

# Etude numérique des formes stables des amas de carbone par dynamique moléculaire classique

A. Allouch<sup>1</sup>, J. Mougenot<sup>1</sup>, A. Michau<sup>1</sup>, S. Prasanna<sup>1</sup>, K. Hassouni<sup>1</sup>, M. Seydou<sup>2</sup>, F. Maurel<sup>2</sup>, P. Brault<sup>3</sup>

<sup>1</sup> LSPM, UMR 3407CNRS- Université Paris 13, Villetaneuse, France

<sup>2</sup> ITODYS, Université Paris Diderot, Paris, France

<sup>3</sup> GREMI, UMR7344, CNRS-Université d'Orléans, Orléans, France.

Le plasma poussiéreux est un gaz ionisé dans lequel se trouvent des particules solides en suspension de taille variant du nanomètre à plusieurs centaines de micromètres. Les poussières sont fréquemment produites et dispersées au cours des procédés plasmas. Elles sont souvent générées par la croissance d'un précurseur moléculaire qui conduit à la formation de plus gros agrégats allant jusqu'à une nucléation des germes solides. Les particules formées dans les plasmas acquièrent une charge électrique souvent négative en moyenne et présentant des fluctuations dynamiques provenant du caractère discret du processus de chargement électrique. La cinétique de ces processus dépend de la valeur moyenne et de la fluctuation de charge des particules. Il y a donc un fort couplage entre les caractéristiques des particules et l'équilibre de décharge du plasma [1].

Les premières étapes de la formation des poudres, difficilement détectables expérimentalement, peuvent être étudiées par simulation numérique. La dynamique moléculaire classique donne une description à l'échelle atomique des chaînes de réactions chimiques et des phénomènes d'agrégation conduisant aux processus de nucléation. La mise en œuvre de simulations de dynamique moléculaire nécessite le choix d'un potentiel d'interaction entre les atomes qui va dépendre de la nature du matériau simulé. Pour rendre compte à la fois des propriétés physico-chimiques des entités étudiées et de la réactivité chimique entre ces entités, l'utilisation de potentiels réactifs tels que les potentiels de Tersoff [2], REBO [3], AIREBO [4] ou encore Reaxff [5] est nécessaire.

Dans cette étude on propose d'identifier les structures stables des amas de carbone  $C_n$  ( $10 \leq n \leq 60$ ) pouvant être retrouvées dans les plasmas poussiéreux obtenus par pulvérisation de cathode en graphite dans les décharges continues de gaz rares, i.e. argon. On utilise pour cela une approche de dynamique moléculaire classique trempée avec le potentiel REBO [3]. Les simulations basées sur les méthodes de dynamique moléculaire trempée [6] consistent à chauffer (de 0K à 3kK) un amas de carbones initialement désordonnés puis à refroidir brutalement la structure. Cette méthode est mise en œuvre à l'aide du logiciel LAMMPS [7]. Plusieurs isomères stables ont été identifiés en fonction des paramètres intervenant dans la simulation (dynamique de chauffage, température maximale...). Des études préliminaires ont montré qu'il était possible d'obtenir différentes structures stables selon l'état initial de l'amas de carbone. Pour s'affranchir des conditions initiales, un grand nombre de simulations ont été réalisées avec des conditions initiales où les positions des atomes de carbone sont obtenues par un tirage aléatoire. Ces simulations nous ont permis de déterminer les poids statistiques des isomères stables pour chaque taille de cluster. Pour les clusters de carbone de petite taille  $C_n$  ( $10 \leq n \leq 20$ ), les structures les plus stables sont soit monocycliques, soit polycycliques et sont cohérentes avec des calculs de chimie quantique [8]. Pour une taille d'amas comprise entre 20 et 60 atomes, des structures de type graphène et fullerène sont obtenues en accord avec les résultats de la littérature [9,10]. La méthode pourra donc être étendue à des clusters de taille plus élevée qui viendront fournir des informations nécessaires aux codes fluides décrivant le plasma (enthalpie de formation et taille caractéristique des clusters par exemple).

[1] A. Michau et al. PSST, **25**, pp.15019 – 15019 (2016).

[2] J. Tersoff, Phys. Rev B, **39**, 5566-5568 (1989).

[3] D.W. Brenner et al., J.Phys., **14**, 783-802 (2002).

[4] S.J. Stuart et al., Journal of chemical physics, **12**, 6472-6486 (2000).

[5] Van Duin et al., J.Phys.Chem, **105**, 9396-9409 (2001).

[6] J.G.O.Ojwang et al., Journal of chemical physics, **129**,244506 (2008)

[7] S. Plimpton, J. Comp. Phys., **117**, 1-19 (1995). Voir aussi <https://lammps.sandia.gov/index.html>

[8] Ngandjong, A.C., Et al., Computational and Theoretical Chemistry **1102** (février 2017): 105-13.

[9] Jeffrey C. Grossman et al., chemical physics letters, **284**, 344-349 (1998).

[10] Xiaodun Jing and James R.Chelikowsky, « Nucleation of carbon clusters »,phys.Rev B, **46**, 15503-15508 (1992).