

Instabilités de forme en croissance cristalline

Morgan Brassel

Laboratoire Jean Kuntzmann

Éric Bonnetier

Pierre Saramito

Plan de l'exposé

Mouvement par courbure moyenne

- Définition, méthode numérique, simulations
- Conservation du volume
- Termes de forçage
- Anisotropie

Instabilité de Grinfeld

- Description du phénomène et modèle
- Discrétisation et simulations
- Un modèle incluant le substrat

Évolution des surfaces vicinales

- Problème modèle
- Recherche du minimum global

Plan de l'exposé

Mouvement par courbure moyenne

Définition, méthode numérique, simulations

Conservation du volume

Termes de forçage

Anisotropie

Instabilité de Grinfeld

Description du phénomène et modèle

Discrétisation et simulations

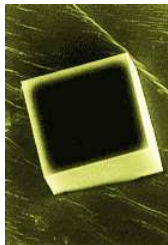
Un modèle incluant le substrat

Évolution des surfaces vicinales

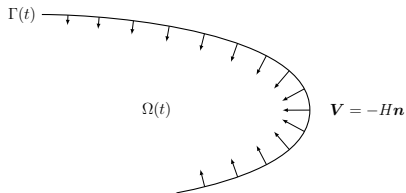
Problème modèle

Recherche du minimum global

Définition du mouvement par courbure moyenne



- ▶ Énergie de surface : $E(\Omega) = \int_{\partial\Omega} 1 \, ds$
- ▶ Dérivée de forme : $E'(\Omega)(\theta) = \int_{\partial\Omega} (\theta \cdot \mathbf{n}) H \, ds$
- ▶ Loi d'évolution : $V_n = -H$



V_n : vitesse normale de l'interface

H : courbure moyenne

Propriétés du mouvement par courbure moyenne

- ▶ Existence locale en temps pour les données initiales **convexes**. Les formes convexes restent convexes, et convergent vers un **point** en devenant asymptotiquement **sphériques**.

[Huisken 1984]

- ▶ En **dimension deux**, existence locale en temps pour les courbes **régulières fermées**. Elles deviennent convexes en temps fini et convergent vers un point en devenant asymptotiquement circulaires.

[Gage & Hamilton 1986, Grayson 1987]

- ▶ Dans le cas général, **singularités en temps fini** avant de disparaître. Exemple en dimension trois : forme en « haltère ».

[Grayson 1989]

- ▶ **Principe d'inclusion** : si $\Omega_1(0) \subset \Omega_2(0)$ alors $\Omega_1(t) \subset \Omega_2(t)$ sur $[0, T[$.

[Ecker 2002]

Différentes approches en vue de la simulation

- ▶ Approche **paramétrique** : $\Gamma(t) = \{X(s, t) \mid s \in I\}$

[Dziuk 1994]

- ▶ Approche de type **graphe** : $\Gamma(t) = \{(x, u(x, t)) \mid x \in E\}$

[Huisken 1989]

- ▶ Méthode **level set** : $\Gamma(t) = \{x \in \mathbb{R}^N \mid \omega(x, t) = 0\}$

$$\frac{1}{|\nabla\omega|} \frac{\partial\omega}{\partial t} = \operatorname{div} \left(\frac{\nabla\omega}{|\nabla\omega|} \right)$$

[Evans & Spruck 1991, Chen & Giga & Goto 1991]

- ▶ **Champ de phase** : $\Gamma_\varepsilon(t) = \{x \in \mathbb{R}^N \mid C\varepsilon \leq \phi(x, t) \leq 1 - C\varepsilon\}$

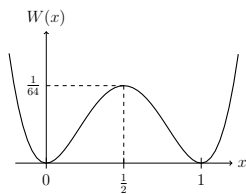
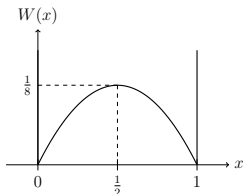
$$\varepsilon \frac{\partial\phi}{\partial t} - \varepsilon \Delta\phi + \frac{1}{\varepsilon} W'(\phi) = 0$$

Approche par la méthode de champ de phase

► Avantages :

- flexibilité, implémentation aisée
- interprétation physique (interface « diffuse »)

► Équation d'Allen–Cahn : $\varepsilon \frac{\partial \phi}{\partial t} - \varepsilon \Delta \phi + \frac{1}{\varepsilon} W'(\phi) = 0$



► Existence de solutions [Ambrosio 2000]

► $\varepsilon \rightarrow 0$: convergence vers le mouvement par courbure moyenne
[de Mottoni & Schatzman 1989/1995, Chen 1992]

Discrétisation de l'équation d'Allen–Cahn

- ▶ Différentes stratégies numériques testées
- ▶ Schéma en temps « réaction explicite » :

$$\frac{\varepsilon}{\Delta t}(\phi^{n+1} - \phi^n) - \varepsilon \Delta \phi^{n+1} + \frac{1}{\varepsilon} W'(\phi^n) = 0$$

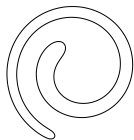
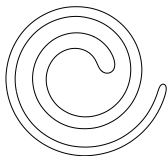
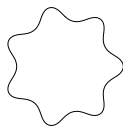
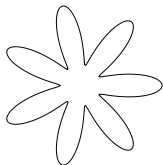
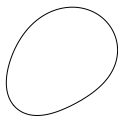
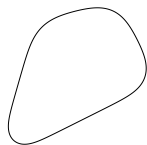
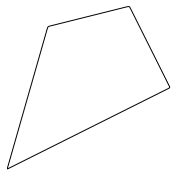
- ▶ Discrétisation en espace par éléments finis P_1 :

$$m(\phi^{n+1}, \psi) + \Delta t a(\phi^{n+1}, \psi) = m\left(\phi^n - \frac{\Delta t}{\varepsilon^2} W'(\phi^n), \psi\right)$$

- formes bilinéaires : $a(\phi, \psi) = \int_Q \nabla \phi \cdot \nabla \psi \, dx$, $m(\phi, \psi) = \int_Q \phi \psi \, dx$
- pas de refactorisation de la matrice

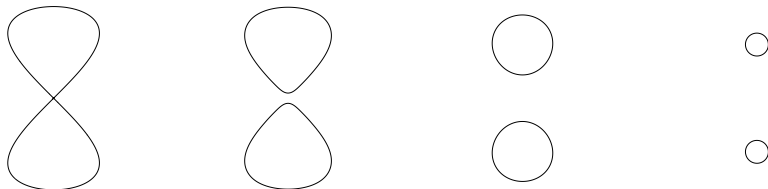
- ▶ Condition de stabilité : $\Delta t \leq \alpha \varepsilon^2$ ($\varepsilon \approx 2h$)

Exemples 2D avec Rheolef (1/2)

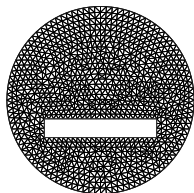


Exemples 2D avec Rheolef (2/2)

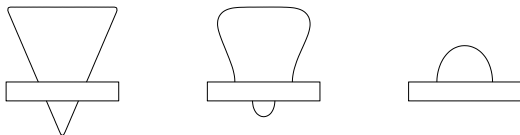
► Changements de topologie



► Calculs sur géométries complexes (mailleur : Bamg)



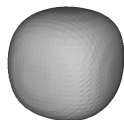
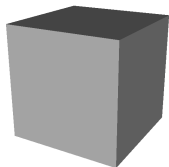
maillage



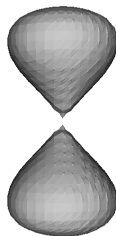
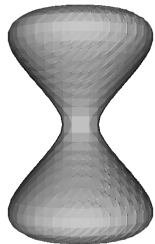
évolution d'une forme initiale triangulaire

Exemples 3D avec Rheolef

▶ Exemple dans le cas convexe :



▶ Cas non convexe : changements de topologie [Grayson 1989]



Équation d'Allen–Cahn non locale

- ▶ Conservation du volume : apparaît dans de nombreux contextes
- ▶ Dans la formulation champ de phase :

$$\int_Q \phi \, dx = V_0$$

- ▶ **Multiplicateur de Lagrange** dans l'équation d'Allen–Cahn :

$$\varepsilon \frac{\partial \phi}{\partial t} - \varepsilon \Delta \phi + \frac{1}{\varepsilon} W'(\phi) + q = 0$$

- ▶ Calcul **explicite** de q (C.L. de Neumann homogènes) :

$$q = -\frac{1}{\varepsilon} \frac{1}{|Q|} \int_Q W'(\phi) \, dx$$

- ▶ Mouvement par courbure moyenne **conservé** : $V_n = -H + \dot{H}$

[Bronsard & Stoth 1997]

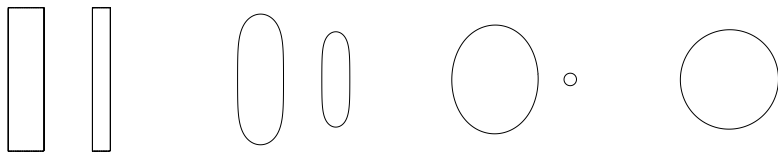
Un mot sur l'équation de Cahn–Hilliard

- ▶ Équation de **Cahn–Hilliard** :

$$\varepsilon \frac{\partial \phi}{\partial t} - \Delta \left(-\varepsilon \Delta \phi + \frac{1}{\varepsilon} W'(\phi) \right) = 0$$

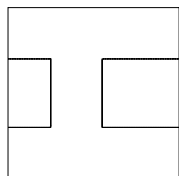
- ▶ Mouvement par **diffusion de surface** : $V_n = \Delta_{\partial\Omega} H$

- ▶ Différence avec l'équation précédente : conservation **locale** du volume

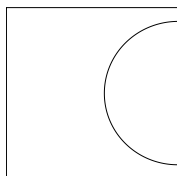


Simulations avec conservation du volume

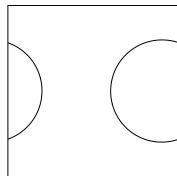
► Traitement des conditions aux limites :



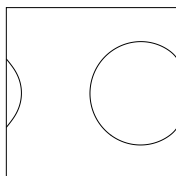
forme initiale



Neumann hom.

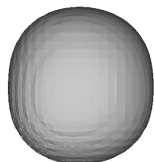
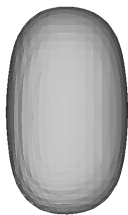
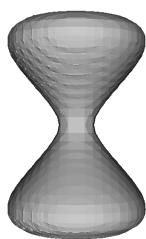


périodiques



Dirichlet

► Un exemple en 3D :



Mouvement par courbure moyenne forcé

► Motivations :

- **couplage** avec une équation décrivant la physique du problème
- **transport** d'interfaces

► Forçage **normal** à l'interface : [Bellettini & Paolini 1996]

$$V_n = -H + g$$

$$\varepsilon \frac{\partial \phi}{\partial t} - \varepsilon \Delta \phi + \frac{1}{\varepsilon} W'(\phi) = \lambda_W g$$

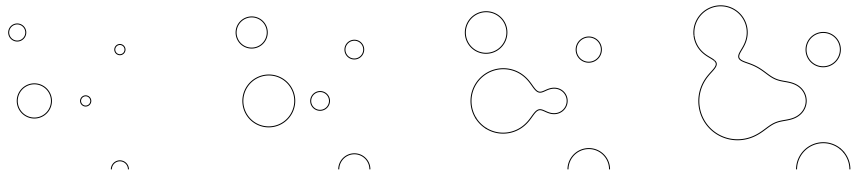
► Forçage **vectériel** :

$$\mathbf{V} = -H\mathbf{n} + \mathbf{g}$$

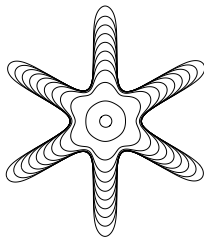
$$\varepsilon \frac{\partial \phi}{\partial t} - \varepsilon \Delta \phi + \frac{1}{\varepsilon} W'(\phi) - \lambda_W \mathbf{g} \cdot \frac{\nabla \phi}{|\nabla \phi|} = 0$$

Simulations avec forçage normal à l'interface

- ▶ Coalescence (forçage constant) :



- ▶ Croissance de dendrites (forçage dépendant de la variable d'espace) :

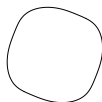
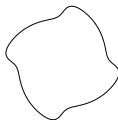
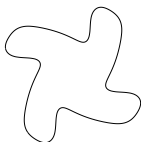
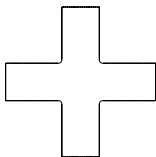


Simulations avec forçage vectoriel

- Force de gravitation : $\mathbf{g}(x_1, x_2) = (0, -1)$



- Champ tournant : $\mathbf{g}(x_1, x_2) = \frac{(-x_2, x_1)}{|x|}$



Définition de l'anisotropie

- Énergie de surface anisotrope (ou périmètre anisotrope) :

$$E_\gamma(\Omega) = \int_{\partial\Omega} \gamma(\mathbf{n}) \, ds$$

- γ : « anisotropie » du problème
- régulière : C^2 sur $\mathbb{R}^N \setminus \{0\}$
 - positivement homogène de degré un : $\gamma(\lambda\mathbf{p}) = |\lambda|\gamma(\mathbf{p})$
 - convexe : $\nabla^2 \gamma(\mathbf{p}) \mathbf{q} \cdot \mathbf{q} \geq \gamma_0 |\mathbf{q}|^2$

- Diagramme de Frank et forme de Wulff :

$$\mathcal{F} = \{\mathbf{p} \in \mathbb{R}^N \mid \gamma(\mathbf{p}) \leq 1\} \quad \text{et} \quad \mathcal{W} = \{\mathbf{q} \in \mathbb{R}^N \mid \gamma^*(\mathbf{q}) \leq 1\}$$

avec

$$\gamma^*(\mathbf{q}) = \sup_{\mathbf{p} \in \mathbb{R}^N \setminus \{0\}} \frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{q}}{\gamma(\mathbf{p})}$$

Mouvement par courbure moyenne anisotrope

- ▶ Normale anisotrope : $\mathbf{n}_\gamma = \nabla \gamma(\mathbf{n})$
- ▶ Courbure moyenne anisotrope : $H_\gamma = \operatorname{div}_{\partial\Omega} \mathbf{n}_\gamma$
- ▶ Mouvement par courbure moyenne anisotrope :

$$V_{n_\gamma} = -H_\gamma \quad \text{ou} \quad V_n = -H_\gamma \gamma(\mathbf{n})$$

- ▶ Équation d'Allen–Cahn anisotrope :

$$\varepsilon \frac{\partial \phi}{\partial t} - \varepsilon \operatorname{div}(\gamma(\nabla \phi) \nabla \gamma(\nabla \phi)) + \frac{1}{\varepsilon} W'(\phi) = 0$$

[Wheeler & McFadden 1996, Elliott & Schätzle 1997]

Discrétisation de l'équation d'Allen–Cahn anisotrope

- ▶ Schéma en temps **totalemment explicite** (pas de refactorisation) :

$$\frac{\varepsilon}{\Delta t}(\phi^{n+1} - \phi^n) - \varepsilon \operatorname{div}(\gamma(\nabla \phi^n) \nabla \gamma(\nabla \phi^n)) + \frac{1}{\varepsilon} W'(\phi^n) = 0$$

- ▶ Discrétisation en espace par éléments finis P_1 :

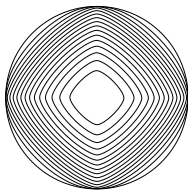
$$m(\phi^{n+1}, \psi) = m\left(\phi^n - \frac{\Delta t}{\varepsilon^2} W'(\phi^n), \psi\right) - b\left(\Delta t \gamma(\nabla \phi^n) \nabla \gamma(\nabla \phi^n), \psi\right)$$

- formes bilinéaires : $m(\phi, \psi) = \int_Q \phi \psi \, dx$, $b(\mathbf{u}, \psi) = \int_Q \mathbf{u} \cdot \nabla \psi \, dx$

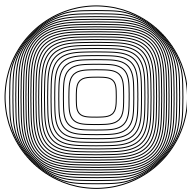
- ▶ Condition de stabilité classique : $\Delta t \leq Ch^2$

Exemples de simulations anisotropes (1/2)

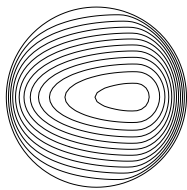
- Anisotropies strictement convexes :



$$\gamma(\mathbf{p}) = |\mathbf{p}|_{l_4}$$

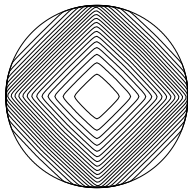


$$\gamma(\mathbf{p}) = |\mathbf{p}|_{l_4/3}$$

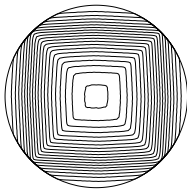


$$\gamma(\mathbf{p}) = \gamma_{\text{asym}}(\mathbf{p})$$

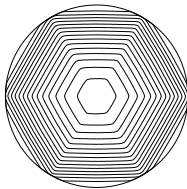
- Anisotropies cristallines :



$$\gamma(\mathbf{p}) = |\mathbf{p}|_{l_\infty}$$



$$\gamma(\mathbf{p}) = |\mathbf{p}|_{l_1}$$

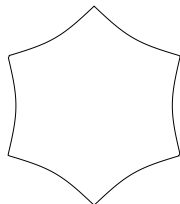
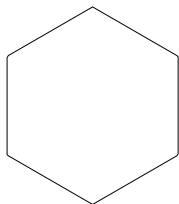


$$\gamma(\mathbf{p}) = \gamma_{\text{hexagon}}(\mathbf{p})$$

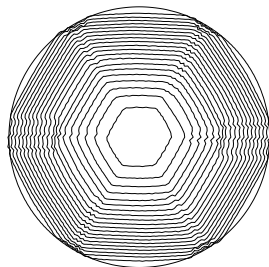
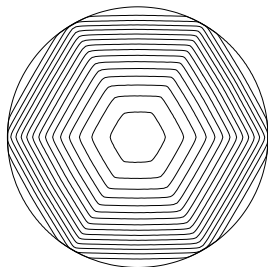
Exemples de simulations anisotropes (2/2)

► Anisotropies **non convexes** :

Diagrammes de
Frank



Évolutions



Plan de l'exposé

Mouvement par courbure moyenne

Définition, méthode numérique, simulations

Conservation du volume

Termes de forçage

Anisotropie

Instabilité de Grinfeld

Description du phénomène et modèle

Discrétisation et simulations

Un modèle incluant le substrat

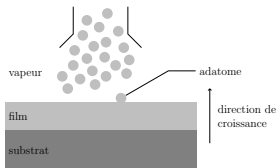
Évolution des surfaces vicinales

Problème modèle

Recherche du minimum global

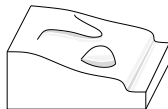
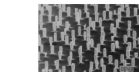
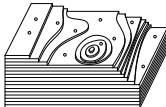
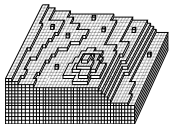
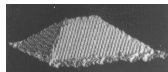
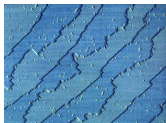
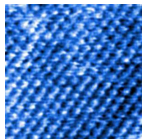
Croissance épitaxiale

- ▶ Épitaxie par jet moléculaire :



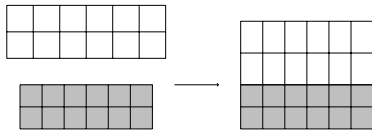
- ▶ Différentes échelles :

(sources : Lagally Research / O. Pierre-Louis)

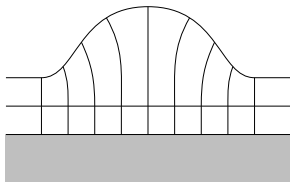


Mécanisme de l'instabilité de Grinfeld

- ▶ **Désaccord de maille** entre les réseaux du film et du substrat



- ▶ Énergie élastique induite dans le film
- ▶ Diffusion des adatoms en surface pour relaxer cette énergie
- ▶ Formation d'**îlots**



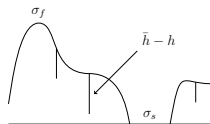
Modèle variationnel [Bonnetier & Chambolle 2002]

- ▶ Énergie libre : ($K =$ épaisseur moyenne du film)

$$E(\Omega, \mathbf{u}) = K \int_{\Omega} \mathbf{A}e(\mathbf{u}) : e(\mathbf{u}) \, dx + L(\partial\Omega)$$

- ▶ Énergie de surface :

$$L(\partial\Omega) = \sigma_f \left(\mathcal{H}^1(\partial\bar{\Omega} \cap Q^+) + 2 \sum_{x \in S^1} \left(\bar{h}(x) - h(x) \right) \right) \\ + \min(\sigma_f, \sigma_s) \mathcal{H}^1(\partial\bar{\Omega} \setminus Q^+)$$

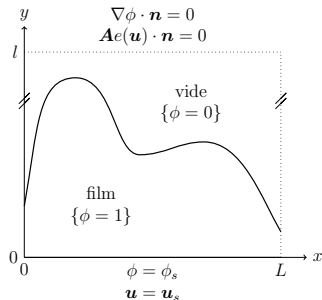


- ▶ **Compétition** entre les deux énergies :
- K petit : formes d'équilibre planes
 - K grand : présence d'îlots

Approximation par champ de phase

- ▶ Énergie approchée :

$$E_\varepsilon(\phi, \mathbf{u}) = K \int_Q (\phi + \eta_\varepsilon) \mathbf{A}e(\mathbf{u}) : e(\mathbf{u}) dx + \sigma_f \int_Q \left(\frac{\varepsilon}{2} |\nabla \phi|^2 + \frac{1}{\varepsilon} W(\phi) \right) dx$$



- ▶ Convergence vers l'énergie précédente [Bonnetier & Chambolle 2002]

Algorithme de résolution

Données : $\phi^0 \in H^1(Q)$

Résultat : $(\phi^\infty, \mathbf{u}^\infty)$ minimum de E_ε sur $H^1(Q) \times H^1(Q; \mathbb{R}^2)$

pour $n \geq 0$

Calculer \mathbf{u}^n solution de

$$-\mathbf{div}\left((\phi + \eta_\varepsilon)\mathbf{A}e(\mathbf{u})\right) = 0 \quad + \text{C.L.}$$

Calculer ϕ^{n+1} solution stationnaire de

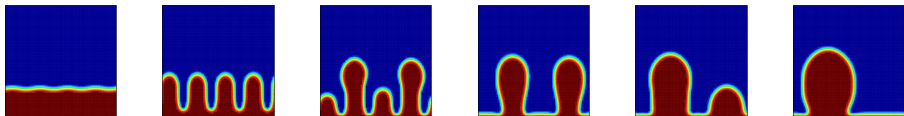
$$\varepsilon \frac{\partial \phi}{\partial t} - \varepsilon \Delta \phi + \frac{1}{\varepsilon} W'(\phi) + q = -K \mathbf{A}e(\mathbf{u}) : e(\mathbf{u}) \quad + \text{C.L.}$$

fin

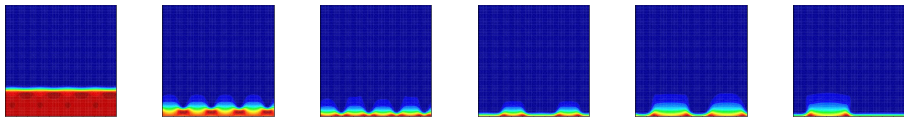
► Problème de minimisation **statique** : $t =$ temps « **fictif** »

Résultats numériques obtenus pour K grand

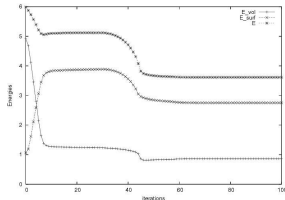
► Champ de phase au cours des itérations :



► Énergie élastique locale :

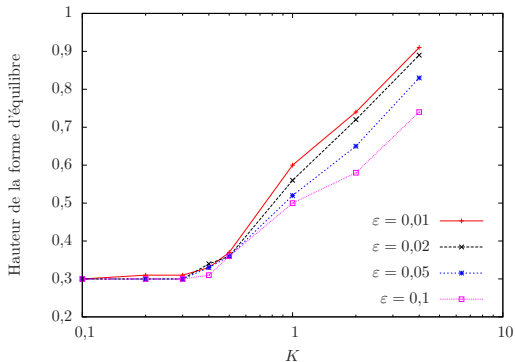


► Tracés des énergies globales au cours du temps :



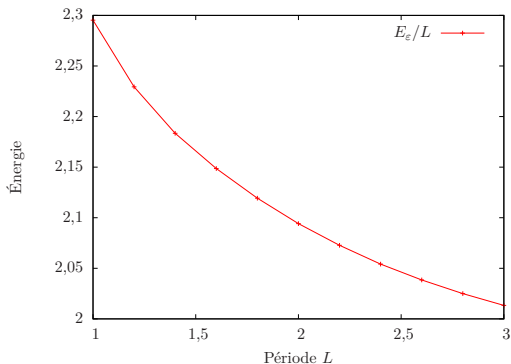
Recherche d'une épaisseur moyenne critique

- Hauteur de la forme d'équilibre en fonction de K , pour différents ε :



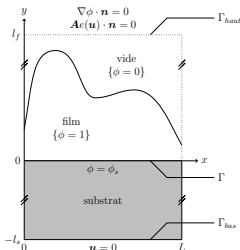
Recherche d'une période optimale

- ▶ Énergie de la forme d'équilibre en fonction de la période :



Prise en compte de l'élasticité du substrat

► Domaine et équations :



$$- \operatorname{div}((\phi + \eta_\varepsilon) \mathbf{A}_f e(\mathbf{u}_f)) = 0 \text{ dans } Q_f$$

$$- \operatorname{div}(\mathbf{A}_s e(\mathbf{u}_s)) = 0 \text{ dans } Q_s$$

$$\mathbf{u}_s = \mathbf{u}_f \text{ sur } \Gamma$$

$$(\phi + \eta_\varepsilon) \mathbf{A}_f(e(\mathbf{u}_f) - \mathbf{e}_0) \cdot \mathbf{n} = \mathbf{A}_s e(\mathbf{u}_s) \cdot \mathbf{n} \text{ sur } \Gamma$$

$$\mathbf{A}_f e(\mathbf{u}_f) \cdot \mathbf{n} = 0 \text{ sur } \Gamma_{haut}$$

$$\mathbf{u}_s = 0 \text{ sur } \Gamma_{bas}$$

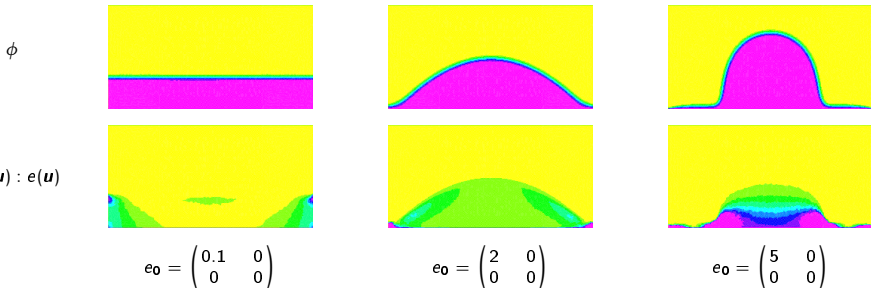
► Formulation variationnelle :

$$\int_Q \mathbf{A}e(\mathbf{u}) : e(\mathbf{v}) \, dx = \int_\Gamma \left((\phi + \eta_\varepsilon) \mathbf{A}_f e_0 \cdot \mathbf{n} \right) \cdot \mathbf{v} \, ds$$

- \mathbf{e}_0 : désaccord de maille

Résultats obtenus avec FreeFem++

► Influence de e_0 sur les formes d'équilibre :



► Existence d'un **seuil** de e_0

Plan de l'exposé

Mouvement par courbure moyenne

- Définition, méthode numérique, simulations
- Conservation du volume
- Termes de forçage
- Anisotropie

Instabilité de Grinfeld

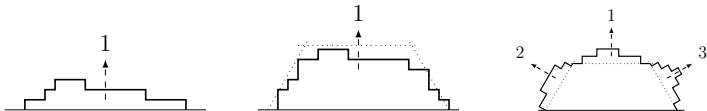
- Description du phénomène et modèle
- Discrétisation et simulations
- Un modèle incluant le substrat

Évolution des surfaces vicinales

- Problème modèle
- Recherche du minimum global

Surfaces vicinales au cours de la croissance

1. au départ (couche mince) :
 - ▶ direction de croissance unique
2. intervention de phénomènes complexes :
 - ▶ effets élastiques volumiques, effets cinétiques, relaxations, etc.
 - ▶ mise en paquet de marches
3. instabilités de forme :
 - ▶ nouvelles directions de croissance
 - ▶ surfaces vicinales multiples, facettes
 - ▶ formation d'îlots



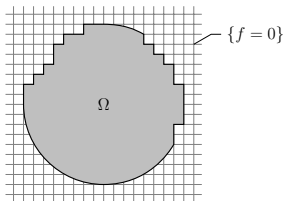
Modéliser la croissance **au-delà des premières instabilités**

Un modèle variationnel

- ▶ Énergie de surface :

$$E_\alpha(\Omega) = \int_{\partial\Omega} ((1 - \alpha)\gamma(\mathbf{n}) + \alpha f) ds$$

- ▶ Mélange d'effets
 - macroscopiques : densité γ associée à une forme de Wulff (facettes)
 - microscopiques : potentiel en « boîte-à-œufs » f lié aux marches



$$f(x) = \sin^2(\omega x_1) \sin^2(\omega x_2)$$

- ▶ Transition dans les formes d'équilibre arbitrée par α ?
- ▶ Mélange des échelles ?

Approximation par champ de phase

- ▶ Énergie approchée :

$$E_{\alpha,\varepsilon}(\phi) = \int_Q f_\alpha \left(\frac{\varepsilon}{2} |\nabla \phi|^2 + \frac{1}{\varepsilon} W(\phi) \right) dx, \quad f_\alpha = (1 - \alpha) + \alpha f$$

- Résultat de Γ -convergence [Bellettini 1997]

- ▶ Équation d'Allen–Cahn correspondante :

$$\varepsilon \frac{\partial \phi}{\partial t} - \varepsilon \operatorname{div}(f_\alpha \nabla \phi) + \frac{1}{\varepsilon} f_\alpha W'(\phi) - \frac{1}{\varepsilon} \frac{1}{|Q|} \int_Q f_\alpha W'(\phi) dx = 0$$

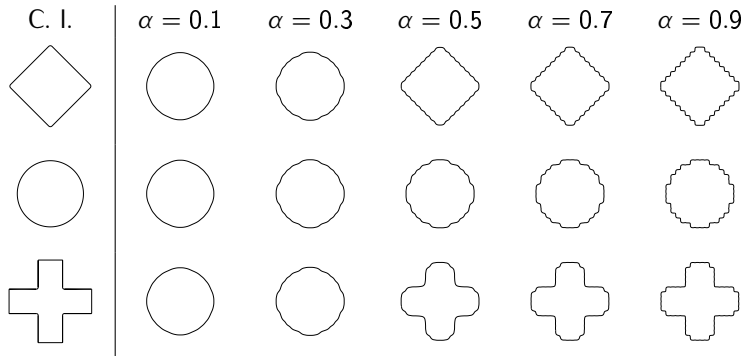
- ▶ Discrétisation « réaction explicite » (pas de refactorisation) :

$$\begin{aligned} m(\phi^{n+1}, \psi) + \Delta t a_\alpha(\phi^{n+1}, \psi) \\ = m \left(\phi^n - \frac{\Delta t}{\varepsilon^2} f_\alpha W'(\phi^n) + \frac{\Delta t}{\varepsilon^2} \frac{1}{|Q|} \int_Q f_\alpha W'(\phi^n) dx, \psi \right) \end{aligned}$$

- forme bilinéaire : $a_\alpha(\phi, \psi) = \int_Q f_\alpha \nabla \phi \cdot \nabla \psi dx$

Influence de la donnée initiale sur la forme d'équilibre

► Formes obtenues :



► Difficulté : présence de très nombreux minima locaux

Un algorithme inspiré du recuit simulé

- Idée : initialiser les calculs avec une valeur élevée de ε , puis la faire décroître au cours des itérations

Données : $\phi^0 \in H^1(Q)$, $\varepsilon_0 > 0$

Résultat : ϕ^∞ réalisant le minimum global de $E_{\alpha,\varepsilon}$

pour $n \geq 0$

Calculer ϕ^{n+1} solution de

$$m(\phi^{n+1}, \psi) + \Delta t a_\alpha(\phi^{n+1}, \psi) \\ = m\left(\phi^n - \frac{\Delta t}{\varepsilon_n^2} f_\alpha W'(\phi^n) + \frac{\Delta t}{\varepsilon_n^2} \frac{1}{|Q|} \int_Q f_\alpha W'(\phi^n) dx, \psi\right).$$

si $\varepsilon_n > \varepsilon_{min}$ **et** $\|\phi^{n+1} - \phi^n\|_{H^1(Q)} \leq tol$

| Poser $\varepsilon_{n+1} = \rho \varepsilon_n$.

sinon

| Poser $\varepsilon_{n+1} = \varepsilon_n$.

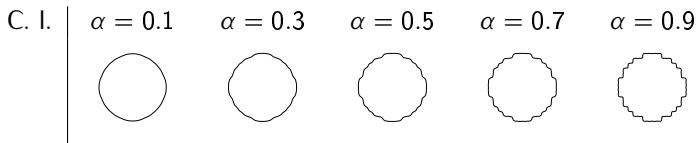
fin

fin

Résultats obtenus avec le nouvel algorithme

► Choix de paramètres : $\rho = 0.99$, $\varepsilon_{min} = 2h$

► Formes d'équilibre **indépendantes de la donnée initiale** :



► Mêmes formes finales qu'avec la donnée initiale circulaire

► Interprétation : pour ε suffisamment grand, les effets du quadrillage **ne se font pas sentir**

Conclusion et perspectives

- ▶ Un outil **complet** et **flexible** pour la simulation numérique des mouvements d'interfaces
 - extension : équation de Cahn–Hilliard
 - anisotropies non convexes : comparaison avec les résultats obtenus par E. Bretin au LJK

- ▶ Étude approfondie du modèle pour l'instabilité de Grinfeld
 - présence d'un seuil critique K_c
 - pas de période optimale
 - poursuivre l'étude du modèle incluant le substrat
 - utiliser l'équation de Cahn–Hilliard

- ▶ Couplage des échelles dans le modèle pour les surfaces vicinales
 - proposer un modèle plus physique
 - étude de l'algorithme d'optimisation globale