



Soutenance de thèse

Mardi 17 Novembre 2015

Amphi Monge - 10h00

Thi Hai Yen VU

**Simulation du Comportement sous Irradiation
aux Ions Lourds du Nanocomposite Au-SiO₂**

Les matériaux nanocomposites de type métal-verre sont intéressants en raison de leurs propriétés optiques particulières. La technique de fabrication utilisant les faisceaux d'ions est un outil prometteur pour les nanocomposites. L'objectif de cette thèse était d'étudier d'un point de vue fondamental le comportement sous irradiation de nanoparticules (NPs) d'or enfouies dans une matrice de silice amorphe. Ma contribution réside dans l'interprétation par modélisation et simulation numérique des résultats expérimentaux obtenus auparavant par des chercheurs du Laboratoire des Solides Irradiés. Dans le premier type d'expériences, le système a été irradié par des ions d'or de 4 MeV alors que dans le second type l'irradiation est effectuée avec des ions de krypton de 74 MeV.

Dans la première partie, la simulation par Monte Carlo cinétique (KMC) sur réseau rigide a été choisie et développée spécifiquement pour étudier le comportement de NPs sous irradiation à différentes températures. Les simulations ont permis de reproduire qualitativement les résultats expérimentaux à toute température. Nous avons retrouvé en particulier le mûrissement d'Ostwald qui se produit à haute température ($T > 900$ K) et la dissolution des NPs qui se produit à basse température ($T < 600$ K). Un régime de transition est observé entre 600 K et 900 K. La simulation par KMC a permis de mettre en évidence et d'expliquer un effet de taille sur la dissolution de NPs sous irradiation. Elle a également révélé que les modèles balistiques unidirectionnels pouvaient rendre compte de la loi de dissolution. Sur la base de l'approche théorique de Frost et Russel, nous avons alors construit avec succès un modèle analytique unidirectionnel capable de décrire la loi de dissolution.

Dans la deuxième partie, le système évolue dans le régime de dépôt d'énergie électronique. Selon la taille de la NP, l'irradiation la vaporise (diamètre < 10 nm), la transforme en nanobâtonnet (10-30 nm), en NP à facettes (30-60 nm) ou la déforme légèrement (> 60 nm) selon l'axe de l'ion incident. Nous avons imaginé un scénario du mécanisme de la déformation qui repose sur la dilatation thermique de la NP métallique fondue dans la région de la trace de l'ion incident. Sa mise en œuvre, grâce à une nouvelle technique de simulation développée spécialement, a permis d'affiner certains éléments du scénario et d'améliorer la compréhension globale du processus. L'accord qualitatif entre les données expérimentales et les résultats obtenus par simulation valide le mécanisme proposé.

Mots-clés : nanocomposite, irradiation, simulation numérique, dissolution, mise en forme



Simulation of the Behavior of Au-SiO₂ Nanocomposite under Heavy Ion Irradiation

Metal-glass nanocomposites are interesting owing to their particular optical-properties. Ion irradiation can be used as a tool to fabricate nanocomposites. The aim of this thesis was to study, from a fundamental point of view, the behavior of gold nanoparticles (NPs) embedded in an amorphous silica matrix under irradiation. My contribution consists in the interpretation, by modeling and numerical simulation, of experimental results previously obtained by researchers of the Laboratoire des Solides Irradiés. In a first type of experiments, the system was irradiated with 4 MeV gold ions while in a second type the irradiation was performed by using 74 MeV krypton ions.

For the study of the first type of experiments, the simulation by kinetic Monte Carlo (KMC) on rigid lattice was chosen and developed specifically to study the behavior of NPs irradiated at different temperatures. The simulations allows us to reproduce qualitatively the experimental results at any temperature. We found that the system evolves within a direct coarsening regime at high temperature ($T > 900$ K) whereas at low temperatures ($T < 600$ K) it becomes resistant to coarsening and the NPs dissolve. A transition regime is observed between 600 K and 900 K. The KMC simulation highlights and explains an effect of the size of the NPs on their dissolution under irradiation. It also demonstrated that unidirectional ballistic models could account for the law of dissolution. A model based on the theoretical approach of Frost and Russel including a size-dependent recoil generation rate fully describes the dissolution for any NP size.

In the second type, the system evolves in the electronic energy deposition regime. Depending on their size, the NP can be vaporized (diameter < 10 nm), transformed into nanorod (10-30 nm) or faceted NP (30-60 nm) or slightly deformed (> 60 nm) by the incident ions. We imagined a scenario for the mechanism of deformation which is based on the thermal expansion of the melted NP into the track produced by the incident ion in the matrix. Its implementation using a new simulation technique helped to refine certain elements of the scenario and to improve the overall understanding of the process. The qualitative agreement between the experimental data and the results obtained by the simulation validate the proposed mechanism.

Keywords: nanocomposite, irradiation, numerical simulation, dissolution, deformation
