine section des critères à cet effet. En prenant  $N = 4$ , nous retrouvons une distribution électronique adéquate (voir figure 3.1). Cette distribution présente essentiellement les mêmes caractéristiques que la distribution obtenue avec une valeur de  $N$  plus élevée. De plus, ce choix n'a

pas d'impact sur la dynamique des électrons, les temps caractéristiques du transport d'énergie discutés plus loin n'en dépendent pas.

Pour fixer les paramètres libres  $\alpha$  et  $\gamma$ , nous avons déjà indiqué la contrainte sur le paramètre de maille  $a$ . Il reste encore une certaine liberté sur ces paramètres qui n'affecte pas qualitativement le système. Entre autres, la distribution des PE autour des noyaux n'est pas affectée par ce choix. Nous obtenons des résultats convenables en prenant  $\alpha = 1.20 \text{ \AA}^{-1}$  et  $\gamma = 0.228 \text{ \AA}^{-1}$ . Avec cette valeur de  $\alpha$ , le nuage électronique autour d'un atome se trouve à une distance comparable au rayon de Bohr. De plus, la valeur de  $\gamma$  choisie permet à l'interaction de devenir coulombienne à partir d'une distance comparable à la distance interatomique et, par conséquent, l'interaction entre les PE n'est pas considérablement modifiée.

### 3.3 Validation du modèle

Maintenant que notre modèle permet de reproduire un solide stable à température nulle, nous examinons ses propriétés plus en détail. Nous vérifions aussi qu'il réagit bien à certaines perturbations. Cet exercice nous permet de vérifier que l'échange d'énergie entre les électrons et les noyaux est adéquat.

#### 3.3.1 Densité électronique

Nous présentons à la figure 3.1 une projection bidimensionnelle des PE et des noyaux qui donne une bonne représentation visuelle de la densité électronique. Afin de mieux la voir, nous y avons translaté toutes les particules dans une cellule conventionnelle. Les vecteurs de translation du réseau CFC ont été utilisés à cette fin.

Il est évident sur cette figure que la distribution n'est pas uniforme dans le solide ni localisée uniquement autour des noyaux. De petites sphères de PE se forment entre les noyaux; le point  $(1.25, 1.25, 1.25)$  en est un bon exemple. De ces sphères,

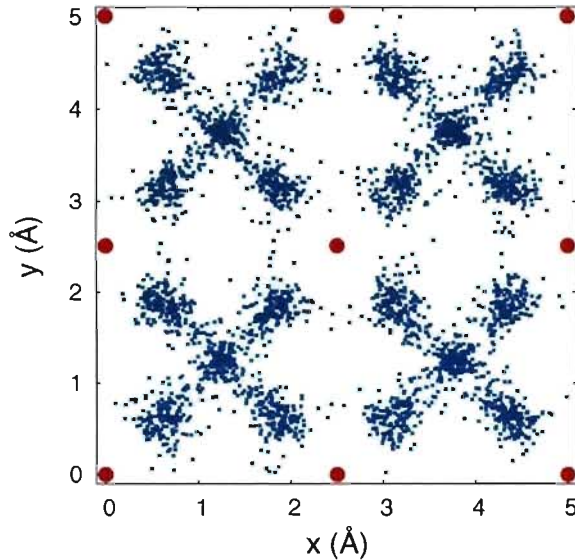


FIG. 3.1 – Projection bidimensionnelle des positions des noyaux (cercles rouges) et des PE (carrés turquoise) dans une cellule CFC conventionnelle.

quatre branches de PE se rendent aux quatre plus proches noyaux. Ainsi, l'angle entre chaque paire de branches adjacentes est de  $70.5^\circ$ . Les électrons sont étendus dans l'espace entre les noyaux et forment des liens. Malgré le réseau CFC, nous reproduisons les principales caractéristiques de la distribution électronique d'un cristal covalent <sup>[59]</sup>. Mentionnons pour terminer que ces structures disparaissent lorsque les électrons sont suffisamment excités.

### 3.3.2 Potentiel inter-atomique.

Aussi, nous tenons à nous assurer que la force ressentie par un électron dans le solide est raisonnable. Dans un solide réel, les électrons blindent partiellement le champ électrique produit par le noyau. Le blindage des métaux est meilleur que celui des isolants. La théorie de Thomas-Fermi décrit le blindage causé par les électrons dans un métal <sup>[59]</sup>. Suivant cette théorie, le champ électrique d'un noyau de charge ( $Q$ ) s'atténue de sorte que l'énergie potentielle d'un électron dans ce

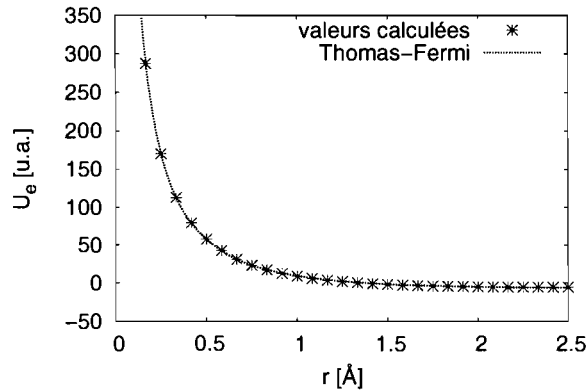


FIG. 3.2 – Énergie potentielle d'un électron ( $U_e$ ), en unité arbitraire ( $u.a.$ ), à une distance  $r$  d'un noyau faisant partie d'un solide. Le résultat de la théorie de Thomas-Fermi est également présenté.

champ ( $U$ ) diffère de celle de Coulomb :

$$U(r) = (-e) \frac{Q}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^{-k_0 r}}{r}. \quad (3.10)$$

où  $1/k_0$  représente la distance sur laquelle la charge se blinde.

La figure 3.2 montre l'énergie potentielle d'un électron à différents rayons autour d'un noyau. La forme de cette énergie indique que la théorie de Thomas-Fermi décrit bien le blindage du champ électrique des noyaux dans le solide. Toutefois, nous trouvons que ce champ exerce une force répulsive plutôt qu'attractive sur les électrons ( $F = -\nabla U$ ), comme si la charge du noyau était négative. La section efficace et le transfert d'énergie d'une particule par le champ électrique d'un noyau ne dépend pas du signe de sa charge. Seule la direction de la vitesse de la particule après la collision change ; l'angle de diffusion est inversé. Par contre, ceci n'affecte pas les résultats recherchés dans la mesure où le transfert d'énergie aux noyaux nous intéresse. D'ailleurs l'angle de diffusion n'affecte pas le parcours moyen d'un électron dans le solide et, par conséquent, l'éjection d'électrons.

Cette vérification nous assure que notre modèle traite bien l'interaction d'une particule chargée. Comme la théorie de Thomas-Fermi s'applique aux métaux, nos observations suggèrent que notre modèle décrit un métal. Toutefois, les semiconducteurs possèdent un certain nombre de charges libres qui permettent aussi un certain blindage.

Dans la mesure où le réseau est CFC et que le blindage est conforme à la théorie de Thomas-Fermi, notre modèle décrit un métal. L'observation concernant la distribution des électrons, laquelle présente les caractéristiques d'un cristal covalent, à moins d'importance. En effet, cette distribution n'affecte pas *a priori* les mécanismes de transfert d'énergie. Donc, malgré une distribution électronique non uniforme, les propriétés électroniques identifiés ici décrivent un métal.

### 3.3.3 Transport d'énergie

Nous vérifions que le transport d'énergie se fait adéquatement dans notre modèle. Conformément à la théorie du transport linéaire, la progression temporelle de l'énergie entre les atomes et les PE suit une courbe exponentielle s'ils sont hors d'équilibre (voir équation 2.8). Les résultats du tableau 3.1 montrent les temps de relaxation pour différentes masses des noyaux. Ces valeurs suggèrent une relation linéaire entre la masse et  $\tau_{ne}$ . D'autre part, la diffusion de chaleur entre les PE se fait aussi selon la théorie du transport linéaire. Ces deux observations indiquent que ce modèle décrit bien un solide réel.

À la figure 3.3, nous montrons différentes trajectoires atomiques dans notre système à différentes températures. Nous remarquons que le réseau se déforme pour  $K_n \sim 0.12$  eV. À partir de cette énergie, les noyaux parcourent une distance inter-atomique. Nous évaluons donc la température de fusion à environ 1400 K ; une valeur raisonnable pour un solide monoatomique conventionnel.

$M$ [u.m.a]	$\tau_{ne}$ [fs]
0.01	13
0.05	63
0.1	107
0.2	210

TAB. 3.1 – Valeurs du temps de relaxation ( $\tau_{ne}$ ) pour différentes masses atomiques ( $M$ ).

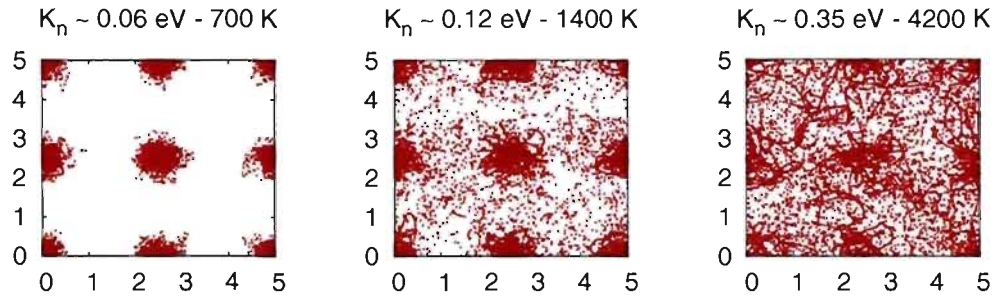


FIG. 3.3 – Projection 2D de la trajectoire des noyaux dans une cellule CFC conventionnelle à trois températures différentes. Les trajectoires couvrent une période de 20 fs à raison d’une image par 0.5 fs.

### 3.4 Dépôt d’énergie

Nous avons mentionné que la charge de l’ion projectile se modifie lors de son passage dans un solide. Pour simplifier notre étude, nous supposons que l’ion incident possède déjà sa charge d’équilibre. Aussi, ce dernier étant lourd et rapide, il ne ralentit pas sur l’échelle de distance simulée (30 Å).

Ces considérations nous permettent de choisir un dépôt d’énergie ( $S_e$ ) invariant sur l’axe  $z$ . En exploitant la symétrie évidente selon l’angle  $\phi$ , il reste à déterminer la dépendance radiale de cette quantité. Cette dépendance se trouve avec le programme CASP présenté à la section 1.1. En observant quelques résultats obtenus avec CASP, nous constatons que la dépendance radiale de  $S_e$  dans la région d’intérêt

( $\rho < 2 \text{ \AA}$ ) se décrit bien par une courbe gaussienne :

$$S_e(\rho) = Q_e \frac{a^3}{4\pi\sigma^2} \exp\left(-\frac{\rho^2}{\sigma^2}\right) \quad (3.11)$$

Considérant que l'ion incident attire les électrons vers le centre, nous donnons une vitesse radiale ( $v_e^\rho$ ) aux électrons :

$$v_e^\rho(\rho) = -\sqrt{S_e(\rho)}\hat{\rho}. \quad (3.12)$$

Ainsi, les électrons possèdent initialement toute l'énergie introduite dans le système.

En étudiant les résultats de CASP pour différents projectiles et différentes cibles, nous trouvons que  $\sigma \sim 1.0 - 1.7 \text{ \AA}$ . La valeur de  $\sigma$  diminue lorsque l'énergie de l'ion incident augmente comme nous en avons discuté à la section 1.1. Nous choisissons  $\sigma = 1.7 \text{ \AA}$  dans ce qui va suivre puisqu'une distribution large perturbe davantage un solide. L'impact de ce paramètre fait l'objet de la section 4.3.2. Aussi, nous étudions les valeurs de  $Q_e$  entre 8 et 2000 eV/Å, ce qui correspond aux valeurs utilisées expérimentalement.

Par ailleurs, pour les régions plus éloignées du centre, la formule classique ( $S_e \sim 1/\rho^2$ ) donnée par Chicoine *et coll.* <sup>[20]</sup> correspond aux résultats de CASP.

## CHAPITRE 4

### RÉSULTATS DES SIMULATIONS

Cette section donne une description et une interprétation des résultats obtenus par la méthode décrite précédemment. Nous décrivons les différents phénomènes causés par le passage de l'ion rapide. Nous voyons comment les propriétés des électrons et des noyaux évoluent en fonction du temps et de la distance au centre. Ensuite, nous analysons ces résultats afin d'identifier les mécanismes de transfert d'énergie à l'œuvre ainsi que les causes des déformations. Comme nous l'avons mentionné plus tôt, nous nous intéressons particulièrement à l'énergie cinétique des noyaux  $K_n$ . Pour terminer, nous analysons l'effet sur les mécanismes de transfert du point d'impact de l'ion et de la largeur du dépôt d'énergie. Nous tirons quelques informations pertinentes de ce dernier exercice.

Nous suivons le mouvement des PE et des noyaux jusqu'à 25 fs après le passage de l'ion rapide. Nous avons vérifié préalablement que la taille du système utilisé ( $50\text{\AA} \times 50\text{\AA} \times 30\text{\AA}$ ) n'influence pas le comportement qualitatif de l'énergie cinétique des noyaux.

#### 4.1 Description

Initialement, toute l'énergie cinétique est distribuée aux électrons sous forme d'une vitesse radiale négative (équation 3.12). Cette vitesse permet aux électrons les plus rapides d'atteindre la frontière du solide où ils sont arrêtés. Ce ralentissement des électrons se produit en début de simulation, avant 0.7 fs. Nous voyons à la figure 4.1 que la température électronique ( $T_e$ ) plafonne à partir d'une certaine valeur de  $Q_e$ . Sans perte, cette relation serait linéaire. Il existe donc une limite d'excitation du système électronique par un ion rapide. À ce sujet, les électrons



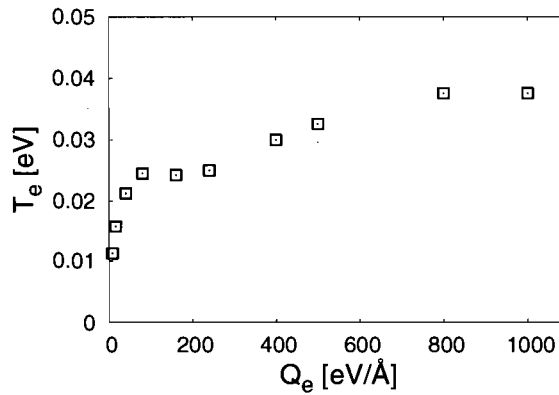


FIG. 4.1 – Température moyenne des électrons ( $T_e$ ) après équilibre thermique ( $t = 1.5$  fs) en fonction de l'énergie par unité de longueur initialement introduite dans le système ( $Q_e$ ).

rapides peuvent évacuer jusqu'à 90 % de l'énergie initialement introduite dans le système.

Après cette évacuation d'énergie ( $t > 0.7$  fs), les électrons ne présentent toujours pas les signes d'un équilibre thermique. Nous voyons à la figure 4.2 que l'énergie cinétique radiale ( $K_e^r$ ) demeure plus importante que la composante angulaire ( $K_e^\phi$ ) ou axiale ( $K_e^z$ ). Nous trouvons une équivalence entre ces trois composantes de l'énergie après un temps de thermalisation  $\tau_t = 1.5$  fs. De plus, nous constatons qu'à partir de ce moment, la vitesse des électrons suit une distribution de Maxwell-Boltzmann. Par contre, l'équilibre thermique atteint à 1.5 fs est local. Un gradient d'énergie persiste au sein du système après 25 fs.

Suite à la perturbation initiale, la vitesse radiale électronique  $v_e^r$  change de signe et oscille avec une certaine période  $\sim 1$  fs. Cette oscillation s'observe partout dans le système. Nous l'associons à la fréquence plasmon des électrons. Cette valeur correspond à la théorie de Drude qui prédit une période de 0.6 fs pour les oscillations électroniques. Le changement de signe fréquent de  $v_e^r$  traduit l'équilibre thermique qui est atteint rapidement.

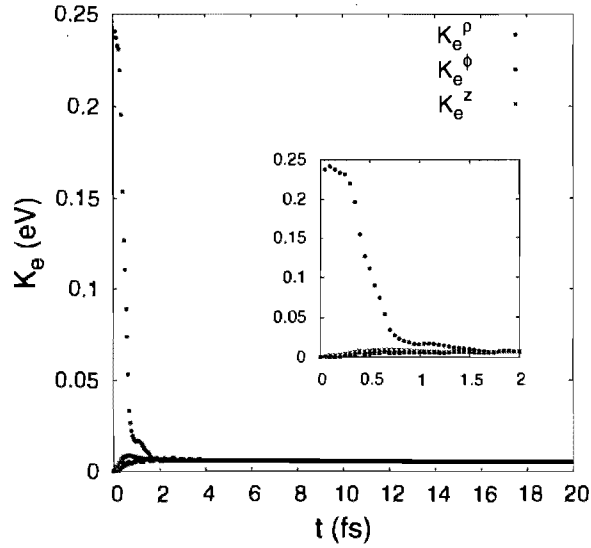


FIG. 4.2 – Composantes de l'énergie cinétique moyenne des électrons ( $K_e^\rho$ ,  $K_e^\phi$  et  $K_e^z$ ). L'encadré présente les résultats pour une petite échelle de temps.

De plus, il existe une corrélation entre la vitesse des PE et celle des noyaux. La figure 4.3 montre que lorsque la vitesse électronique radiale ( $v_e^\rho$ ) passe par un minimum, la vitesse radiale des noyaux ( $v_n^\rho$ ) atteint un maximum. Cette forme de corrélation s'observe moins nettement pour les autres composantes de la vitesse mais demeure présente.

La vitesse des noyaux contient deux types d'oscillations. Une première, rapide, qui fait écho à l'oscillation des électrons, et une seconde, plus lente ( $\sim 20$  fs), qui témoigne d'une vibration des noyaux. De ces observations, nous constatons que notre simulation couvre au moins une période de vibration du réseau. Nous verrons plus loin (figure 4.6) que les composantes de l'énergie des noyaux deviennent équivalentes après 6 fs.

La fuite des électrons rapides laisse une charge nette positive au centre du

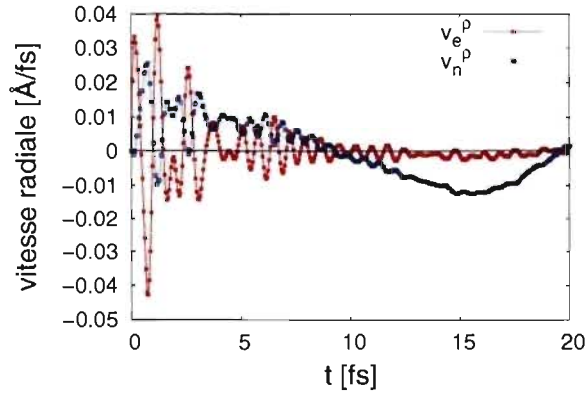


FIG. 4.3 – Vitesse radiale moyenne des noyaux et des PE dans l'ensemble du système suivant une excitation initiale de  $Q_e = 80 \text{ eV/\AA}$ .

système. Nous évaluons la charge en sommant toutes les charges individuellement ( $q_i$ ) dans une région puis en soustrayant la valeur obtenue à l'équilibre. Ainsi, la charge à l'intérieur d'un cylindre de rayon  $\rho$  est :

$$\lambda(\rho, t) = \sum_{R_i(t) < \rho} q_i - \sum_{R_{i0} < \rho} q_i, \quad (4.1)$$

où  $R_i(t)$  est la distance entre le centre et une particule (noyau ou PE) au temps  $t$  et  $R_{i0} = R_i(0)$ .

Le temps de recombinaison de cette charge ( $\tau_r$ ) est un paramètre clé. Il demeure toutefois difficile à déterminer avec la méthode proposée ci-dessus ; une méthode indirecte semble plus efficace. Afin de l'analyser, nous observons l'effet que la charge produit sur le mouvement des noyaux. Nous montrons la vitesse des noyaux dans une coquille cylindrique près du centre et la charge effective sur ces noyaux à la figure 4.4. Cette observation permet d'établir une corrélation entre la charge et la vitesse radiale des noyaux. En effet, lorsque la charge change de signe, nous remarquons que la vitesse radiale atteint un sommet. Nous n'observons cette corrélation que pour 0.5-1 fs, ce qui permet de chiffrer approximativement  $\tau_r$ .

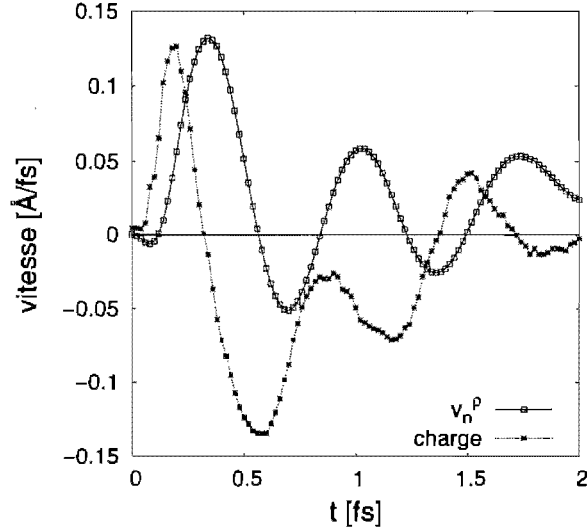


FIG. 4.4 – Vitesse atomique dans la coquille  $5\text{\AA} < \rho < 10\text{\AA}$  et charge au centre ( $\rho \leq 5\text{\AA}$ ) avec une excitation initiale de  $Q_e = 80 \text{ eV/\AA}$ . Les unités correspondant à la charge sont arbitraires.

En réponse à l'excitation électronique, nous observons l'évolution de l'énergie cinétique des noyaux à la figure 4.5. Cette énergie diminue lorsque la distance au centre augmente, conformément avec le gradient d'énergie au niveau électronique. Aussi, chaque courbe de  $K_n$  possède un petit sommet à des moments différents après 10 fs ce qui indique qu'une déformation se transmet vers l'extérieur du système.

L'importance de la composante radiale de l'énergie cinétique des noyaux persiste un certain moment après le passage de l'ion rapide. Comme l'excitation électronique initiale est radiale, une telle constatation au niveau des noyaux ne surprend pas. La fraction de l'énergie cinétique des noyaux qui est radiale ( $K_n^r/K_n$ ) décroît suivant une courbe exponentielle et converge à  $1/3$  (voir figure 4.6). En fait, le principe ici est le même que celui qui nous a permis d'obtenir l'équation 2.8. Le temps caractéristique de cette courbe indique le temps d'équilibre thermique entre les degrés de liberté des noyaux ( $\tau_{nn}$ ). Nous l'évaluons à 6 fs à partir de nos résultats.

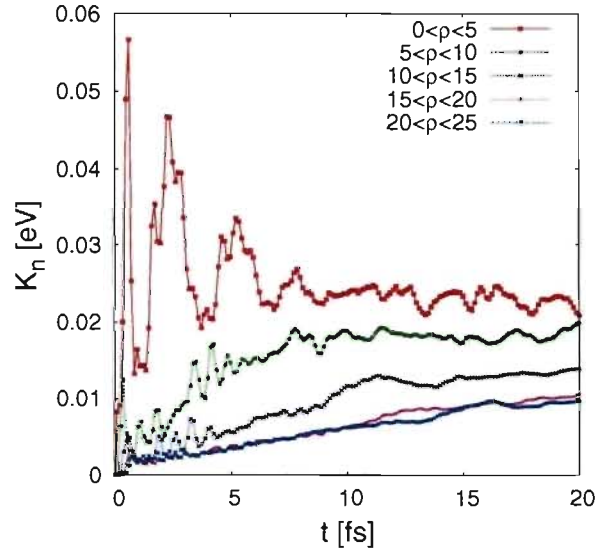


FIG. 4.5 – Énergie cinétique moyenne des noyaux ( $K_n$ ) à différentes distances du centre pour un dépôt d'énergie  $Q_e = 80 \text{ eV}/\text{\AA}$ . Chaque région est une coquille cylindrique de  $5 \text{ \AA}$  d'épaisseur.

Comme attendu, les noyaux se déplacent de leur configuration cristalline CFC représentée par l'ensemble de positions  $\{\vec{r}_{i0}\}$ . Il convient de déterminer le déplacement carré moyen ( $\overline{\Delta r}$ ) des noyaux défini par :

$$\overline{\Delta r}(t) = \left[ \frac{1}{s} \sum_{i=1}^s (\vec{r}_i(t) - \vec{r}_{i0})^2 \right]^{1/2}. \quad (4.2)$$

Dans cette expression,  $\vec{r}_i(t)$  représente la position d'une particule au temps  $t$  et la somme s'effectue sur l'ensemble des particules initialement dans un volume donné. Nous voyons à la figure 4.7 ce déplacement moyen des noyaux en fonction du temps et pour différentes coquilles cylindriques. Pour chaque distance au centre, les courbes possèdent un sommet facilement identifiable qui apparaît à des temps différents. Il se déplace dans le solide avec une vitesse constante d'environ  $2.2 \text{ \AA}/\text{fs}$ , vitesse qui correspond à celle du son. Ce déplacement ne dépasse en aucun cas la distance d'un atome avec son plus proche voisin ( $3.5 \text{ \AA}$ ). Par conséquent, aucune

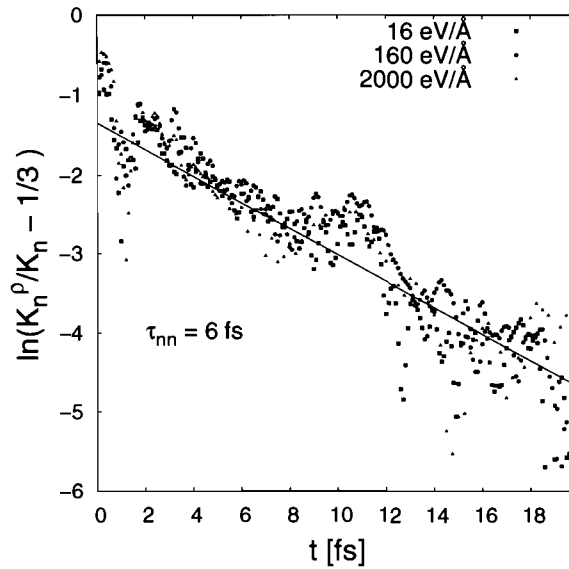


FIG. 4.6 – Représentation linéarisée de la fraction de l'énergie cinétique des noyaux qui est radiale ( $K_n^p/K_n$ ) pour différentes énergies en fonction du temps ( $t$ ). La droite représente une régression linéaire effectuée sur nos résultats.

déformation notable de la structure cristalline n'a lieu.

Une forme semblable s'observe en regardant la vitesse radiale et la composante radiale du tenseur de pression  $P_\rho = (2/3)nT_n^p$ . Il s'agit de la seule composante non constante du tenseur de pression, défini par  $P_{ij} = n \langle v_i v_j \rangle$  où  $n$  est la densité de noyaux. Nous concluons de ces observations qu'une onde de pression se propage du centre vers l'extérieur en conséquence du passage d'un ion rapide.

Le sommet du déplacement des noyaux associé à l'onde de pression n'entraîne pas un déplacement durable des noyaux. D'autre part, l'énergie atteinte par les noyaux ne permet pas une fusion du solide simulé. Il demeure possible que l'onde de pression résulte en des modifications structurales durables dans le cas où la fusion se produit.

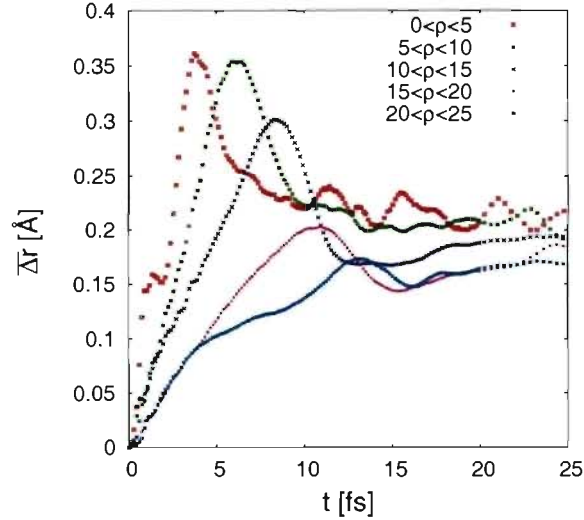


FIG. 4.7 – Déplacement moyen des noyaux calculé avec l'équation 4.2 pour différentes coquilles cylindriques dans le solide. L'énergie par unité de longueur introduite est  $Q_e = 80 \text{ eV}/\text{Å}$ .

La vitesse de l'onde de pression ne change pas si l'énergie initialement déposée ( $Q_e$ ) augmente. Par contre, l'amplitude semble légèrement affectée. Par exemple, lorsqu'on regarde le cas où  $Q_e = 2000 \text{ eV}/\text{Å}$ , le pic correspondant à la région entre 5 et 10 Å a une hauteur de 0.2 Å plutôt que 0.1 Å pour la situation présentée à la figure 4.7. Aussi, la valeur convergée du déplacement carré moyen change ( $\sim 0.28 \text{ Å}$  pour  $Q_e = 2000 \text{ eV}/\text{Å}$ ). Pour terminer la discussion sur ce déplacement, il convient de mentionner qu'aucune structure similaire n'apparaît au niveau électronique.

Pour terminer cette description, nous regardons le comportement de l'énergie potentielle dans l'ensemble du système à la figure 4.8. L'énergie potentielle totale change et atteint un équilibre rapidement ( $\sim 2 \text{ fs}$ ). Ce temps fixe la borne supérieure sur laquelle un transfert d'énergie d'origine coulombienne peut s'effectuer. L'oscillation rapide de  $V_{ee}$  et  $V_{ne}$  correspond à l'oscillation des vitesses radiales présentée à la figure 4.3.

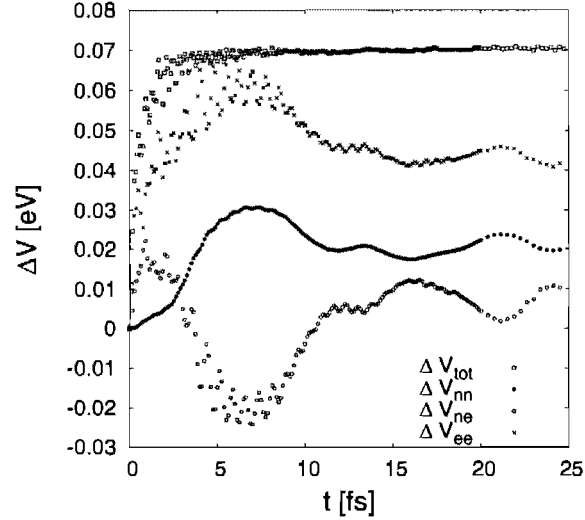


FIG. 4.8 – Composantes de l'énergie potentielle dans l'ensemble du solide après un dépôt d'énergie  $Q_e = 80 \text{ eV/\AA}$ .

## 4.2 Mécanismes de transfert d'énergie

Il semble qu'aucun des mécanismes de transfert d'énergie présentés n'explique à lui seul les résultats obtenus. De nos observations de  $K_n(t)$  présentées à la figure 4.9, nous identifions trois étapes distinctes de transfert d'énergie.

Premièrement, les électrons se dirigent vers le centre sous l'influence de l'ion rapide incident. Par conséquent, nous y retrouvons une charge négative pour environ 0.2 fs et les noyaux y sont attirés. La vitesse radiale acquise constitue le premier gain d'énergie cinétique des noyaux.

Deuxièmement, les électrons poursuivent leur évolution et s'éloignent du centre, y laissant ainsi une charge positive. Cette charge se blinde assez rapidement (0.5 - 1 fs) mais les noyaux en ressentent tout de même l'effet répulsif. Ainsi leur vitesse radiale augmente et devient positive. Cette étape termine le chauffage de Coulomb qui explique le gain d'énergie cinétique des noyaux au début du processus.



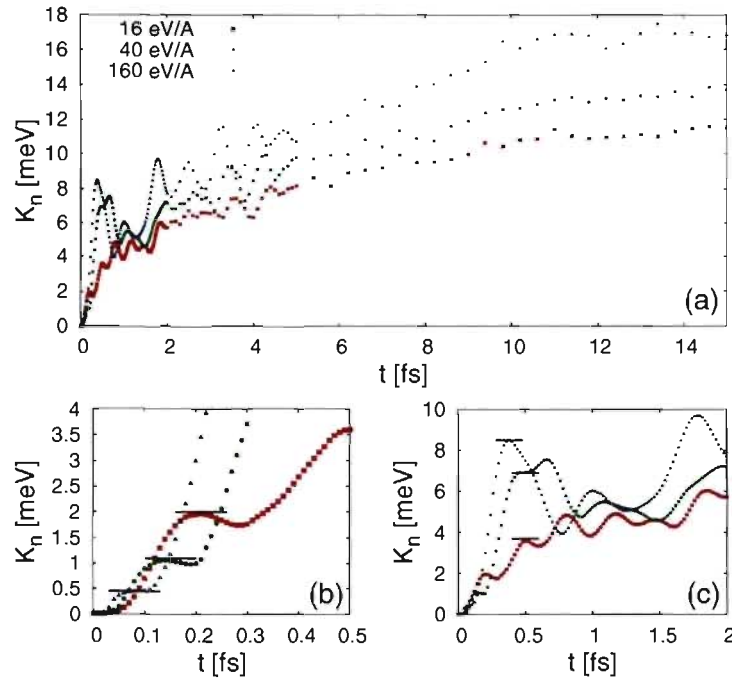


FIG. 4.9 – Énergie cinétique des noyaux ( $K_n(t)$ ) pour plusieurs niveaux d'excitation dans un cylindre de 15 Å de rayon. Les lignes horizontales indiquent la fin d'une phase de gain d'énergie.

Troisièmement, les électrons se thermalisent et atteignent un équilibre thermique local. Leur vitesse radiale ne domine plus les autres composantes et la charge centrale disparaît. À ce moment, les noyaux gagnent de l'énergie par un processus thermique. Les collisions entre les électrons et les noyaux expliquent la croissance de  $K_n$ . Les noyaux ne montrent plus aucune trace du chauffage de Coulomb.

L'onde de pression n'entraîne aucun gain d'énergie ou de déplacements durables des noyaux. Elle explique une certaine propagation d'énergie entre les noyaux. Par conséquent, sa présence ne permet pas d'expliquer les mécanismes de transfert d'énergie entre les électrons et les noyaux. L'onde de pression pourrait être un mécanisme conduisant aux modifications structurales mais rien ne permet de l'af-

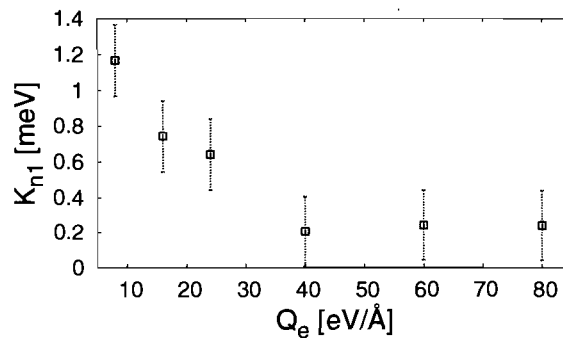


FIG. 4.10 – Relation entre l'énergie cinétique des noyaux au premier plateau ( $K_{n1}$ ) et l'excitation initiale des électrons par unité de longueur ( $Q_e$ ).

firmer à ce stade.

Nous verrons en détail les différentes étapes de croissance d'énergie dans les sections qui suivent. Nous y approfondissons notre interprétation des courbes précédemment obtenues et nous y indiquons quelques nouvelles corrélations pour appuyer nos conclusions.

#### 4.2.1 Attraction de Coulomb

Nous remarquons à partir des composantes de la vitesse des noyaux que la charge négative cause l'augmentation initiale de  $K_n(t)$ . Cette augmentation se trouve majoritairement au centre et nous avons montré à la figure 4.4 la corrélation entre la charge et la vitesse radiale des noyaux à cet endroit. La charge négative explique l'attraction des noyaux vers le centre et leur vitesse radiale négative. Lorsque la charge change de signe, la vitesse augmente pour passer à la seconde étape de gain d'énergie cinétique. Nous associons la fin de cette étape aux plateaux identifiés par des lignes horizontales à la partie (b) de la figure 4.9.

Par ailleurs, nous notons à la même figure que la première étape perd de l'importance lorsque nous augmentons l'énergie déposée. En effet, lorsque la vitesse

des électrons augmente, ils fuient le centre plus rapidement et la charge négative agit moins longtemps. Selon ce raisonnement, l'énergie du premier plateau ( $K_{n1}$ ) décroît lorsque  $Q_e$  augmente. Les résultats présentés à la figure 4.10 mettent en évidence cette relation. La valeur des plateaux d'énergie est déterminée visuellement avec une incertitude évaluée approximativement selon la difficulté à localiser les plateaux d'énergie. Nous confirmons ainsi notre explication de la première phase de croissance.

### 4.2.2 Répulsion de Coulomb

À cette étape, les électrons commencent à fuir le centre. La corrélation entre la charge et la vitesse radiale des noyaux demeurent très bonne mais cette fois nous retrouvons une charge positive. Cette charge accélère les noyaux jusqu'à une énergie  $K_{n2}$ . Nous identifions ce plateau d'énergie par une ligne horizontale à la partie (c) de la figure 4.9.

Comme la force agissant sur les noyaux dépend de la densité de charges au centre ( $\lambda$ ), la valeur du second plateau d'énergie devrait en dépendre aussi. L'ionisation au centre du solide dépend du nombre de PE qui en est éjecté. Or, ce nombre dépend linéairement de la quantité de PE arrêtés à la frontière de notre système ( $N_s$ ). Par conséquent, cette phase de croissance impose une relation linéaire entre  $K_{n2}$  et  $N_s$ . Nous mettons en évidence cette relation linéaire à la figure 4.11 où les points sont obtenus avec des simulations de dépôts d'énergie différents.

Par ailleurs, nous remarquons que les deux premières phases n'introduisent aucune déformation notable du réseau cristallin. Ce résultat est d'autant plus vrai que la masse des noyaux est 100 fois plus faible que celle de l'hydrogène. Cette faible masse augmente considérablement le déplacement. Pour cette raison, nous préférons associer ces étapes à un chauffage de Coulomb plutôt qu'à une explosion. Le chauffage de Coulomb regroupe l'attraction de Coulomb et la répulsion de Coulomb qui la suit.

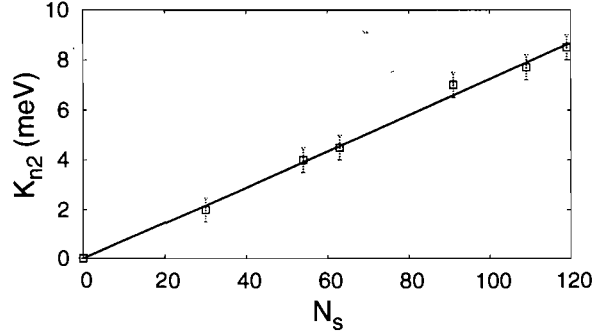


FIG. 4.11 – Relation entre l'énergie du deuxième plateau ( $K_{n2}$ ) et le nombre de PE éjectés ( $N_s$ ) pour des simulations avec les dépôts d'énergie différents. La droite met en évidence la relation linéaire attendue.

### 4.2.3 Pointe thermique

Après le chauffage de Coulomb, les électrons transfèrent de l'énergie par collisions aléatoires. À ce moment, toutes les propriétés du système indiquent un équilibre thermique local. Pour identifier correctement cette phase dans la région centrale de notre solide, nous devons considérer que la température électronique varie dans cette région, tout comme l'énergie cinétique totale. Nous considérons cette variation en normalisant l'énergie cinétique des noyaux  $K_n$  par l'énergie cinétique totale  $K$ . Si la diffusion thermique des noyaux est négligeable, nous trouvons que  $K_n/K$  doit suivre une courbe exponentielle de la même forme que l'équation 2.8. Cette quantité permet une linéarisation.

Après un temps suffisamment long,  $K_n/K$  converge vers sa valeur d'équilibre. Comme nous utilisons  $N$  PE par noyau, l'énergie cinétique totale se répartit sur  $N + 1$  particules. Par conséquent,  $K_n/K$  converge vers  $1/(N + 1)$  lorsque l'équilibre est atteint. Nous avons fixé  $N = 4$  donc  $K_n/K$  converge vers  $1/5 = 0.2$ .

Nous comparons la courbe exponentielle de l'équation 2.8 avec nos résultats pour  $K_n(t)$  à la figure 4.12. L'optimisation de la courbe théorique débute à 2 fs et

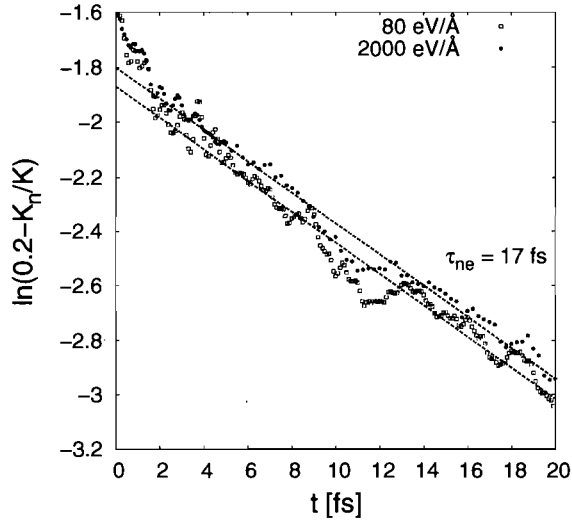


FIG. 4.12 – Droites d'évolution thermique qui représentent l'évolution temporelle de l'énergie cinétique des noyaux ( $K_n$ ).

nous considérons une région cylindrique de 15 Å autour du centre. Il s'agit d'une taille raisonnable pour une déformation dans un matériau. Nous trouvons ainsi l'évolution de l'énergie dans la région d'intérêt.

L'accord des courbes théoriques avec  $K_n/K$  est excellent à partir de 2 fs, moment auquel le chauffage de Coulomb se termine. Avant ce temps,  $K_n/K$  croît plus rapidement que la prédiction de la théorie thermique. Ce temps coïncide avec la convergence de l'énergie potentielle et, du même coup, avec la limite supérieure du temps alloué pour les processus coulombiens. Considérant le nombre de noyaux dans la région cylindrique, la théorie des fluctuations explique la variance entre les résultats et les courbes théoriques (voir <sup>[60]</sup> pour les détails).

Le temps de relaxation  $\tau_{ne} = 17$  fs (voir figure 4.12) ne correspond pas exactement à la valeur théorique (13 fs au tableau 3.1) pour la région cylindrique de 15 Å de rayon. Les processus de diffusion ont pour effet de ralentir le gain d'énergie

en dissipant l'énergie. Par conséquent, il est normal que le temps de relaxation soit supérieur à la valeur théorique. En regardant des régions plus restreintes, nous constatons que le temps  $\tau_{ne}$  augmente, ce qui confirme notre interprétation.

En somme, les mécanismes de transfert sont clairement identifiés ici. Un processus thermique cause le gain d'énergie et celui-ci débute par un chauffage coulombien. La transition entre les deux régimes de chauffage se produit environ 2 fs après le passage de l'ion rapide.

#### 4.2.4 Remarques générales

Les mécanismes de transfert d'énergie sont clairement identifiés mais n'expliquent pas directement les modifications structurales. Étant donné la limite d'excitation des électrons, décrite à la figure 4.1, nous n'avons pu observer de déformations structurales permanentes et ce, peu importent les valeurs de  $Q_e$  choisies. Nous avons montré à la figure 4.7 que le déplacement maximum des noyaux coïncide avec l'onde de pression et que ce dernier a un impact important. Par conséquent, les modifications structurales s'expliquent en tenant compte de l'apport d'énergie décrit ci-dessus et de l'onde de pression. Aucun des résultats précédents n'indique que les modifications structurales permanentes nécessitent cette onde. Par contre, lorsque de telles modifications apparaissent, il n'est pas exclu que l'onde de pression les explique. À ce stade, les causes de l'onde de pression demeurent inconnues ; nous discutons son origine à la section suivante.

Comme la vitesse des noyaux ne change pas de signe simultanément avec celle des électrons, l'équation 2.10 ne se vérifie pas. La friction du fluide d'électrons n'explique pas le transfert d'énergie.

Nous avons utilisé une masse de 0.01 u.m.a. pour les noyaux, ce qui est évidemment en deçà des valeurs usuelles. Ce choix n'affecte pas les résultats importants trouvés ci-dessus : le moment de la transition entre les deux phases d'échange

d'énergie ne dépend pas significativement de la masse des noyaux, il est davantage affecté par la dynamique des PE. D'ailleurs, l'importance relative des deux phénomènes ne dépend pas de ce choix du fait qu'en augmentant la masse, nous diminuons de la même façon l'importance des deux phases de croissance d'énergie. Par conséquent, la masse utilisée ici n'a pas d'impact sur le comportement qualitatif du système.

### 4.3 Impact des paramètres variables

Afin d'approfondir notre étude, nous analysons l'impact sur nos résultats de certains paramètres. Aussi, ces variations permettent d'obtenir des informations supplémentaires notamment concernant l'origine de l'onde de pression.

#### 4.3.1 Point d'impact du projectile

Nous avons montré à la figure 3.1 que la distribution des électrons n'est pas uniforme. Par conséquent, l'endroit où l'ion projectile frappe la cible peut influencer la manière dont l'énergie se distribue aux électrons. Cette modification peut avoir une incidence sur l'énergie cinétique des noyaux. Nous analysons les différents points d'impact illustrés à la figure 4.13. Nous utilisons le point #1 dans tous les calculs précédents.

Le point d'impact de l'ion dans le réseau n'affecte pas l'éjection d'énergie aux frontières. D'ailleurs, cette variation n'a pratiquement aucune influence sur la dynamique des noyaux. Nous présentons l'énergie cinétique des noyaux obtenue avec les points d'impact #1, #3 et #4 à la figure 4.14. Aucune déviation notable n'apparaît entre ces courbes. Par conséquent, le point d'impact de l'ion n'a que peu d'effet sur le résultat des simulations et il n'affecte pas les mécanismes de transfert d'énergie en jeu.

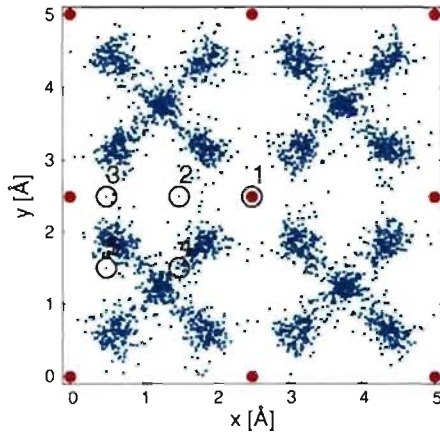


FIG. 4.13 – Reproduction de la densité électronique présentée à la figure 3.1 avec les points d’impact localisés par des "o" et identifiés avec un numéro.

### 4.3.2 Largeur de l’excitation initiale

La largeur du dépôt d’énergie dépend du paramètre  $\sigma$  dans l’équation 3.11. Pour identifier l’impact de ce paramètre, nous effectuons des simulations avec  $\sigma$  variant de 1 à 5 Å. Les valeurs supérieures à 1.7 Å correspondent à des ions de faible énergie. Nous traitons ces cas de la même façon afin d’obtenir de l’information supplémentaire sur notre système. Dans ce qui suit, nous commençons par décrire l’impact de  $\sigma$  sur nos résultats. Ensuite, nous identifions l’origine de l’onde de pression et, pour finir, nous présentons une estimation du temps de blindage  $\tau_r$ .

Nous étudions d’abord l’évacuation d’énergie qui résulte de la simulation avec  $\sigma = 3$  Å à la figure 4.15. Nous trouvons que l’évacuation d’énergie diminue légèrement par rapport aux largeurs de dépôt adéquates. Malgré ce fait, plus d’électrons rapides s’arrêtent à la frontière.

Afin d’évaluer les modifications aux mécanismes de transfert d’énergie, nous comparons deux simulations avec  $Q_e = 80$  eV/Å et  $Q_e = 2000$  eV/Å pour des valeurs de  $\sigma$  différentes. Nous trouvons à la figure 4.16 que le processus coulombien



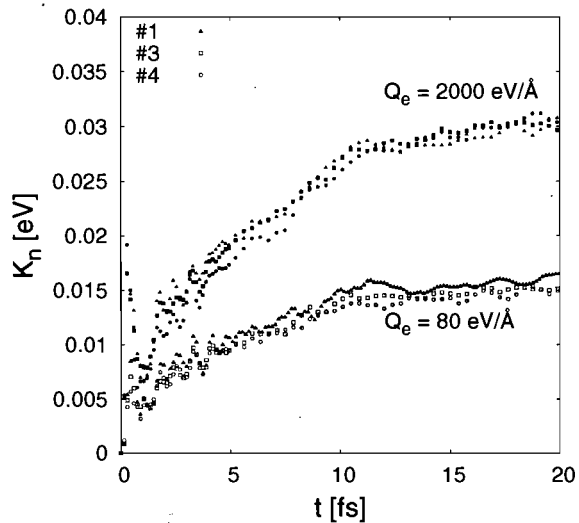


FIG. 4.14 – Énergie cinétique des noyaux pour différents points d’impact en fonction du temps ( $t$ ). Les symboles vides correspondent à une excitation initiale  $Q_e = 80$  eV/Å et les symboles pleins correspondent à  $Q_e = 2000$  eV/Å.

domine lorsque la largeur de la distribution d’énergie augmente. En effet, le gain d’énergie rapide suivant immédiatement le passage de l’ion devient plus important. Ce résultat est valable pour les deux niveaux d’excitation initiale. Le mouvement des noyaux vers le centre cause cette augmentation de l’énergie. Par conséquent, la première phase du chauffage de Coulomb gagne de l’importance au détriment de la seconde. La charge positive qui se forme au centre ne fait que ralentir le mouvement des noyaux vers le centre.

Les données obtenues avec  $Q_e = 2000$  eV/Å et  $\sigma = 3$  Å montrent un autre sommet à l’énergie cinétique des noyaux autour de 3 fs, causé cette fois par les noyaux fuyant le centre. Vers 8 fs, cette quantité suit une évolution purement thermique ; ce temps correspond à la sortie de l’onde de pression de la région considérée ( $\rho < 15$  Å).

Aussi, les valeurs élevées de  $\sigma$  permettent d’établir plus facilement une corréla-

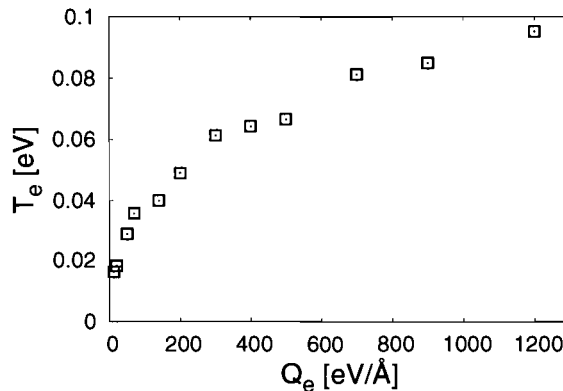


FIG. 4.15 – Température moyenne des électrons ( $T_e$ ) après l'évacuation d'énergie aux frontières ( $t = 2.0$  fs) en fonction de l'énergie par unité de longueur initialement introduite  $Q_e$ .

tion entre le chauffage de Coulomb et l'onde de pression. Nous trouvons que l'énergie apportée par le chauffage de Coulomb, déterminée par le premier maximum de l'énergie cinétique des noyaux, est corrélée linéairement avec l'énergie de l'onde de pression. L'énergie thermique en fin de simulation ne fournit pas une telle corrélation. Nous trouvons que pour une même énergie thermique, deux ondes d'énergies différentes sont possibles. Par conséquent, le chauffage de Coulomb suivant le passage de l'ion cause l'onde de pression.

Par ailleurs, l'augmentation de l'importance de la première phase de croissance nous permet de mieux l'analyser. En effet, nous pouvons faire correspondre la courbe théorique de l'énergie cinétique des noyaux valide pour le chauffage de Coulomb (voir équation 2.4). Bien que les correspondances obtenues à la figure 4.17 soient très limitées, elles nous permettent d'évaluer à 0.1 fs l'ordre de grandeur du temps d'écrantage ( $\tau_r$ ). Selon la théorie de Drude, le temps de relaxation d'un métal est de l'ordre de 1 fs <sup>[59]</sup>. La valeur que nous trouvons correspond bien à un métal.

En somme, l'augmentation de  $\sigma$  favorise la croissance rapide de l'énergie en

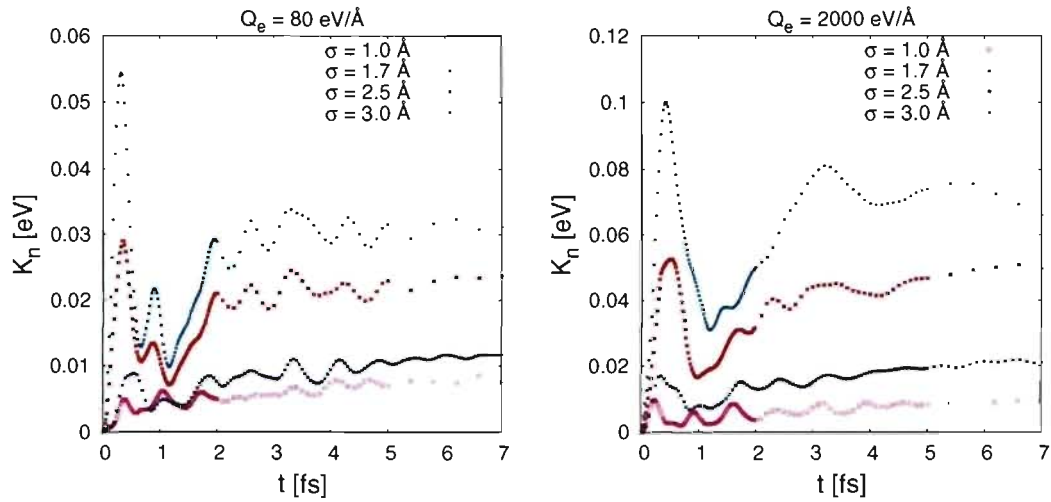


FIG. 4.16 – Énergie cinétique des noyaux ( $K_n$ ) pour différentes largeurs de dépôt d'énergie  $\sigma$ . Deux excitations initiales ( $Q_e$ ) sont présentées et une région cylindrique de 15 Å de rayon est considérée.

début de simulation associée au chauffage de Coulomb. Le nombre de PE éjectés augmente du fait qu'une plus grande charge se retrouve au centre. En parallèle, l'onde de pression, causée par le chauffage de Coulomb, gagne de l'importance et favorise l'évacuation d'énergie de la région centrale. Bien que le gain d'énergie cinétique en début de simulation soit plus imposant, l'onde de pression qui se forme évacue une fraction importante de l'énergie ainsi gagnée. Les mécanismes permettant le gain d'énergie cinétique des noyaux dans la région d'intérêt changent donc relativement peu en augmentant la largeur du dépôt d'énergie.

Lors de l'ablation laser d'agrégats d'atomes, les photons excitent les électrons sur une gamme d'énergies restreintes. Dans ce cas, l'explosion de Coulomb domine selon plusieurs sources. D'après l'équation 3.11, lorsque la largeur du dépôt augmente, l'énergie maximale atteignable diminue de pair avec la gamme d'énergies d'excitation. Nos résultats montrent que lorsque cette gamme d'énergies diminue, l'explosion de Coulomb gagne en importance. Ce point est cohérent avec les

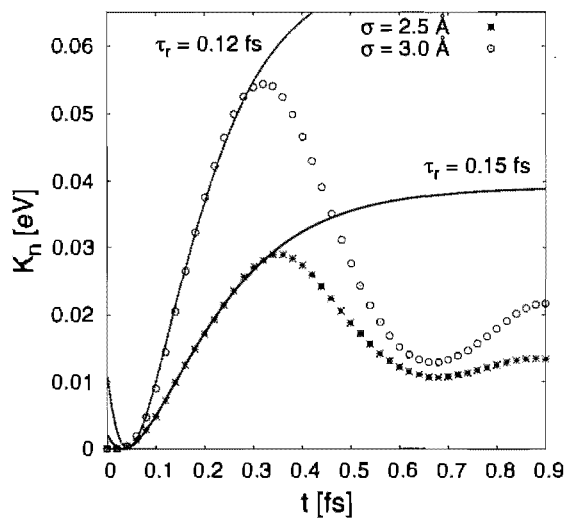


FIG. 4.17 – Énergie cinétique des noyaux en fonction du temps ( $t$ ) accompagnées de courbes représentant un chauffage de Coulomb. Deux largeurs de dépôt d'énergie  $\sigma$  sont présentées. Nous considérons une région cylindrique de  $15 \text{ \AA}$  de rayon et une excitation électronique initiale de  $Q_e = 80 \text{ eV/\AA}$ .

résultats bien acceptés sur l'ablation laser.

## CONCLUSION

Nous avons étudié le mouvement des noyaux et des électrons suivant le passage d'un ion lourd et rapide avec un modèle de dynamique moléculaire décrivant leur trajectoire.

Le modèle reproduit correctement les aspects physiques pertinents au problème. Le choix du potentiel noyau-PE permet une distribution des pseudo-électrons adéquate pour un semiconducteur. Les échanges d'énergie entre les différentes particules s'effectuent conformément avec la théorie du transport linéaire. Contrairement aux autres modèles suggérés pour étudier le passage d'un ion rapide dans la matière, le nôtre ne fait aucune hypothèse sur le mécanisme de transfert d'énergie. Par ailleurs, il traite correctement la dynamique des électrons et permet d'obtenir des informations inaccessibles expérimentalement. En somme, il fournit une description qualitative adéquate d'un solide réel.

Nous déterminons les mécanismes de transfert d'énergie en étudiant principalement l'évolution temporelle de l'énergie cinétique des noyaux. Nous identifions deux mécanismes de transfert d'énergie des électrons vers les noyaux. Le chauffage de Coulomb permet initialement une croissance rapide de l'énergie cinétique des noyaux et un processus thermique suit cette croissance. Pour appuyer ces conclusions, nous montrons que la corrélation entre la charge et la vitesse des noyaux est forte en début de simulation. Aussi, l'énergie potentielle varie beaucoup à ce moment. Ensuite, les propriétés hydrodynamiques des noyaux et des électrons témoignent d'un équilibre local, ce qui confirme la présence d'un processus thermique.

Le processus coulombien engendre une onde de pression qui coïncide avec le déplacement maximum des noyaux. Cette onde n'engendre toutefois aucun déplacement permanent des noyaux dans nos simulations. Il n'y a donc aucune évidence

ici qu'il s'agisse d'un phénomène pertinent pour expliquer les modifications structurales. L'étude d'un solide particulier serait nécessaire pour répondre à cette question.

Faute d'études théoriques pertinentes sur le sujet, nous ne pouvons comparer les résultats présentés dans ce mémoire avec d'autres sur le passage d'un ion dans la matière. Toutefois, nos résultats indiquent que le modèle de la pointe thermique est adéquat et ne contredisent donc pas cette théorie largement acceptée. Aussi, nous ne trouvons aucune contradiction entre nos résultats et les constatations généralement acceptées sur l'ablation laser.

Notre modèle représente correctement un matériau générique mais il pourrait être adapté pour décrire un solide particulier. Les forces utilisées ici pourraient être modifiées afin d'obtenir un potentiel inter-atomique plus proche d'un isolant ou d'un semiconducteur particulier. Aussi, il n'est pas exclu de changer ces forces afin d'obtenir d'autres propriétés électroniques spécifiques au solide que l'on souhaiterait reproduire.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] M. ISHIMARU, I.-T. BAE, A. HIRATA et Y. HIROTSU : *Volume swelling of amorphous SiC during ion-beam irradiation. Phys. Rev. B*, **72**:024116, 2005.
- [2] A. DUNLOP, G. JASKIEROWICZ et D. DELLA-NEGRA : *Latent track formation in silicon irradiated by 30 MeV fullerenes. Nucl. Instr. Meth. B*, **146**:302, 1998.
- [3] J. F. ZIEGLER : *Handbook of range, distributions for energetics ions in all elements. Pergamon Press*, 1980.
- [4] J. F. ZIEGLER : *The stopping and range of ions in solids. Pergamon Press*, 1985.
- [5] A. KAMAROU, W. WESCH, E. WENDLER, A. UNDISZ et A. RETTENMAYR : *Swift heavy ion irradiation of InP : Thermal spike modeling of track formation. Phys. Rev. B*, **73**:184107, 2006.
- [6] A. I. RYAZANOV, A. E. VOLKOV et S. KLAUMÜNZER : *Model of track formation. Phys. Rev. B*, **51**:12107, 1995.
- [7] G. SCHIWIEZ, K. CZERSKI, M. ROTH, F. STAUFENBIEL et P. L. GRANDE : *Femtosecond dynamics - snapshots of the early ion-track evolution. Nucl. Instr. Meth. B*, **226**:683, 2004.
- [8] Y. SATO, A. KITAGAWA, M. MURAMATSU, T. MUDAKAMI, S. YAMADA, C. KOBAYASHI, Y. KAGEYAMA, T. MIYOSHI, H. OGAWA, H. NAKABUSHI, T. FUJIMOTO, T. MIYATA et Y. SANO : *Charge fraction of 6.0 MeV/n heavy ions with a carbon foil : Dependence on the foil thickness and projectile atomic number. Nucl. Instr. Meth. B*, **201**:571, 2003.
- [9] N. BOHR : *Scattering and stopping of fission fragments. Phys. Rev.*, **58**:654, 1940.
- [10] N. BOHR : *Velocity-range relation for fission fragments. Phys. Rev.*, **59**:270, 1941.
- [11] G. SCHIWIEZ et P. L. GRANDE : *Improved charge-state formulas. Nucl. Instr. Meth. B*, **175-177**:125, 2001.

- [12] M. SELIGER, C. O. REINHOLD, T. MINAMI et J. BURGDÖRFER : *Nonunitary quantum trajectory Monte Carlo method for open quantum systems. Phys. Rev. A*, **71**:062901, 2005.
- [13] M. SELIGER, C. O. REINHOLD, T. MINAMI, D. R. SCHULTZ, M. S. PINDZOLA, S. J. BURGDÖRFER, E. LAMOUR, J.-P. ROZET et D. VERNHET : *Electron capture and electron transport by fast ions penetrating solids : An open quantum system approach with sources and sinks. Phys. Rev. A*, **75**:032714, 2007.
- [14] R. L. FLEISCHER : *Nuclear tracks in solids : principles and applications. University of california press*, 1975.
- [15] G. SCHIWETZ, D. SCHNEIDER, J. P. BIRSACK, N. STOLTERFOHT, D. FINK, a. MATTIS, b. SKOGVALL et H. ALTEVOGT : *Cascade-Indices Asymmetry in Auger-Electron Emission Following Fast Ion-Solid Interactions. Phys. Rev. Lett.*, **61**:2677, 1988.
- [16] G. SCHIWETZ et G. XIAO : *Electron ejection from solids induced by fast highly-charged ions. Nucl. Instr. Meth. B*, **107**:113, 1996.
- [17] M. TOULEMONDE, W. ASSMANN, C. TRAUTMANN, F. GRÜNER, H. D. MIESKES, H. KUCAL et Z. G. WANG : *Electronic sputtering of metals and insulators by swift heavy ions. Nucl. Instr. Meth. B*, **212**:346, 2003.
- [18] A. HEDLER, S. L. KLAUMÜNZER et W. WESCH : *Amorphous silicon exhibits a glass transition. Nature Mater.*, **3**:804, 2004.
- [19] A. HEDLER, S. L. KLAUMÜNZER et W. WESCH : *Swift heavy ion irradiation of amorphous silicon. Nucl. Instr. Meth. B*, **242**:85, 2006.
- [20] M. CHICOINE, S. ROORDA, L. CLICHE et R. A. MASUT : *Directional effects during ion implantation : Lateral mass transport and anisotropic growth. Phys. Rev. B*, **56**:1551, 1997.
- [21] R. L. FLEISCHER, P. B. PRICE et R. M. WALKER : *Ion explosion spike mechanism for formation of charged-particle tracks in solids. J.Appl.Phys.*, **36**:3645, 1965.



- [22] V. MIJOULE, L. J. LEWIS et M. MEUNIER : *Coulomb explosion induced by intense ultrashort laser pulses in two-dimensional clusters*. *Phys. Rev. A*, **73**:033203, 2006.
- [23] K. ISHIKAWA et T. BLENISKI : *Explosion dynamics of rare-gas cluster in an intense laser field*. *Phys. Rev. A*, **62**:063204, 2000.
- [24] W. G. ROETERDINK, L. B. F. JUURLINK, O. P. H. VAUGHAN, J. DURA DIEZ, M. BONN et A. W. KLEYN : *Coulomb explosion in femtosecond laser ablation of Si(111)*. *Appl. Phys. Lett.*, **82**:4190, 2003.
- [25] R. STOIAN, A. ROSENFELD, D. ASHKENASI, I. V. HERTEL, N. M. BULGAKOVA et E. E. B. CAMPBELL : *Surface Charging and impulsive ion ejection during ultrashort pulsed laser ablation*. *Phys. Rev. Lett.*, **88**:097603, 2002.
- [26] E. M. BRINGA et R. E. JOHNSON : *Coulomb explosion and thermal spikes*. *Phys. Rev. Lett.*, **88**:165501, 2002.
- [27] Y. N. YAVLINSKII : *Coulomb repulsion of lattice ions under swift heavy ion irradiation*. *Nucl. Instr. Meth. B*, **245**:114, 2006.
- [28] E. M. BRINGA et R. E. JOHNSON : *Molecular dynamics study of non-equilibrium energy transport from a cylindrical track I. Test of 'spike' models*. *Nucl. Instr. Meth. B*, **143**:513, 1998.
- [29] M. TOULEMONDE, C. DUFOUR et E. PAUMIER : *Transient thermal process after a high-energy heavy-ion irradiation of amorphous metals and semiconductors*. *Phys. Rev. B*, **46**:14362, 1992.
- [30] I. ABRIL, J. C. MORENO-MARÍN, J. M. FERNÁNDEZ-VAREA, C. D. DENTON, S. HEREDIA-AVALOS et R. GARCIA-MOLINA : *Calculation of the energy loss of swift H and He ions in Ag using the dielectric formalism : The role of inner-shell ionization*. *Nucl. Instr. Meth. B*, **256**:172, 2007.
- [31] P. L. GRANDE et G. SHIWETZ : *Nonperturbative stopping-power calculation for bare and neutral hydrogen incident on He*. *Phys. Rev. A*, **47**:1119, 1993.

- [32] G. SCHIWIEZ : *Coupled-channel calculation of stopping powers for intermediate-energy light ions penetrating atomic H and He targets. Phys. Rev. A*, **42**:296, 1990.
- [33] P. SIGMUND et A. SCHINNER : *Binary theory of electronic stopping. Nucl. Instr. Meth. B*, **195**:64, 2002.
- [34] P. L. GRANDE et G. SCHIWIEZ : *The unitary convolution approximation for heavy ions. Nucl. Instr. Meth. B*, **195**:55, 2002.
- [35] G. MAYNARD, G. ZWICKNAGEL, C. DEUTSCH et K. KATSONIS : *Diffusion-transport cross section and stopping power of swift heavy ions. Phys. Rev. A*, **63**:052903, 2001.
- [36] N. R. ARISTA : *Energy loss of ions in solids : Non-linear calculations for slow and swift ions. Nucl. Instr. Meth. B*, **195**:91, 2002.
- [37] F. GRÜNER et F. BELL : *First-principles-simulation of both charge state and stopping power of swift heavy ions in solids. Nucl. Instr. Meth. B*, **245**:15, 2006.
- [38] P. L. GRANDE et G. SCHIWIEZ : *Impact-parameter dependance of the electronic energy loss of fast ions. Phys. Rev. A*, **58**:3796, 1998.
- [39] A. MEFTAH, F. BRISARD, J. M. COSTANTINI, M. HAGE-ALI, J. P. STOQUERT, F. STUDER et M. TOULEMONDE : *Swift heavy ions in magnetic insulators : A damage-cross-section velocity effect. Phys. Rev. B*, **48**:920, 1993.
- [40] G. SCHIWIEZ, E. LUDERER, G. XIAO et P. L. GRANDE : *Energy dissipation of fast heavy ions in matter. Nucl. Instr. Meth. B*, **175**:1, 2001.
- [41] H. ROTHARD, R. MOSHAMMER, J. ULLRICH, H. KOLLMUS, R. MANN, S. HAGMANN et T. J. M. ZOUROS : *Differential multi-electron emission induced by swift highly charged gold ions penetrating carbon foils. Nucl. Instr. Meth. B*, **258**:91, 2007.
- [42] E. M. BRINGA, R. E. JOHNSON et M. JAKAS : *Molecular-dynamics simulations of electronic sputtering. Phys. Rev. B*, **60**:15107, 1999.

- [43] A. MEFTAH, F. BRISARD, J. F. COSTANTINI, E. DOORYHEE, M. HAGE-ALI, M. HERVIEU, J. P. STOQUERT, F. STUDER et M. TOULEMONDE : *Track formation in SiO<sub>2</sub> quartz and the thermal-spike mechanism*. *Phys. Rev. B*, **49**:12457, 1994.
- [44] R. L. FLEISCHER, P. B. PRICE, R. M. WALKER et E. L. HUBBARD : *Criterion for registration in dielectric track detectors*. *Phys. Rev.*, **156**:353, 1967.
- [45] G. SZENES, Z. E. HORVÁTH, B. PÉCZ, F. PÁSZTI et L. TÓTH : *Tracks induced by swift heavy ions in semiconductors*. *Phys. Rev. B*, **65**:045206, 2002.
- [46] F. F. KOMAROV, A. F. KOMAROV et A. M. MIRONOV : *Influence of initial charge and charge state fluctuations on high-energy ion ranges and track formation*. *Nucl. Instr. Meth. B*, **148**:159, 1999.
- [47] P. I. GAIDUK, F. F. KOMAROV et W. WESCH : *Damage evolution in crystalline InP during irradiation with swift Xe ions*. *Nucl. Instr. Meth. B*, **164**:377, 2000.
- [48] O. HERRE, W. WESCH, E. WENDLER, P. I. GAIDUK, F. F. KOMAROV, S. KLAUMÜNZER et P. MEIER : *Formation of discontinuous tracks in single-crystalline InP by 250-MeV Xe-ion irradiation*. *Phys. Rev. B*, **58**:4832, 1998.
- [49] A. DUNLOP, G. JASKIEROWICZ, G. RIZZA et M. KOPCEWICZ : *Partial crystallization of an amorphous alloy by electronic energy deposition*. *Phys. Rev. Lett.*, **90**:015503, 2003.
- [50] A. COLDER, O. MARTY, B. CANUT, M. LEVALOIS, P. MARIE, X. PORTIER, S. M. M. RAMOS et M. TOULEMONDE : *Latent track formation in germanium irradiated with 20, 30 and 40 MeV fullerenes in the electronic regime*. *Nucl. Instr. Meth. B*, **174**:491, 2001.
- [51] M. HOU, S. KLAUMÜNZER et G. SCHUMACHER : *Dimensional changes of metallic glasses during bombardment with fast heavy ions*. *Phys. Rev. B*, **41**:1144, 1990.
- [52] W. WESCH, A. KAMAROU, E. WENDLER, A. UNDISZ et M. RETTENMAYR : *Effect of high electronic excitation in swift heavy ion irradiated semiconductors*. *Nucl. Instr. Meth. B*, **257**:283, 2007.

- [53] M. TOULEMONDE, C. DUFOUR, A. MEFTAH et E. PAUMIER : *Transient thermal process in heavy ion irradiation of crystalline inorganic insulators. Nucl. Instr. Meth. B*, **166-167**:903, 2000.
- [54] I. S. BITENSKY et E. S. PARILIS : *Shock wave mechanism for cluster emission and organic molecule desorption under heavy ion bombardment. Nucl. Instr. Meth. B*, **21**:26, 1987.
- [55] M. M. JAKAS, E. M. BRINGA et R. E. JOHNSON : *Fluid dynamics calculation of sputtering from a cylindrical thermal spike. Phys. Rev. B*, **65**:165425, 2002.
- [56] P. STAMPFLI : *Electronic excitation and structural stability of solids. Nucl. Instr. Meth. B*, **107**:138, 1996.
- [57] D. FRENKEL et B. SMIT : *Understanding molecular simulation. Academic press, second édition, 2002.*
- [58] C. J. FENNELL et J. D. GEZELTER : *Is the Ewald summation still necessary? Pairwise alternatives to the accepted standard for long-range electrostatics. J.Chem.Phys.*, **124**:234104, 2006.
- [59] Ashcroft N. W. et N. D. MERMIN : *Solid state physics. Thompson Learning, 1976.*
- [60] L. E. REICHL : *A modern course in statistical physics. John Wiley & Sons, Inc., second édition, 1998.*