



HAL
open science

Étude par simulations à l'échelle atomique de la formation de boucles de dislocation à partir d'irrégularités de surface d'un métal contraint

Pierre Hirel

► **To cite this version:**

Pierre Hirel. Étude par simulations à l'échelle atomique de la formation de boucles de dislocation à partir d'irrégularités de surface d'un métal contraint. Matière Condensée [cond-mat]. Université de Poitiers, 2008. Français. NNT: . tel-00399038

HAL Id: tel-00399038

<https://theses.hal.science/tel-00399038>

Submitted on 25 Jun 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

Pour l'obtention du grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE POITIERS

Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées

Diplôme National - Arrêté du 7 août 2006

ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES POUR L'INGÉNIEUR & AÉRONAUTIQUE

DOMAINE DE RECHERCHE : MILIEUX DENSES, MATÉRIAUX ET
COMPOSANTS

Présentée par

Pierre Hirel

Étude par simulations à l'échelle atomique de la formation de boucles de dislocation à partir d'irrégularités de surface d'un métal contraint

Directeurs de thèse : **L. Pizzagalli, S. Brochard, P. Beauchamp**

Soutenue le 12 novembre 2008

JURY

J. Grillhé	Professeur Émérite, Université de Poitiers	Président
B. Devincere	Directeur de Recherche CNRS, ONERA, LEM Châtillon	Rapporteur
D. Rodney	Maître de Conférences HDR, INP Grenoble	Rapporteur
A. Couret	Directeur de Recherche CNRS, CEMES Toulouse	Examineur
C. Domain	Ingénieur-Chercheur, EDF Moret/Loing	Examineur
J. Rabier	Directeur de Recherche CNRS, Phymat Poitiers	Examineur
S. Brochard	Maître de Conférences, Université de Poitiers	Examineur
L. Pizzagalli	Chargé de Recherche CNRS, Phymat Poitiers	Examineur

Remerciements

Je remercie le Prof. R. J. Gaboriaud pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire PHYMAT (anciennement LMP). D'une façon plus générale, je remercie l'ensemble des personnels du laboratoire, des personnalités hautes en couleurs et avec qui les échanges ont été agréables.

Je remercie Messieurs Devindre et Rodney, qui me font l'honneur de juger ce travail et d'en être les rapporteurs. Je remercie également Messieurs Couret, Domain, Grilhé et Rabier, pour avoir accepté de participer au jury de cette thèse.

J'adresse des remerciements tout particuliers à ceux qui ont encadré ce travail de thèse : Pierre B. qui a apporté son savoir et son expérience dans la physique des dislocations et de la plasticité ; Sandrine qui a apporté sa connaissance du sujet et du matériau, et a toujours été enthousiaste vis-à-vis de ce travail et des résultats que l'on a pu obtenir ; et Pizza qui a apporté son savoir et son savoir-faire, ainsi que son pointillisme et sa rigueur scientifique. Je remercie également Julien Godet, Maître de Conférences qui a rejoint l'équipe à la rentrée 2007, qui s'est intéressé et a apporté sa contribution à ce travail de thèse. Merci aussi à Hannes Jónsson, ainsi qu'à son thésard Andreas Pedersen, pour m'avoir accueilli en Islande, et avec qui il a été très agréable de discuter et d'échanger.

Je salue en vrac l'ensemble des thésards que j'ai pu rencontrer au PHYMAT :

Guillaume Lucas, Benoît, Vincent, Fred Foucher, Waël, Karim, *Mickael Jublote (with the accent)*, Stéphanie, Zeinab, Tarik, Shaï, Baptiste, David "Junior", Tic et Tac, mon collègue de bureau Azzam, Fred "Le boucher", Cachou, les petits nouveaux Amélie, Alex, Guillaume, Matthieu, et j'espère n'oublier personne, pour les délires qu'on a pu avoir, les parties de babyfoot, les barbecues sous la pluie, les montages photos sur les affiches de thèse, et les discussions qui étaient parfois même scientifiques.

Je ne remercie pas : les deux disques durs ni la carte graphique qui m'ont lâché, la connexion Internet que j'ai perdue pendant trois mois, les orages qui ont fait planter des jobs sur le cluster local, ni le voisin-du-dessus-qui-met-sa-musique-à-fond-à-3h-du-mat'. Tous ceux-là ne m'ont pas vraiment facilité la tâche.

Un salut particulier à mes trois comparses de fac restés en thèse à Rennes, Rémi, Johan et Yvelin. Je sais que tout n'a pas été facile pour eux pendant ces trois années, je tiens à leur signifier mon amitié. J'ai également une pensée pour ceux qui sont depuis des années des amis inconditionnels, Cédric et Morgan.

Enfin, je tiens à remercier mes proches, tout particulièrement mes parents et mon frère François, qui m'ont soutenu et ont toujours été là pour moi pendant ces trois années. Leur présence et leur amour m'ont été précieux à chaque instant.

Table des matières

Table des matières	iii
Table des figures	vii
Introduction générale	xi
I État de l'art : la plasticité naissante dans les nanomatériaux	1
I.1 Observations de la plasticité dans les nanomatériaux	2
I.2 Les paramètres clés de la nucléation	3
I.2.1 La barrière d'énergie et son franchissement	3
I.2.2 Rôle de l'état de surface	6
I.2.3 Influence de la vitesse de déformation	8
I.2.4 Résumé : les paramètres associés à la barrière d'énergie, et les facteurs pouvant les modifier	10
I.3 Modélisation de la nucléation	10
I.3.1 Modèles élastiques	10
I.3.2 Simulations atomistiques	13
I.4 Évolution du système après nucléation	15
I.4.1 Cinétique des dislocations	15
I.4.2 Évènements plastiques subséquents	17
I.5 Conclusions	20
II Modèles et méthodes	23
II.1 Dislocations dans les métaux cfc	23

Table des matières

II.2	La théorie de l'élasticité : un modèle adapté à l'étude?	26
II.2.1	Dislocation infinie rectiligne	26
II.2.2	Demi-boucle de dislocation	29
II.3	Simulations atomistiques	31
II.3.1	Les potentiels semi-empiriques EAM	31
II.3.2	Géométrie du système étudié et contrainte appliquée	33
II.3.3	Minimisation de l'énergie	37
II.3.4	Dynamique moléculaire	37
II.3.5	La méthode Nudged Elastic Band	38
II.3.6	Moyens d'analyse du système	41
II.4	Conclusions	46
III Paramètres influant sur la nucléation		47
III.1	Effet de la température	48
III.2	Influence de l'état de surface	58
III.2.1	Marche de surface monoatomique	58
III.2.2	Marche monoatomique crantée	60
III.2.3	Influence de la hauteur de marche	64
III.3	Influence de l'orientation et du sens de la contrainte	69
III.3.1	Compression	70
III.3.2	Traction désorientée	71
III.4	Influence de la vitesse de déformation	72
III.5	Conclusions	74
IV Détermination des paramètres d'activation		77
IV.1	Détermination du rayon critique	78
IV.1.1	Utilisation de la dynamique moléculaire : méthode d'essai-erreur .	78
IV.1.2	Ajustement du modèle élastique	81
IV.2	Détermination de l'énergie d'activation	85

Table des matières

IV.2.1	Utilisation du modèle élastique ajusté	85
IV.2.2	Méthode d'Arrhenius	87
IV.2.3	Relaxation contrainte	89
IV.3	La méthode NEB : détermination du chemin d'énergie minimum	91
IV.4	Discussion	94
IV.4.1	Évolution des paramètres d'activation	94
IV.4.2	Existence d'un minimum d'énergie local près de la surface	96
IV.5	Conclusions	98
V	Évènements subséquents à la nucléation de la première dislocation	101
V.1	Cinétique de la première dislocation	102
V.1.1	Variation de la vitesse lors du parcours dans le matériau	103
V.1.2	Extension du coeur des dislocations	104
V.1.3	Effet de la température sur la vitesse des dislocations	106
V.2	Évolution ultérieure du système	109
V.2.1	Formation d'une macle	109
V.2.2	Nucléation de la partielle de queue	112
V.2.3	Discussion : macle ou partielle de queue ?	113
V.3	Conclusions	114
Annexes		121
A	Les métaux cfc et leurs applications	121
B	Méthodes de simulations atomistiques	125
B.1	Le potentiel EAM d'Aslanides et Pontikis pour l'aluminium	125
B.2	Relaxation : gradients simples et conjugués	127
B.3	Dynamique moléculaire et algorithmes d'intégration	128
B.3.1	L'algorithme de Verlet	129
B.3.2	L'algorithme prédicteur-correcteur de Gear	130

Table des matières

B.4	Maintien de la température en dynamique moléculaire	132
B.4.1	Renormalisation des vitesses	132
B.4.2	Thermostat de Nosé-Hoover	133
B.5	La méthode Nudged Elastic Band	134
B.5.1	L’algorithme NEB original	135
B.5.2	L’ <i>improved tangent</i>	136
B.5.3	Le <i>climbing image</i>	137
C	Analyse des défauts	139
C.1	Principe du programme	139
C.1.1	Calcul des déplacements atomiques relatifs	139
C.1.2	Ajustement analytique	142
C.2	Application à l’analyse d’un plan $\{111\}$	143
	Bibliographie	145

Table des figures

I.1	Exemples de nucléation.	3
I.2	La problématique de la nucléation.	4
I.3	Probabilité de nucléation en fonction de la température.	5
I.4	Dislocations formées depuis des surfaces.	7
I.5	Probabilité de nucléation en fonction de la vitesse de déformation.	9
I.6	Énergie d'activation en fonction de la contrainte.	12
I.7	Exemples de nucléation.	14
I.8	Nucléation depuis un front de fissure.	15
I.9	Coefficient d'amortissement lié aux phonons.	16
I.10	Mécanismes pour le maclage et la partielle de queue.	18
I.11	Observation de macles dans l'aluminium.	19
II.1	Structure cfc.	24
II.2	Dislocations et dissociation.	25
II.3	γ -surface de l'aluminium.	25
II.4	Taille critique en fonction de la contrainte.	28
II.5	Système étudié.	33
II.6	Relation déformation-contrainte dans l'aluminium.	34
II.7	Facteur de Schmid.	35
II.8	γ -surface de l'aluminium.	36
II.9	La méthode NEB.	39
II.10	Énergie en fonction de la contrainte à 300 K.	42
II.11	Critère de centrosymétrie.	44

Table des figures

II.12 Déplacements normalisés.	44
III.1 Énergie en fonction de la contrainte à 0 K.	48
III.2 Dislocations formées à 0 K.	49
III.3 Déplacements atomiques à 0 K.	50
III.4 Énergie en fonction de la contrainte à 300 K.	52
III.5 Dislocations formées à 10 K.	52
III.6 Dislocation formée à 300 K.	53
III.7 Déplacements atomiques à 300 K.	54
III.8 Forme de la dislocation.	55
III.9 Contrainte de nucléation en fonction de la température.	56
III.10 Contrainte de nucléation en fonction de la température.	57
III.11 Précisaillement et contraintes locales autour d'une marche simple.	59
III.12 Système présentant une marche à double décrochement.	60
III.13 Contraintes locales au niveau d'un cran.	61
III.14 Profil des contraintes le long d'une marche crantée.	61
III.15 Dislocations formées à 0 K en présence d'une marche crantée.	62
III.16 Dislocations formées à 300 K en présence d'une marche crantée.	63
III.17 Dislocation nucléée à partir d'une marche double.	65
III.18 Limite élastique en fonction de la hauteur de marche.	66
III.19 Plans de glissement possibles pour une marche double.	67
III.20 Précisaillement et contraintes locales sur une marche double.	68
III.21 Dislocations formées en compression.	70
III.22 Traction désorientée 18°.	72
III.23 Traction désorientée 36°.	73
IV.1 Principe de la méthode essai-erreur.	79
IV.2 Taille critique de dislocation en fonction de la déformation.	80
IV.3 Demi-boucle se formant depuis une marche de surface.	82

Table des figures

IV.4	Forme des dislocations formées.	83
IV.5	Taille critique de dislocation en fonction de la déformation.	84
IV.6	Variation d'énergie en fonction de la taille de dislocation.	86
IV.7	Graphe d'Arrhenius pour $\epsilon = 6,5\%$	88
IV.8	Énergie d'activation par différentes méthodes.	90
IV.9	Barrières d'énergie obtenus en NEB.	92
IV.10	Taille critique de dislocation en fonction de la déformation.	93
IV.11	Volume d'activation en fonction de la déformation.	95
IV.12	Énergie et volume d'activation dans le cuivre.	97
V.1	Segments vis et coin d'une demi-boucle.	102
V.2	Vitesse d'une dislocation traversant l'échantillon.	104
V.3	Extension des dislocations à plusieurs températures.	105
V.4	Vitesse moyenne de dislocation en fonction de la température.	107
V.5	Vitesse moyenne de dislocation en fonction de σ/T	108
V.6	Mécanismes de maclage.	110
V.7	Dynamique du système à 300 K.	111
V.8	État final d'un système à marche quadruple.	112
V.9	Régimes possibles pour l'observation de la nucléation.	118
A.1	Diffusion de silice dans l'aluminium.	123
B.1	Gradients simples et conjugués.	127
C.1	Principe du programme d'analyse.	140
C.2	Calcul des déplacements relatifs.	141
C.3	Déplacements normalisés.	141
C.4	Exemple d'ajustement des déplacements avec arctan.	142

Table des figures

Introduction générale

La déformation plastique des matériaux cristallins est souvent liée à la mobilité des dislocations. Dans les matériaux fragiles, cette mobilité est réduite du fait de la nature du matériau, ou bien d'une trop grande densité de défauts en volume empêchant la propagation des dislocations. Ainsi, l'application d'une contrainte suffisamment forte entraîne la propagation de fissures et la fracture du matériau. C'est principalement le cas des verres, des céramiques, et aussi des semiconducteurs dans les conditions usuelles. Au contraire, la ductilité est préservée tant que les dislocations ont une bonne mobilité ; le matériau se déforme alors en conservant l'unité de sa structure. C'est le cas de la plupart des métaux, qui sont assez malléables. Les mécanismes impliqués dans la préservation du caractère ductile des matériaux massifs reposent sur la multiplication de dislocations, lesquelles permettent de relaxer la contrainte. Un mécanisme bien connu est celui de Frank-Read [Hirth et Lothe 1982], par lequel une dislocation épinglée à ses deux extrémités donne naissance à de nombreuses boucles de dislocations.

Dans les matériaux nanostructurés, les dimensions réduites rendent l'activation de sources de dislocations bien plus improbable ; souvent le nombre de dislocations préexistantes est aussi très faible. Leur multiplication n'est donc pas le mécanisme principal à l'œuvre lors de la déformation du matériau. La plasticité opère plutôt par la formation de nouvelles dislocations depuis des sites particuliers comme les joints de grains, les fronts

Introduction générale

de fissure, les précipités, les interfaces, ou encore les défauts de surface (marches, terrasses, îlots...). Les surfaces présentent un intérêt particulier, car elles sont présentes quelles que soient les dimensions de l'échantillon choisi. Dans les matériaux possédant une ou plusieurs dimensions nanométriques, elles jouent un rôle prépondérant ; leur étude revêt ainsi un caractère général. Des questions d'intérêt se posent alors sur les processus physiques à l'œuvre (type de défaut sur la surface, mécanisme de formation), et les grandeurs associées à la nucléation des dislocations (contrainte, température, énergies mises en jeu...).

Des techniques expérimentales permettent d'étudier la formation des dislocations depuis des surfaces, et d'accéder à des grandeurs pertinentes. Seulement l'expérience reste mal adaptée pour étudier les tout premiers stades de la plasticité à l'échelle atomique et avec une résolution temporelle suffisante, d'où l'idée de se tourner vers des modèles théoriques. La théorie élastique, qui décrit les dislocations comme des défauts linéaires se déplaçant dans un milieu continu, permet une première approche. Cependant elle n'est plus valide lorsque l'on s'intéresse au cœur des dislocations, ou lorsqu'une dislocation est très proche d'une discontinuité comme une surface. Nous verrons que des calculs atomistiques sont nécessaires pour saisir les détails de la nucléation aux plus petites échelles.

Dans cette thèse, nous cherchons donc à déterminer, par des simulations à l'échelle atomique avec des potentiels semi-empiriques, les paramètres associés à la nucléation de dislocations depuis des défauts d'une surface libre dans un métal cubique à faces centrées sous contrainte. Nous avons choisi l'aluminium comme matériau modèle, pour plusieurs raisons. D'un point de vue fondamental, ce matériau est relativement bien connu, relativement isotrope, et de structure cubique à faces centrées pour laquelle la physique des dislocations est également bien connue. Du point de vue technique, les métaux sont décrits de façon satisfaisante avec des potentiels semi-empiriques. Enfin, les métaux présentent un intérêt du point de vue des applications, puisqu'ils sont massivement utilisés notamment dans l'industrie électronique (Annexe A). Pour toutes ces raisons, ce travail de thèse

prend l'aluminium comme matériau modèle ; cependant des comparaisons avec d'autres matériaux seront présentées tout au long de ce manuscrit.

Le Chapitre I décrira l'état de l'art sur la problématique de la nucléation, et différentes études expérimentales et théoriques qui y ont trait ; aussi seront présentées des généralités sur le mécanisme de nucléation de la première dislocation, les différents paramètres qui lui sont associés et les facteurs extérieurs pouvant jouer sur la nucléation, ainsi que l'évolution ultérieure du système. Le Chapitre II présentera les méthodes de simulation et d'analyse que nous avons développées et employées pour investiguer le problème donné. Dans le Chapitre III, différents facteurs pouvant avoir une influence sur le processus de nucléation seront étudiés. Ainsi les rôles respectifs de la température, de l'état de surface, de l'orientation de la contrainte, seront établis de manière qualitative. Dans le Chapitre IV, nous nous attacherons plus particulièrement à caractériser de manière quantitative la barrière d'énergie associée à la nucléation dans une configuration modèle. Enfin, le Chapitre V donnera des éléments sur la cinétique des dislocations et sur l'évolution du système au-delà du premier événement de nucléation.

Introduction générale

Chapitre I

État de l'art : la plasticité naissante dans les nanomatériaux

Dans ce premier Chapitre, nous introduisons les grandeurs et processus associés à la nucléation de dislocations dans les matériaux à l'échelle nanométrique, en donnant des exemples d'études s'étant déjà intéressées aux tout premiers stades de la plasticité de tels matériaux. L'influence de différents facteurs extérieurs, comme la présence de défauts pré-existants, la température ou la vitesse de déformation, sera également discutée à travers des exemples expérimentaux et théoriques. Enfin, nous donnerons des éléments sur la cinétique des dislocations, et les événements plastiques se produisant suite à la nucléation d'une première dislocation.

I.1 Observations de la plasticité dans les nanomatériaux

La formation de dislocations dans les nanomatériaux peut opérer par différents mécanismes, et aboutir à la modification de propriétés macroscopiques. Parmi ces mécanismes, on peut citer la nucléation depuis des joints de grains [Yamakov et al. 2001, Van Swygenhoven et al. 2002, Yamakov et al. 2002], qui mène au durcissement des métaux à l'échelle nanométrique [Buehler et al. 2005, Li 2007]. La nucléation en tête de fissure est soupçonnée de jouer un grand rôle dans la transition fragile-ductile des matériaux [Cleri et al. 1997, Zhou et al. 1997, Bulatov et al. 1998, Scandian et al. 1999, Gally et A. S. Argon 2001, Zhu et al. 2004]. Dans les couches minces épitaxiées, la contrainte due à la différence des paramètres de maille peut mener à la formation de dislocations depuis les interfaces [Ernst 1997, Trushin et al. 2002, Spearot et al. 2005], la nucléation et la propagation des dislocations s'opérant pendant la croissance [Liu et al. 2002].

Dans des nanostructures comme les nanopiliers, la nucléation peut induire la ductilité dans des matériaux qui sont fragiles à l'état massif [Michler et al. 2007] (Fig. I.1 à gauche). Dans les nanopiliers la nucléation est supposée se faire plutôt depuis les surfaces [Zhu et al. 2008]. Les surfaces jouent également un grand rôle dans la déformation plastique des films minces [Wu et Weatherly 2001, Le Bourhis et al. 2001, Patriarche et al. 2001, Largeau et al. 2002].

La nucléation depuis des surfaces peut être étudiée expérimentalement. Par exemple, les essais de nanoindentation sont une méthode de choix puisqu'elles permettent de former des dislocations de façon contrôlée près de la surface [Carrasco et al. 2004]. Des techniques comme la microscopie à force atomique ou bien la microscopie électronique, permettent ensuite l'analyse des plans de glissement, et des marches et terrasses qui se sont formées [Tromas et al. 1999, Gaillard et al. 2003, Tromas et al. 2006] (Fig. I.1 à droite).

I.2 Les paramètres clés de la nucléation

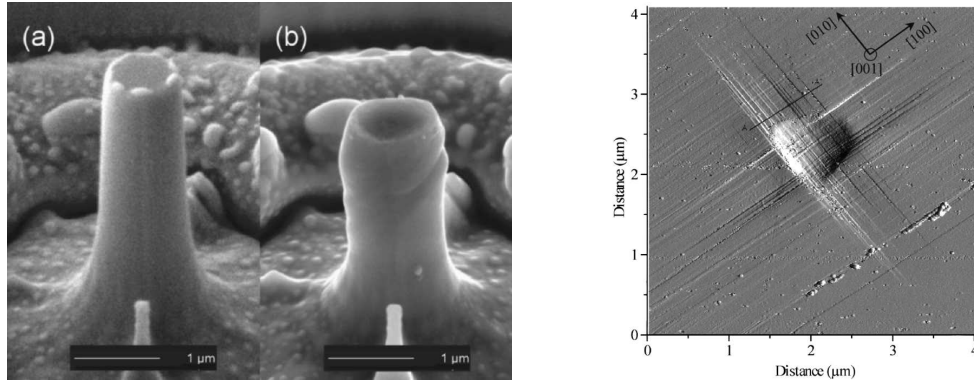


FIG. I.1 – Exemples de propriétés induites par la nucléation de dislocations.

À gauche : observation en microscopie électronique d'un nanopilier d'arsenure de gallium (GaAs), (a) avant et (b) après l'application d'une compression uniaxiale. Fragile à l'état massif, le GaAs présente ici des propriétés ductiles grâce à la nucléation et la propagation de dislocations (tiré de [Michler et al. 2007]).

À droite : observation par microscopie à force atomique de la surface d'un cristal d'oxyde de magnésium (MgO) après nanoindentation. Les bras de rosette, formés par l'émergence des plans de glissement en surface, sont nettement visibles (tiré de [Tromas et al. 1999]).

La nucléation de dislocations depuis des surfaces et interfaces est un processus majeur impliqué dans la déformation plastique des matériaux sous contrainte à l'échelle nanométrique. Quels facteurs entrent en jeu lors de cette nucléation ?

I.2 Les paramètres clés de la nucléation

I.2.1 La barrière d'énergie et son franchissement

Le processus de nucléation dépend intrinsèquement de la compétition entre deux forces qui agissent sur la dislocation naissante (Fig. I.2). D'une part, la surface exerce sur la dislocation une force attractive, appelée force image \vec{F}^i , inversement proportionnelle à la distance dislocation-surface. Cette force tend à empêcher la propagation de la dislocation. D'autre part, la force due à la contrainte appliquée, dite force de Peach-Koehler $\vec{F}^\tau = \tau \vec{b}$ où τ est la contrainte de cisaillement qui s'applique à la dislocation et \vec{b} son vecteur de

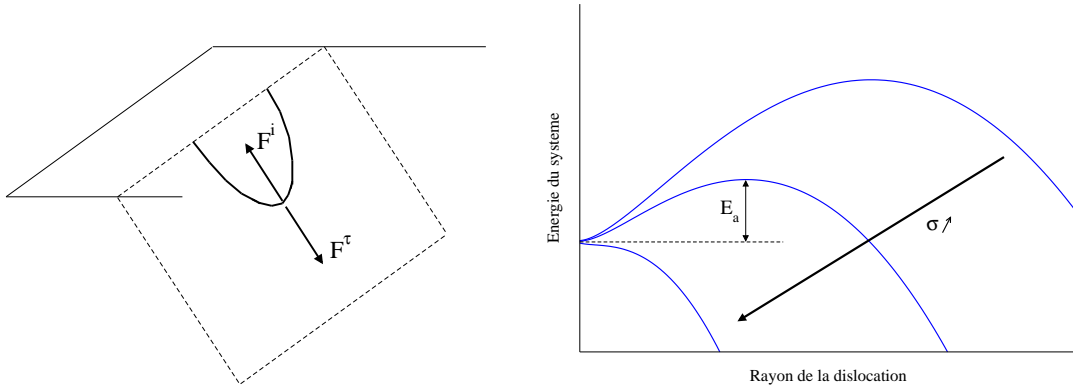


FIG. I.2 – Illustration de la problématique de la nucléation. À gauche : lorsqu’une demi-boucle de dislocation se forme depuis une surface ou une interface, elle est soumise à la force liée à la contrainte F^{σ} et à la force image F^i . À droite : la compétition entre les deux forces fait passer le système par un maximum d’énergie, lorsque les deux forces s’annulent. Le franchissement de cette barrière d’énergie se fait par activation thermique. La barrière s’estompe lorsque la contrainte augmente, jusqu’à une valeur critique dite contrainte athermique où la barrière d’énergie s’annule.

Burgers, tend à faire se propager la dislocation et à relaxer la contrainte.

Du fait de la compétition entre force image et force liée à la contrainte, il existe une position instable près de la surface ; si la dislocation dépasse cette position alors elle est appelée à se propager sous l’effet de la contrainte ; sinon elle se résorbe en surface. Pour une demi-boucle de dislocation il existe donc un rayon critique, auquel est associée une barrière d’énergie ; ces deux paramètres définissent le *point col* de la barrière. La formation d’un défaut étendu coûte de l’énergie au système pour contrecarrer la force image, tandis que la propagation de la dislocation relaxe la contrainte et diminue l’énergie du système.

Le franchissement de la barrière d’énergie se fait grâce à l’agitation thermique. À 0 K la barrière d’énergie demeure infranchissable, aussi petite fût-elle. À mesure que la température T augmente, la fréquence ν de franchissement de la barrière d’énergie devient plus grande :

$$\nu = N\nu_0 \exp\left(-\frac{F}{kT}\right) \quad (\text{I.1})$$

I.2 Les paramètres clés de la nucléation

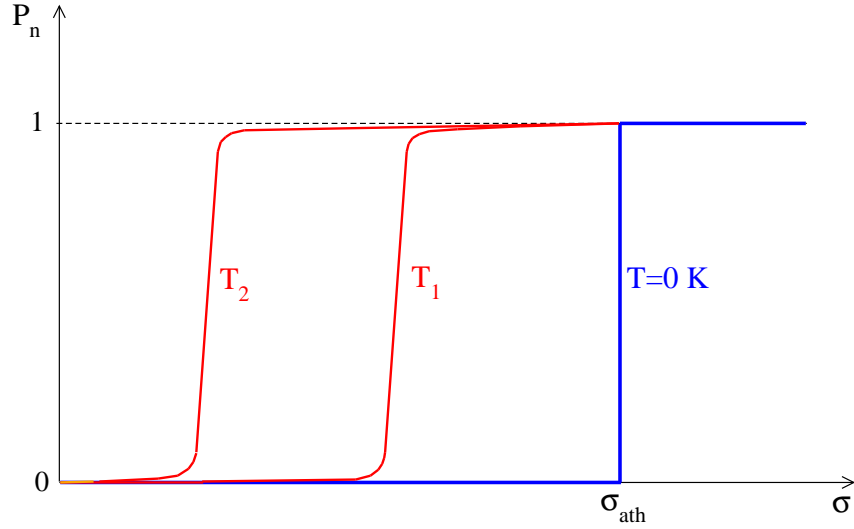


FIG. I.3 – Pour un mécanisme donné, la probabilité de nucléation dépend de la contrainte et de la température. À température nulle (courbe bleue), le franchissement d’une barrière d’énergie est impossible aussi petite fût sa valeur, il faut donc atteindre la contrainte athermique σ_{ath} pour que l’événement de nucléation ait lieu. Avec l’aide de la température, la barrière peut être franchie; plus la température est élevée ($T_2 > T_1 > 0$ K) et plus la nucléation devient probable à faible contrainte.

où ν_0 est la fréquence d’essai, N le nombre de sites possibles pour la nucléation, et F l’énergie libre du système. Cette fréquence est d’autant plus importante que l’énergie d’activation est petite, ou que la température est élevée : le processus de franchissement de la barrière est *thermiquement activé*.

Parmi les forces en jeu, la force image ne dépend que de la distance dislocation-surface (ou du rayon de la demi-boucle de dislocation). Donc pour un mécanisme donné, les paramètres associés à la barrière d’énergie ne dépendent que de la contrainte appliquée σ (Fig. I.2) : plus la contrainte sera élevée et plus l’énergie d’activation et le rayon critique deviendront faibles. Pour une contrainte critique σ_{ath} dite athermique, la barrière s’estompe complètement et la nucléation devient inévitable, même à 0 K.

La fréquence de franchissement de la barrière d’énergie est l’inverse du temps nécessaire pour qu’une dislocation se forme. Dans leur étude sur les nanopiliers, Zhu *et al.*

Chapitre I. État de l'art : la plasticité naissante dans les nanomatériaux

ont rappelé la relation entre cette fréquence et la "probabilité de survie" $f(t)$ du matériau [Zhu et al. 2008], ou probabilité que le matériau reste élastique pendant un temps t donné. Ici, nous parlerons plutôt de probabilité de nucléation par unité de temps δt , qui peut être définie comme $P_n = 1 - f(\delta t)$. L'effet de la température est schématisé sur la Fig. I.3. À température nulle, cette probabilité P_n vaut strictement 0 en-dessous de la contrainte athermique σ_{ath} , et 1 au-dessus. Cette probabilité devient non nulle pour des contraintes de plus en plus faibles à mesure que T augmente. Lors d'un essai mécanique, on observera donc une diminution de la contrainte de nucléation si l'on augmente la température. La courbe prend également une pente plus douce, traduisant l'aspect stochastique que revêt l'activation thermique.

La nucléation est donc un processus thermiquement activé, nécessitant le franchissement d'une barrière d'énergie. Par quels facteurs extérieurs cette barrière est-elle conditionnée? La nucléation se produit-elle depuis des sites particuliers?

I.2.2 Rôle de l'état de surface

Nous l'avons vu, le paramètre essentiel influant sur la barrière d'énergie est la contrainte : plus elle sera élevée et plus l'énergie d'activation sera petite. Certaines configurations atomiques permettent de concentrer la contrainte localement, rendant la barrière à franchir bien plus faible à ces endroits. Des observations au microscope électronique à transmission (MET) de films minces (Fig. I.4) indiquent que la nucléation se produit depuis des sites particuliers en surface, les dislocations se propageant dans des plans denses [Le Bourhis et al. 2001, Patriarche et al. 2001, Largeau et al. 2002]. Les dislocations traversent ensuite parfois l'interface film-substrat [Wu et Weatherly 2001]. Dans le cas des surfaces libres, l'expérience montre [Albrecht et al. 1995] que les défauts de surface tels que les marches, les terrasses, ou les îlots, sont des lieux privilégiés pour la nucléation. Enfin, des essais en nanoindentation montrent que la contrainte de nucléation diminue

I.2 Les paramètres clés de la nucléation

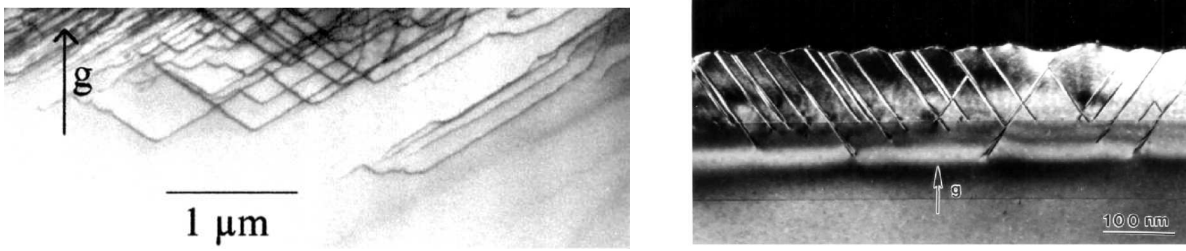


FIG. I.4 – Dislocations formées depuis des surfaces. Deux types de plans de glissement sont activés ; les dislocations se forment depuis des sites particuliers en surface.

À gauche : observation MET de dislocations formées depuis la surface d'un film de GaAs (d'après [Patriarche et al. 2001]).

À droite : observation MET d'un film de $\text{In}_{0.72}\text{Ga}_{0.28}\text{P}$ déformé plastiquement. Les dislocations ont ici traversé l'interface pour pénétrer le substrat, et ont mené à la formation de micro-macles (d'après [Wu et Weatherly 2001]).

lorsque l'indentation se fait près d'une marche de surface [Zimmerman et al. 2001].

Ces observations semblent montrer que les défauts de surface ont pour effet de concentrer la contrainte. Ce résultat a été confirmé par des simulations Monte-Carlo [Dalla Torre et al. 1998] et en dynamique moléculaire [Brochard et al. 2000b, Segall et al. 2006b], montrant que la nucléation tend à se produire dans les plans de glissement contenant le défaut de surface. Dans le cas de marches monoatomiques, il a aussi été montré que la nucléation se fait dans le plan de glissement qui entraîne une diminution de la hauteur de la marche [Brochard et al. 2000a].

Expérimentalement, les marches de surface sont souvent irrégulières. Des observations en microscopie électronique à balayage [Pirouz et Ning 1995] et en transmission [Edirisinghe et al. 1997] ont amené à la proposition que des décrochements le long des marches de surface servaient de points d'ancrage et de sites privilégiés à la formation de boucles de dislocations. Ces défauts supplémentaires sont alors supposés concentrer encore plus de contrainte.

Il est également soupçonné que la hauteur des marches de surface joue un rôle im-

Chapitre I. État de l'art : la plasticité naissante dans les nanomatériaux

portant. Des simulations utilisant le modèle de Peierls-Nabarro et des simulations en dynamique moléculaire dans le molybdène et le tantale [Li et Xu 2006, Segall et al. 2006a, Li et Xu 2007] indiquent que la contrainte de nucléation diminue de moitié lorsque la hauteur de marche augmente d'un ordre de grandeur. Les auteurs ont également proposé que le plan de glissement activé pouvait changer suivant la hauteur de marche. Ce changement de mécanisme indique que selon la hauteur de la marche, les barrières d'énergies dans certains plans de glissement deviendront plus faibles que dans d'autres.

L'état de surface est donc un facteur déterminant pour la formation de dislocations. Les défauts de surface seront des sites privilégiés pour la nucléation. Selon le type du défaut et sa géométrie, la barrière d'énergie pourra se trouver plus ou moins fortement abaissée localement et faciliter ainsi la nucléation. Le rôle de différents défauts cités ci-dessus sera déterminé précisément dans notre étude.

I.2.3 Influence de la vitesse de déformation

Selon le matériau ou le type de défaut (marche, fissure...), la vitesse de déformation peut influencer sur la contrainte de nucléation. La Fig. I.5 illustre les facteurs mis en jeu ; nous appelons σ_n la contrainte pour laquelle $P = 0,5$. Dans le matériau fictif (1), la probabilité de nucléation par unité de temps P_n varie doucement, et elle est non négligeable même très en-dessous de σ_n . Lors d'un essai mécanique utilisant une faible vitesse de déformation, le système restera un temps δt relativement long à ces faibles contraintes, rendant la nucléation très probable. Au contraire, une vitesse de déformation élevée ne laissera pas suffisamment de temps au système pour nucléer à faible contrainte. La nucléation ne pourra avoir lieu, dans des temps aussi courts, qu'à des contraintes bien supérieures à σ_n , lorsque P_n avoisinera 1. Ainsi, le matériau fictif (1) possède une grande sensibilité de sa contrainte de nucléation vis-à-vis de la vitesse de déformation. Le matériau fictif (2), en revanche, connaît une variation brutale de P_n autour de σ_n ; en-dessous de cette

I.2 Les paramètres clés de la nucléation

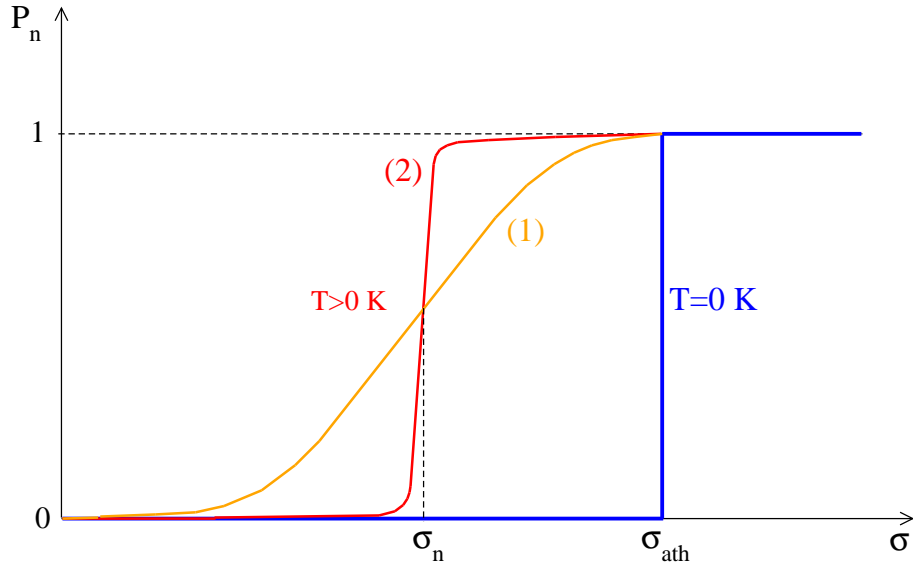


FIG. I.5 – Évolution de la probabilité de nucléation en fonction de la vitesse de déformation ; σ_n est la contrainte pour laquelle $P = 0,5$. Selon le type de défaut ou le matériau, la vitesse de déformation jouera un grand rôle sur la contrainte de nucléation (1), ou au contraire influera peu (2).

contrainte la probabilité est quasi-nulle, au-dessus elle est presque égale à 1. Lors d'un essai mécanique, un tel matériau sera donc assez peu sensible à la vitesse de déformation, la plasticité se produisant toujours à peu près à la même contrainte.

Les matériaux réels ont des propriétés situées entre les cas extrêmes (1) et (2) ; la vitesse de déformation aura donc un rôle sur leur déformation plastique. Les considérations ci-dessus expliquent la différence observée entre les contraintes de nucléation obtenues par l'expérience, utilisant des vitesses de déformation plutôt faibles ($\dot{\epsilon} \approx 10^{-3} \text{ s}^{-1}$), et celles obtenues par simulations, lesquelles sont limitées à des vitesses de déformation élevées ($\dot{\epsilon} \approx 10^7 - 10^8 \text{ s}^{-1}$), et nécessitent généralement des contraintes plus élevées pour permettre la nucléation.

I.2.4 Résumé : les paramètres associés à la barrière d'énergie, et les facteurs pouvant les modifier

Pour un mécanisme de nucléation donné, la barrière d'énergie est caractérisée par une hauteur (l'énergie d'activation) et un rayon critique. Ces paramètres ne dépendent que de la contrainte appliquée ; modifier d'autres facteurs extérieurs comme la température ou la vitesse de déformation n'influera pas sur la barrière. Nous dirons donc que l'énergie d'activation et le rayon critique sont des paramètres *intrinsèques* au mécanisme considéré.

A contrario, la fréquence ou la contrainte de nucléation sont des paramètres qui sont sensibles aux conditions extérieures (température, vitesse de déformation). Nous dirons qu'il s'agit de paramètres *extrinsèques* de la nucléation.

I.3 Modélisation de la nucléation

Si l'expérience permet bien d'observer la formation de boucles de dislocations et de confirmer la sensibilité de la contrainte de nucléation à la présence de défauts de surfaces ou à la vitesse de déformation, elle est en revanche mal adaptée à l'étude des processus mis en jeu à l'échelle atomique, et en particulier pour quantifier la barrière d'énergie associée à la nucléation. Beaucoup d'études ont donc recours à des modèles. Les premiers, développés dans les années 1950, sont basés sur la théorie de l'élasticité.

I.3.1 Modèles élastiques

En 1947, Frank et Read proposaient un mécanisme expliquant la plasticité des matériaux par multiplication de dislocations (sources de Frank-Read). Un tel mécanisme nécessite des dislocations pré-existant dans le matériau pour permettre cette multiplication ; en conséquence, la cause de l'apparition de nouvelles dislocations, notamment dans

I.3 Modélisation de la nucléation

les matériaux épitaxiés et donc supposés parfaitement cristallins, demeurait inconnue. Frank en 1950, présentait lors d'une conférence des arguments sur l'origine des dislocations [Frank 1950]. Sur la base de la théorie de l'élasticité, il y développait déjà des expressions approchées donnant le rayon critique qu'une boucle de dislocation en volume devait dépasser pour se former dans un cristal parfait. Les rayons critiques obtenus étaient bien trop grands pour que des boucles de dislocations puissent se nucléer spontanément, même sous l'action d'une très forte contrainte appliquée; aussi devait-il exister d'autres mécanismes expliquant la présence des toutes premières dislocations. Frank citait notamment la formation de partielles de Shockley lorsque deux terrasses croissent en étant décalées d'un vecteur de Burgers lors d'une épitaxie, laissant des dislocations incluses dans le cristal lors de la croissance.

La formation des premières dislocations depuis les surfaces et interfaces de telles structures épitaxiées a fait l'objet de nombreuses recherches dans les années 1980 et 90, notamment à cause des applications en électronique. Lors de la croissance, la différence de paramètres de maille entre substrat et film induit des contraintes. Pour de faibles épaisseurs (peu de couches atomiques), le film est capable d'adapter son paramètre de maille (pseudomorphie); mais au-delà d'une certaine épaisseur critique, le film déposé tendra à adopter le paramètre de maille associé au massif, la contrainte se concentrera localement et mènera à la nucléation de dislocations. Des modèles élastiques, basés sur différentes approximations, ont été proposés pour permettre d'évaluer l'épaisseur critique d'un film sous contrainte [Hirth et Evans 1986, Kamat et Hirth 1990, Zou et Cockayne 1996].

L'un de ces modèles est celui proposé par Beltz et Freund [Beltz et Freund 1993, Beltz et Freund 1995]. Il a notamment été employé en complément d'études expérimentales [Bei et al. 2008], et cité comme référence par Hirth dans une revue des problèmes liés à la plasticité des matériaux [Hirth 2000]. Ce modèle a pour particularité de permettre pour la première fois l'obtention d'une expression exacte de l'énergie élastique

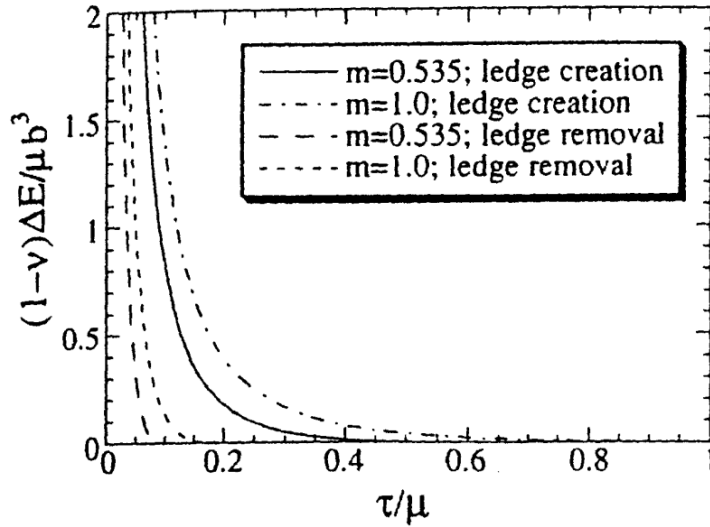


FIG. I.6 – Évolution de l'énergie d'activation associée à la nucléation d'une demi-boucle de dislocation circulaire en fonction de la contrainte, d'après le modèle de Beltz et Freund [Beltz et Freund 1993], le facteur géométrique m valant 1 ou 0,535.

d'une boucle de dislocation semi-circulaire émanant d'une surface libre; c'est pourquoi nous l'avons retenu pour notre étude (il sera développé au Chap. II), et adapté au mécanisme auquel nous nous intéresserons (Chap. IV). Beltz et Freund ont calculé l'énergie d'activation en fonction de la contrainte appliquée, dont la variation est reportée sur la Fig. I.6. Cette énergie diminue de façon assez brutale lorsque la contrainte augmente. Elle est aussi plus faible si la nucléation entraîne la disparition plutôt que la création d'une marche de surface, confirmant qu'il est plus facile de nucléer à partir d'une marche.

Cependant, les auteurs eux-mêmes discutent de la validité des modèles élastiques, puisque selon la contrainte appliquée le rayon critique peut être de l'ordre de quelques vecteurs de Burgers, échelle à laquelle la théorie de l'élasticité est censée atteindre sa limite de validité. Par exemple, dans ces modèles, l'énergie d'une dislocation infiniment proche d'une surface diverge. De plus, ils se limitent souvent à considérer une forme de boucle circulaire, et ne permettent pas d'étudier les différents états (système parfait, pré-cisaillement, glissement) par lesquels passe le système lors de la nucléation : en élasticité, soit le système contient une dislocation, soit il en est dépourvu; ces restrictions en font

un cadre plutôt mal adapté pour l'étude des prémices de la nucléation.

Ainsi, les modèles basés sur la théorie élastique fournissent des équations analytiques, permettant d'appréhender relativement simplement l'évolution avec la contrainte appliquée de l'énergie d'activation et du rayon critique. Cependant de tels modèles nécessitent des informations à l'échelle atomique, notamment pour ce qui concerne le type de dislocation formée, la forme des boucles, et les énergies mises en jeu.

I.3.2 Simulations atomistiques

Plusieurs méthodes de simulations numériques à l'échelle atomique ont été employées pour étudier le problème de la nucléation. Nous en avons utilisé dans ce travail de thèse, aussi nous les décrirons dans le Chapitre II. Il est néanmoins important ici d'exposer, à travers des études déjà menées, ce que ces méthodes permettent de réaliser, et de souligner leur adéquation à notre problème.

Des méthodes de relaxation ont permis de confirmer que la nucléation est plus facile depuis des marches [Brochard et al. 2000b], pour deux raisons : le gain d'énergie lié à la disparition de la marche, et la concentration de contrainte qui induit un précisaillement dans un plan dense passant par la marche. Ce précisaillement, qui précède la nucléation en elle-même, se révèle être de plus en plus prononcé à mesure que la contrainte appliquée augmente, et conditionne le plan de glissement qui s'activera bien avant que la nucléation ait effectivement lieu [Brochard et al. 2000a].

Cependant, les méthodes de relaxation, souvent dites statiques ou "à 0 K", ne permettent la nucléation qu'à une contrainte pour laquelle la barrière d'énergie s'annule, c'est-à-dire égale ou supérieure à la contrainte athermique σ_{ath} . Souvent, seules des dislocations rectilignes sont obtenues, ce qui ne correspond pas aux observations expérimentales.

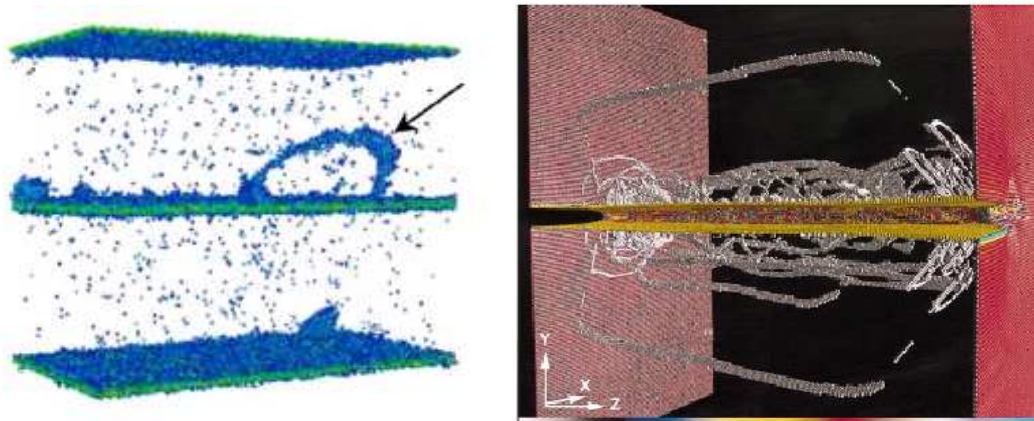


FIG. I.7 – Exemples de nucléation de dislocations à partir de différents défauts, obtenus par simulation. À gauche, une demi-boucle de dislocation se nucléée depuis une interface [Spearot et al. 2005]. À droite, des boucles de dislocations se forment depuis un front de fissure [Zhou et al. 1997].

tales. La dynamique moléculaire (DM), en simulant les mouvements atomiques individuels et en accédant aux propriétés thermodynamiques du système en fonction de la température, permet une description plus "réaliste". Ce type de simulation reproduit la formation de demi-boucles de dislocation (Fig. I.7), comme celles obtenues depuis une interface [Spearot et al. 2005], un front de fissure [Zhou et al. 1997], ou bien encore la surface d'un nanopilier [Zhu et al. 2008]. En réalisant des simulations à différentes températures, la méthode d'Arrhenius permet en principe l'obtention de l'énergie d'activation associée au processus. Une telle méthode a été employée avec succès par Vegge *et al.* pour étudier le glissement dévié de dislocations vis dans le cuivre [Vegge et al. 2000], fournissant l'énergie d'activation et la fréquence d'essai du processus.

Enfin, la méthode Nudged Elastic Band (NEB) est une autre méthode statique, permettant la détermination d'états de transition. Elle a été largement utilisée pour obtenir des informations quantitatives sur la barrière d'énergie, dans le cas de nucléation depuis un front de fissure dans le cuivre [Zhu et al. 2004] (Fig. I.8) ou depuis la surface d'un nanopilier de cuivre [Zhu et al. 2008]. Cette méthode donne accès au chemin d'énergie minimum (CEM) emprunté par le système, donc à l'énergie d'activation, mais également

I.4 Évolution du système après nucléation

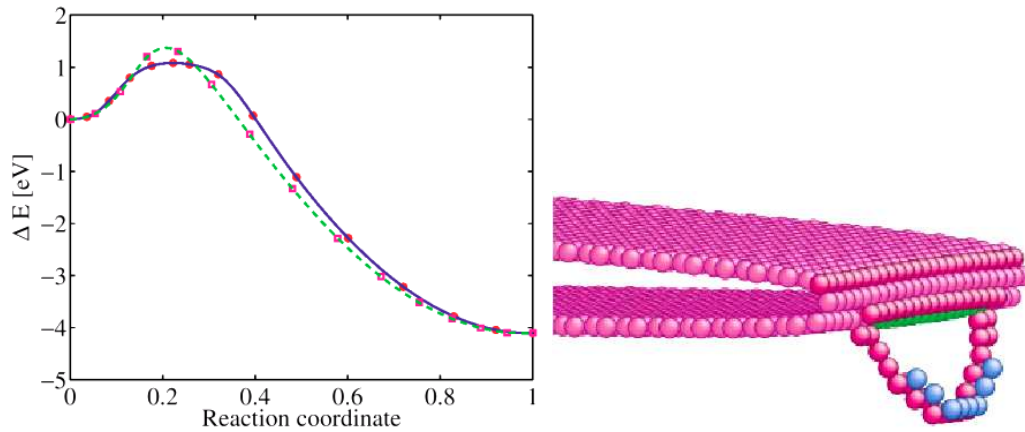


FIG. I.8 – Chemin d'énergie minimum (à gauche) pour la formation d'une dislocation rectiligne (pointillés) et d'une demi-boucle de dislocation (ligne continue) depuis un front de fissure (à droite) dans le cuivre, obtenue avec la méthode NEB [Zhu et al. 2004].

à la configuration du système au point col.

Ainsi les méthodes atomistiques, statiques ou dynamiques, permettent d'obtenir des informations clés sur les détails de la nucléation à l'échelle atomique.

I.4 Évolution du système après nucléation

I.4.1 Cinétique des dislocations

Une fois la dislocation formée, elle se propage dans le matériau avec une vitesse qui dépend notamment de son vecteur de Burgers et de sa direction de propagation. Dans le cas de boucles de dislocations, rien n'oblige la dislocation à avoir une forme parfaitement circulaire comme le présupposent les modèles élastiques cités plus haut. En effet, des segments à dominante coin ou vis peuvent avoir des vitesses différentes, donnant à la boucle une forme plutôt elliptique [Tanguy et al. 2003].

Lorsqu'elle se déplace, une dislocation peut interagir avec les phonons, et générer

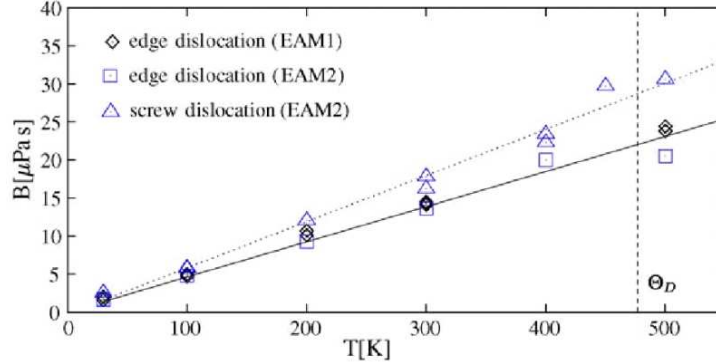


FIG. I.9 – Évolution du coefficient d'amortissement B en fonction de la température T , pour des dislocations vis et coin, obtenue par simulations atomistiques dans le nickel avec deux potentiels différents [Bitzek et Gumbsch 2005]. La ligne continue correspond à l'estimation de Leibfried (Eq. I.3). Plus B est grand et plus les dislocations sont freinées.

des vibrations acoustiques dans le matériau ; plus cette interaction sera forte, et plus la dislocation sera ralentie. Pour une dislocation dont la ligne est contenue dans un plan défini par les directions x et y , et se déplaçant suivant la direction x , l'équation du mouvement peut s'écrire [Bitzek et Gumbsch 2005] :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(m \frac{\partial x}{\partial t} \right) + B \frac{\partial x}{\partial t} - \Gamma \frac{\partial^2 y}{\partial x^2} = F \quad (\text{I.2})$$

où F est la force totale agissant sur la dislocation. Le premier terme est la force donnant une accélération à la dislocation, m étant la masse effective associée à la dislocation. Le troisième terme est l'auto-interaction de la dislocation, qui tend à minimiser sa tension de ligne Γ .

Le second terme décrit un amortissement visqueux, lié à l'interaction avec les phonons. Leibfried a formulé une expression pour le coefficient d'amortissement B [Leibfried 1950, Hirth et Lothe 1982, Bitzek et Gumbsch 2005], qui dépend de la température :

$$B = \frac{3Zk_B T}{20c_t b^2} \quad (\text{I.3})$$

où Z est le nombre d'atomes par maille, T la température, b le vecteur de Burgers de la

I.4 Évolution du système après nucléation

dislocation, et c_t la célérité d'une onde acoustique transverse. Cette expression indique que plus la température est élevée, et plus l'amortissement est important, donc plus la vitesse des dislocations *diminue*.

C'est ce qui a été observé par exemple par Olmsted *et al.* lors de simulations atomistiques dans l'aluminium [Olmsted et al. 2005]. La vitesse des dislocations atteint un plateau à environ 2,6 km/s pour des dislocations coin ; les dislocations restent donc subsoniques¹. Ces auteurs ont également montré une dépendance de la vitesse des dislocations avec la température, la vitesse diminuant lorsque la température augmente. Bitzek *et al.* ont également obtenu une augmentation sensible de B lorsque la température augmente, au moyen de simulations dans le nickel [Bitzek et Gumbsch 2005] (Fig. I.9).

Enfin, le mouvement des dislocations peut également être perturbé par l'existence de défauts dans le matériau [Hirth et Lothe 1982]. Divers mécanismes peuvent réduire la mobilité des dislocations et mener au durcissement du matériau. C'est le cas lorsqu'une dislocation interagit avec des défauts ponctuels, ou lorsque plusieurs dislocations interagissent entre elles pour former des défauts ponctuels ou des structures sessiles. Dans cette thèse, nous ne considérerons pas l'existence d'autres défauts dans le matériau.

I.4.2 Évènements plastiques subséquents

Suite à la formation de la première dislocation depuis un défaut de surface ou d'interface, d'autres événements plastiques se produisent généralement. De même que pour le premier événement de nucléation, le franchissement d'une barrière d'énergie peut être en jeu. Si la première dislocation est une partielle, deux mécanismes sont en compétition : la formation d'une partielle de queue, venant effacer le défaut d'empilement de la première dislocation ; et la formation d'une autre partielle dans un plan de glissement adjacent,

¹Dans l'aluminium, la plus petite célérité d'une onde acoustique dans la direction de propagation d'une dislocation coin $\langle 110 \rangle$ est celle d'une onde transverse, environ 3,2 km/s.

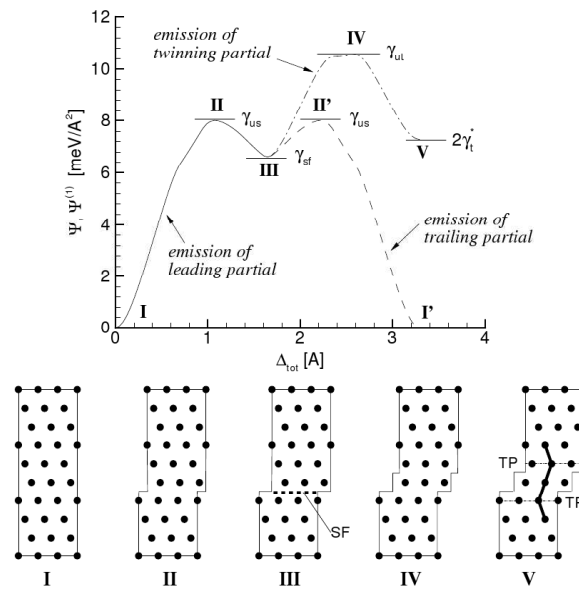


FIG. I.10 – Mécanismes associés à la formation d'une partielle de tête (ligne continue) ; d'une partielle de queue (tirets) ; et d'une seconde partielle de tête dans un plan de glissement adjacent, menant à la formation d'une macle (point-tirets), depuis un front de fissure dans l'aluminium. Les valeurs d'énergie des points II' et IV vont influencer sur le mécanisme qui sera activé suite à la formation d'une première partielle : maclage ou formation de la partielle de queue (tiré de [Tadmor et Hai 2003]).

I.4 Évolution du système après nucléation

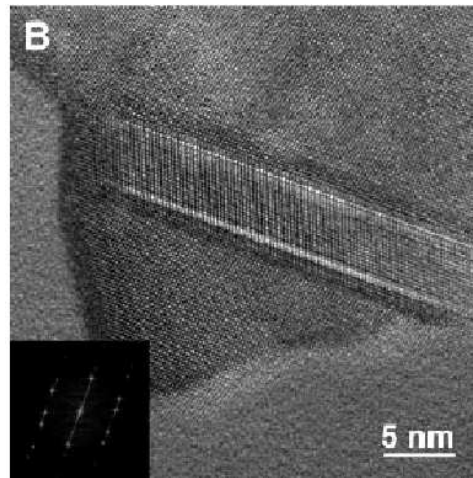


FIG. I.11 – Observation de micro-macles se formant depuis des joints de grains dans de l’aluminium polycristallin [Chen et al. 2003].

menant au maclage. Tadmor *et al.*, en se basant sur le modèle de Peierls, ont défini des critères pour l’activation de l’un ou l’autre mécanisme [Tadmor et Hai 2003] (Fig. I.10). Néanmoins ces auteurs précisent qu’avec une telle approche, il est difficile d’établir un critère pour le maclage; de plus certains facteurs, tels que la température ou la vitesse de déformation, ont été ignorés dans leur modèle, et peuvent jouer un rôle non négligeable sur les barrières d’énergie. Dans notre cas, la dynamique moléculaire permettant d’observer ces différents événements plastiques, au cours de notre étude s’est posée la question du mécanisme qui se trouvait favorisé.

Des observations au microscope électronique à transmission (MET) indiquent l’existence de macles et de propagation de fissures dans une hétérostructure [Wu et Weatherly 2001] (Fig. I.4). Les auteurs soulignent que le fait que les macles pénètrent l’interface peut être expliqué par l’équilibre entre les forces associées à la différence des paramètres de mailles, la surface libre, et l’énergie du défaut d’empilement ou de la macle. L’énergie de défaut d’empilement étant relativement élevée dans l’aluminium, il est souvent supposé que la formation de dislocations parfaites, minimisant l’étendue des défauts d’empilement, est énergétiquement plus favorable que la formation de macles. Cependant, des observations en MET ont aussi révélé que la formation de partielles et de macles depuis les joints de

Chapitre I. État de l'art : la plasticité naissante dans les nanomatériaux

grains est possible dans l'aluminium [Chen et al. 2003] (Fig. I.11). Les auteurs ont observé que plus les grains étaient de petite taille, et plus la formation de macles était probable.

Un mécanisme pour la formation de macles a été proposé par Pirouz [Pirouz et Ning 1995]. La nucléation d'une première dislocation partielle laisse une marche en surface qui est, comme on l'a vu précédemment, un site privilégié pour la nucléation, et permet donc la formation d'autres dislocations partielles dans les plans de glissement adjacents. La macle peut ainsi s'étendre tant que la contrainte est suffisante. À l'intérieur de la macle, le cristal retrouve sa structure d'origine, de sorte que la croissance de la macle ne coûte pas d'énergie au système ; son énergie est celle du défaut empilement associé à la première dislocation partielle.

I.5 Conclusions

La problématique de la nucléation dans un matériau sous contrainte est celle du franchissement d'une barrière d'énergie, qui résulte de la compétition entre la force image attirant la dislocation en surface, et la force qui tend à relaxer la contrainte dans le matériau. Cette barrière d'énergie est caractérisée par des paramètres d'activation, qui sont dits intrinsèques car ils dépendent uniquement de la contrainte appliquée : un rayon critique de dislocation, une énergie et un volume d'activation. Pour caractériser le processus de nucléation, il importe donc de déterminer quantitativement ces paramètres.

D'autres paramètres associés à la nucléation, comme la fréquence ou la contrainte de nucléation, peuvent être considérés comme *extrinsèques*, car ils peuvent dépendre d'autres facteurs extérieurs comme la température ou la vitesse de déformation. Ainsi, les rôles joués par ces différents facteurs seront à déterminer dans notre étude.

Plusieurs méthodes théoriques permettent l'étude de la nucléation. La théorie de l'élas-

I.5 Conclusions

ticité permet d'établir des modèles analytiques, fournissant les paramètres d'activation la barrière d'énergie et leur évolution en fonction de la contrainte. Cependant, les modèles élastiques existant présupposent la nature de l'événement de nucléation (vecteur de Burgers, forme de la boucle), et ne prennent pas en compte le cœur des dislocations. L'apport complémentaire de simulations à l'échelle atomique s'avère donc indispensable. Ces simulations, statiques (relaxation, NEB) ou en dynamique moléculaire, apparaissent comme des méthodes de choix pour la caractérisation précise de l'événement de nucléation.

Un autre avantage des simulations en dynamique moléculaire est la possibilité d'accéder à l'évolution du système après nucléation. Nous pourrions ainsi vérifier si les dislocations prennent plutôt des formes circulaires ou elliptiques, obtenir des informations sur les vitesses des différents segments des boucles de dislocation, et savoir si ces vitesses dépendent ou non de la température. Nous pourrions également observer quel type de mécanisme est privilégié dans l'aluminium : la formation de partielles, de parfaites dissociées ou non, la formation de macles...

Dans le Chapitre suivant, nous présenterons différentes méthodes utilisées dans ce travail, permettant l'étude de la nucléation à l'échelle atomique, ainsi que les caractéristiques du modèle d'étude que nous avons choisi.

Chapitre I. État de l'art : la plasticité naissante dans les nanomatériaux

Chapitre II

Modèles et méthodes

L'état de l'art de la plasticité des nanomatériaux montre que le problème de la formation des dislocations est vaste et complexe. Dans ce travail de thèse, nous nous intéressons à la nucléation depuis des surfaces libres, dans les métaux cubiques à faces centrées (cfc) placés sous une contrainte uniaxiale. Nous rappelons dans ce Chapitre quelques généralités sur les dislocations dans les métaux cfc, et présentons le principe des potentiels inter-atomiques EAM (Embedded Atom Method) généralement utilisés pour modéliser ce type de matériau. Enfin, nous décrivons les méthodes que nous avons employées pour étudier la nucléation.

II.1 Dislocations dans les métaux cfc

L'aluminium cristallise dans la structure cfc, comme de nombreux métaux. Dans une telle structure, les plans de glissement primaires sont les plans denses de type $\{111\}$ (Fig. II.1). Deux types de dislocations glissiles *parfaites*, c'est-à-dire de vecteur de Burgers $\frac{1}{2} \langle 110 \rangle$ et respectant l'empilement de la structure cfc ABCABCABC, peuvent se for-

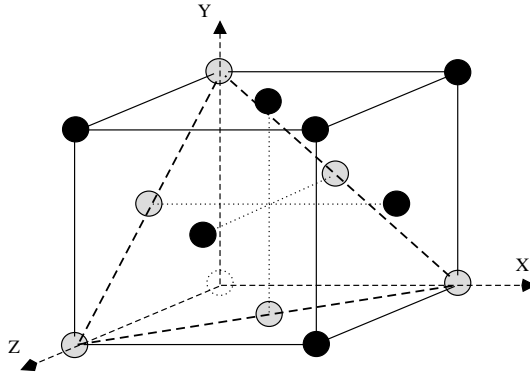


FIG. II.1 – Structure d’un système cubique à faces centrées (cfc). Un plan dense $\{111\}$ est représenté en pointillés gras sur cette figure. Les atomes dans ce plan sont représentés en gris, ceux au-dessus en noir, et ceux en-dessous en blanc pointillé.

mer [Hirth et Lothe 1982] : des dislocations vis, ou bien des dislocations dites 60° (angle entre leur vecteur de Burgers et la ligne de dislocation). Elles se dissocient en dislocations *partielles* de Shockley, de vecteur de Burgers $\frac{1}{6} \langle 121 \rangle$, auxquelles sont associées un défaut d’empilement intrinsèque, ABC|BCABC. Dans le cas de dislocations rectilignes, nous nous référerons à ces dislocations partielles par l’angle que fait leur vecteur de Burgers avec la ligne de dislocation, soit 30° ou 90° (Fig. II.2, à gauche). Leurs vecteurs de Burgers seront notés \vec{b}_{30° et \vec{b}_{90° , respectivement.

Des propriétés physiques caractéristiques sont associées à ces dislocations. Les énergies en jeu peuvent être estimées à partir de la γ -surface [Vitek 1968, Brochard 1998], qui correspond à la variation d’énergie du système lorsque deux plans denses se déplacent de façon rigide l’un par rapport à l’autre, d’un vecteur de déplacement $\vec{\tau}$ contenu dans le plan dense. La γ -surface de l’aluminium, obtenue avec le potentiel semi-empirique utilisé dans cette thèse (Annexe B), est représentée sur la Fig. II.3 [Brochard 1998] ; elle permet d’obtenir l’énergie de défaut d’empilement intrinsèque, correspondant par exemple à un déplacement $\vec{\tau} = 2\vec{b}_{coin}/3$ (point rouge), égale ici à $\gamma_i = 0,155 \text{ J.m}^{-2}$.

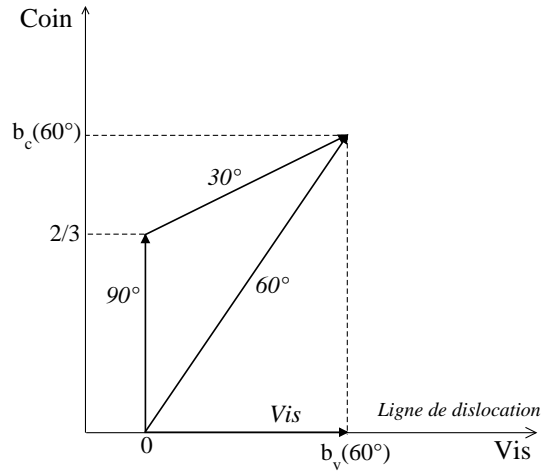


FIG. II.2 – Dans un plan de glissement $\{111\}$ peuvent se former des dislocations parfaites vis ou ayant un vecteur de Burgers à 60° de la ligne de dislocation. Elles peuvent se dissocier en dislocations partielles de Shockley, 90° et 30° .

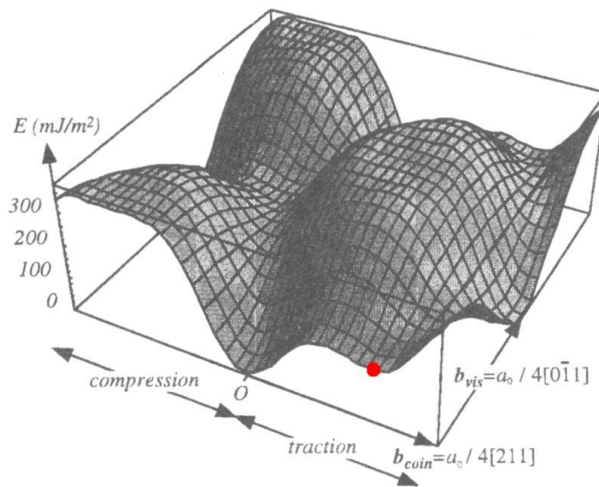


FIG. II.3 – Surface d'énergie de défaut d'empilement généralisé (γ -surface) dans l'aluminium, obtenue avec le potentiel EAM décrit plus loin [Brochard 1998]. Le point rouge, correspondant au déplacement de $2\vec{b}_{coin}/3$, soit une partielle 90° , marque l'énergie γ_i du défaut d'empilement intrinsèque.

II.2 La théorie de l'élasticité : un modèle adapté à l'étude ?

La première approche théorique qui a été employée pour l'étude de la nucléation des dislocations est la théorie de l'élasticité. Comme nous l'avons vu dans le Chap. I, des modèles décrivant la nucléation de demi-boucles peuvent être développés. Ils fournissent une expression analytique de l'évolution de la barrière d'énergie en fonction de la contrainte. Cependant ces modèles présentent des insuffisances, notamment l'impossibilité de décrire le cœur des dislocations, et une divergence de la force image près de la surface.

Nous exposons ici un premier modèle simple, une dislocation rectiligne émergeant depuis une surface libre ; puis nous détaillons le modèle de Beltz et Freund, évoqué au Chap. I, permettant de décrire la formation d'une demi-boucle, et discutons les limites d'un tel modèle.

II.2.1 Dislocation infinie rectiligne

Dans un premier temps, intéressons-nous au cas simple d'une dislocation rectiligne 90° infinie se formant depuis une surface dans un milieu semi-infini isotrope (Fig. II.4). Cette dislocation se meut dans un plan de glissement faisant un angle θ_2 avec la surface. Pour appliquer une contrainte uniaxiale, on impose une déformation $\epsilon = \epsilon_{XX}$ au matériau suivant une direction notée X, le matériau étant déformé suivant les autres directions conformément au module de Poisson ν . La dislocation est alors soumise d'une part à la force due à la contrainte qui tend à l'éloigner de la surface, soit suivant la direction du glissement et par unité de longueur de dislocation¹ :

$$\frac{F^\epsilon}{L} = bE\epsilon \cos \theta_1 \cos \theta_2 \quad (\text{II.1})$$

¹Dans le cas d'une dislocation vis, le facteur $(1 - \nu)$ au dénominateur est à remplacer par 1.

II.2 La théorie de l'élasticité : un modèle adapté à l'étude ?

où $b = \|\vec{b}\|$ est la norme du vecteur de Burgers de la dislocation, et E le module d'Young du matériau. D'autre part, la dislocation située à une distance a de la surface est soumise à la force image qui l'attire vers la surface, qui s'exprime par unité de longueur² :

$$\frac{F^i}{L} = \frac{-\mu b^2}{4\pi(1-\nu)a} \quad (\text{II.2})$$

où μ le module de cisaillement. Enfin, la dislocation étant une partielle, le défaut d'empilement associé, d'énergie surfacique γ_i , apporte une contribution qui tend également à empêcher la propagation de la dislocation :

$$\frac{F^{sf}}{L} = -\gamma_i \quad (\text{II.3})$$

La dislocation est à une position d'équilibre lorsque la somme des forces est nulle, soit $F^\epsilon + F^i + F^{sf} = 0$. Cette position d'équilibre s'exprime (Fig. II.4) :

$$a_c = \frac{\mu b^2}{4\pi \cdot (1-\nu) \cdot (E \cdot b \cdot \cos \theta_1 \cdot \cos \theta_2 \cdot \epsilon - \gamma_i)} \quad (\text{II.4})$$

Cette relation met en évidence la variation de la position d'équilibre inversement proportionnelle à ϵ , issue de la compétition entre la force image et la force liée à la contrainte.

Nous avons calculé cette distance critique en fonction de la déformation, pour une dislocation partielle de Shockley 90°. Pour mettre en évidence l'importance des différents paramètres, trois matériaux différents ont été comparés. Nous avons choisi les deux métaux que sont l'aluminium et le cuivre, qui sont tous deux des métaux cfc mais présentent des propriétés mécaniques sensiblement différentes. Ces propriétés sont reportées dans le Tab. II.1 pour ces deux matériaux, ainsi que pour un matériau fictif possédant les mêmes propriétés que l'aluminium à l'exception de l'énergie de défaut d'empilement γ_i . Les évolutions des distances critiques (Eq. II.4) pour chacun de ces matériaux sont reportées sur la Fig. II.4. En-dessous des courbes, la dislocation subit principalement la force image qui

²Force projetée ici dans le plan de glissement (Fig. II.4).

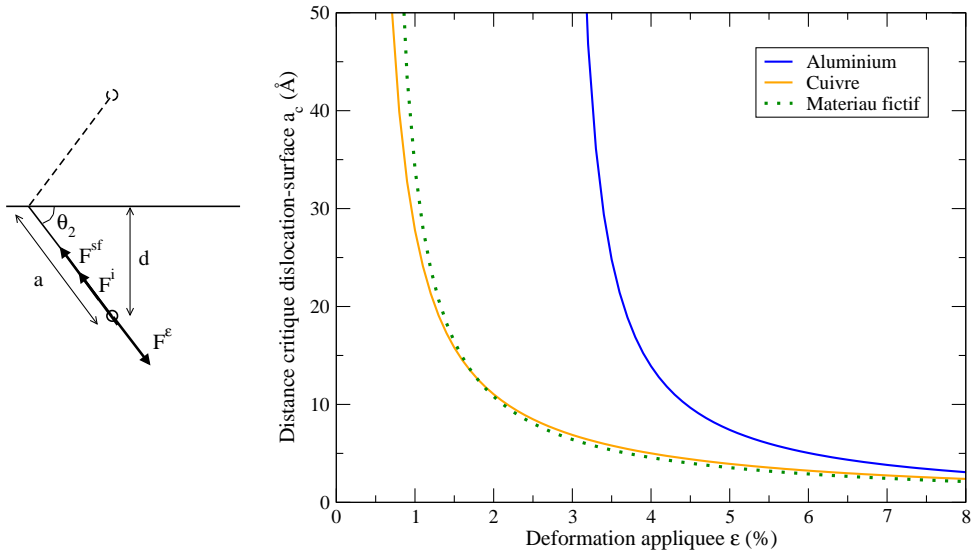


FIG. II.4 – À gauche : une dislocation (cercle) s’est propagée dans son plan de glissement d’une distance a par rapport à la surface (trait plein horizontal). La dislocation image est représentée (cercle pointillé), ainsi que les projections dans le plan de glissement des forces en jeu : la force image F^i , la force liée à la contrainte appliquée F^e , et la force due au défaut d’empilement F^{sf} . À droite : évolution de la distance critique entre une dislocation rectiligne infinie et une surface libre en fonction de la déformation appliquée, d’après le modèle élastique (Eq. II.4). Les propriétés des matériaux sont celles du Tab. II.1.

l’attire en surface ; au-dessus, c’est la force due à la contrainte qui l’emporte et appelle la dislocation à se propager.

Il existe une différence quantitative frappante entre les deux matériaux : dans l’aluminium, la distance d’équilibre a_c augmente dramatiquement lorsque la déformation diminue, dépassant les 50 Å pour $\epsilon \approx 3,5\%$. Dans le cas du cuivre et du matériau fictif, cette distance reste faible jusqu’à une déformation de 2%. En comparant l’aluminium et le matériau fictif, on montre que cette grande différence de comportement est essentiellement due à l’énergie de défaut d’empilement intrinsèque γ , différente d’un facteur 5 entre les deux. Cette énergie joue ici un rôle prépondérant et devra être évaluée correctement dans les modèles.

II.2 La théorie de l'élasticité : un modèle adapté à l'étude ?

	E (GPa)	μ (GPa)	ν	γ_i (J.m ⁻²)	b (Å)
Aluminium	70	26	0,35	0,155	1,641
Cuivre	140	48	0,34	0,029	1,474
Matériau fictif	70	26	0,35	0,029	1,641

TAB. II.1 – Propriétés de l'aluminium, du cuivre, et du matériau fictif employées dans le modèle élastique présenté ici.

II.2.2 Demi-boucle de dislocation

La théorie de l'élasticité permet également de faire une description de la nucléation dans le cas d'une demi-boucle de dislocation se formant depuis une marche de surface. Dans ce cas, en plus de l'interaction avec la surface, la tension de ligne de la boucle de dislocation est également à prendre en compte. Le modèle de Beltz et Freund, évoqué au Chap. I, fournit une base solide pour modéliser un tel mécanisme. Ces auteurs proposent une expression exacte pour l'énergie d'une demi-boucle :

$$U^{half} = \frac{\mu b^2(2-\nu)}{8(1-\nu)} R \left[\ln \left(\frac{8m\alpha R}{b} \right) - 2 \right] \quad (\text{II.5})$$

où R est le rayon de la demi-boucle de dislocation formée, b est la norme de son vecteur de Burgers, μ le module de cisaillement du matériau, ν le module de Poisson, et $\alpha = b/r_0$ est le paramètre de cœur de la dislocation, r_0 étant le rayon de cœur. Beltz et Freund ont introduit dans cette expression un facteur géométrique m , et montrent que ce dernier ne dépend que du module de Poisson ν du matériau :

$$m = \exp \left[\frac{0,07734 - 1,059(2-\nu)}{2-\nu} \right] \quad (\text{II.6})$$

Dans le cas d'une boucle complète, $m = 1$; pour une demi-boucle, la valeur devient $m \approx 0,5$, selon le module de Poisson et la géométrie du système (inclinaison du plan de glissement, etc.). En sus de l'énergie de la demi-boucle (II.5), les auteurs ont considéré le travail effectué par la contrainte appliquée, produit de la force de Peach-Koehler τb et de l'aire de la demi-boucle de dislocation, qui va diminuer l'énergie du système d'un

Chapitre II. Modèles et méthodes

facteur :

$$W^{stress} = \frac{1}{2}\pi R^2 \tau b \quad (\text{II.7})$$

Les auteurs prennent également en compte l'énergie associée à la création (+) ou la disparition (-) d'une marche de surface; soit, si l'on désigne par $E_{ss}b$ l'énergie linéique de la marche (la hauteur de la marche égalant la norme b du vecteur de Burgers de la dislocation formée) :

$$U^{ledge} = \pm 2E_{ss}bR \quad (\text{II.8})$$

L'énergie totale de la demi-boucle $E = U^{half} + W^{stress} + U^{ledge}$ passe ainsi par un maximum, dans une gamme de contraintes $0 < \sigma < \sigma_{ath}$. Le rayon critique est celui pour lequel E atteint ce maximum, autrement dit lorsque :

$$\begin{aligned} \frac{\partial E}{\partial R} &= 0 \\ \frac{\partial^2 E}{\partial R^2} &< 0 \end{aligned} \quad (\text{II.9})$$

En principe, les grandeurs pertinentes caractérisant la barrière d'énergie peuvent être déduites de ce modèle. Cependant, plusieurs difficultés en empêchent l'application directe. Les auteurs ont considéré une demi-boucle circulaire de dislocation parfaite. Or, il est possible que des dislocations *partielles* se nucléent, auquel cas la contribution énergétique du défaut d'empilement sera à prendre en compte. De plus, les demi-boucles formées peuvent être plutôt elliptiques que circulaires, les composantes vis et coin ne se propageant pas à la même vitesse (voir Chap. I). Le paramètre géométrique m introduit par les auteurs, censé prendre en compte la géométrie du système, peut en être sensiblement modifié.

Il faut donc introduire dans le modèle de Beltz et Freund des termes supplémentaires pour tenir compte de la géométrie de notre système et des défauts formés, ce qui conduira

II.3 Simulations atomistiques

à l'ajustement de plusieurs paramètres (Chap. IV). D'autres moyens d'investigation se révèlent donc indispensables. Afin d'adapter ce modèle à notre problème, il est impératif de connaître le type de défaut formé (dislocation partielle ou parfaite) et sa géométrie (circulaire ou elliptique). De telles informations peuvent être obtenues expérimentalement, ou bien par simulations à l'échelle atomique.

II.3 Simulations atomistiques

Les simulations à l'échelle atomique nécessitent de connaître les forces qui s'appliquent entre les atomes dans une configuration donnée. Au vu de la taille des systèmes étudiés dans ce travail de thèse (plusieurs centaines de milliers d'atomes), il est impossible d'obtenir ces forces à partir de calculs *ab initio*, et nous avons donc eu recours à des potentiels interatomiques semi-empiriques. La qualité des résultats dépendra donc fortement de la fiabilité du potentiel, en particulier de sa transférabilité (capacité à reproduire correctement différentes configurations atomiques : phases solides et amorphes, surfaces, lacunes, dislocations, défauts d'empilement...).

Les simulations sont ici réalisées à l'aide des codes XMD [Rifkin 2004] et LAMMPS [Plimpton 1995]. Ils intègrent tous deux les fonctions discutées dans cette section, à l'exception de la méthode Nudged Elastic Band qui n'est implémentée que dans XMD³.

II.3.1 Les potentiels semi-empiriques EAM

Les potentiels de type Embedded Atom Method (EAM) reproduisent assez bien les propriétés des métaux cfc, et en particulier des métaux non-magnétiques ; nous utiliserons donc ce type de potentiel pour l'étude de l'aluminium. Dans le formalisme EAM, l'énergie

³Implémentation : G. Lucas, post-doc EPFL, Lausanne.

Chapitre II. Modèles et méthodes

potentielle d'un système constitué d'une seule espèce chimique a la forme :

$$E = \frac{1}{2} \sum_i \sum_{j \neq i} \Phi(r_{ij}) + \sum_i F \left(\sum_{j \neq i} \rho(r_{ij}) \right) \quad (\text{II.10})$$

avec r_{ij} la distance entre atomes. Le premier terme, appelé potentiel de paire, est une interaction répulsive à 2-corps ; physiquement, il s'agit de l'interaction coulombienne entre noyaux atomiques, écrantée par leur environnement électronique. Dans le second terme, la fonctionnelle F , dite d'entourage ou d'immersion (*embed* en anglais), décrit comment l'énergie de l'atome individuel varie lorsqu'il se déplace dans la densité électronique locale $\rho = \sum_{j \neq i} \rho(r_{ij})$. Ce terme d'immersion de l'atome dans le matériau modélise donc les interactions attractives à N -corps. Ces trois fonctions Φ , ρ et F , sont ajustées pour que le potentiel reproduise correctement, entre autres, les propriétés mécaniques du matériau, comme les modules élastiques ou de cisaillement, obtenues le plus souvent par calcul *ab initio*. Le fait de posséder un terme à N -corps rend les potentiels EAM beaucoup plus adaptés aux métaux et transférables qu'un simple modèle à 2-corps de type Lennard-Jones par exemple.

Dans cette thèse, sauf mention contraire, c'est le potentiel EAM pour l'aluminium proposé par Aslanides et Pontikis [Aslanides et Pontikis 1998a] qui est utilisé (Annexe B). Ce potentiel est ajusté sur les valeurs expérimentales de l'énergie de cohésion, les modules élastiques, l'énergie de formation de lacune, et l'énergie de défaut d'empilement intrinsèque. Il reproduit correctement les structures de cœur des dislocations [Aslanides et Pontikis 1998b] et, point dont l'importance a été soulevée précédemment, il donne une énergie de défaut d'empilement $\gamma_i = 155 \text{ mJ/m}^2$, soit très proche des valeurs expérimentales⁴ et qui reste correcte même sous de fortes déformations, ce qui en fait un potentiel particulièrement fiable pour l'étude de la formation de dislocations dans ce matériau.

⁴Expériences : $\gamma_i = 120 - 144 \text{ mJ/m}^2$ [Coulomb 1978, Mills et Stadelmann 1989].

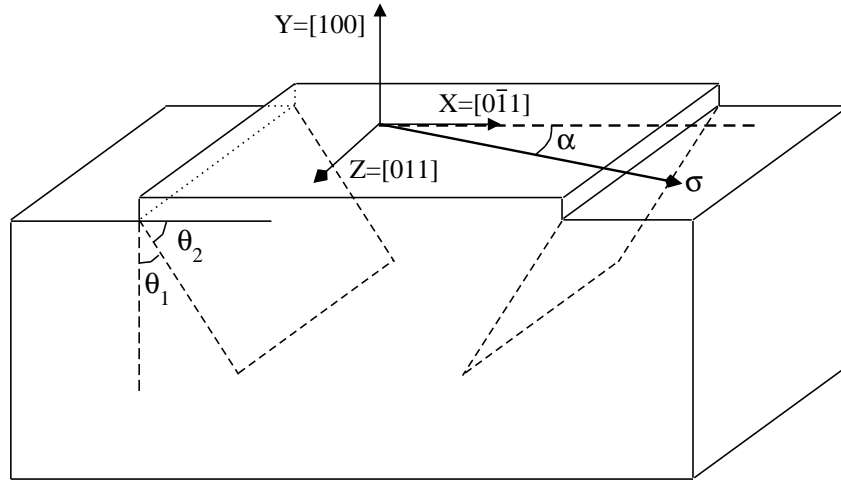


FIG. II.5 – Géométrie du système modèle étudié. Les plans $\{111\}$ passant par les marches de surface sont représentées (lignes pointillées). La direction de la contrainte, orthogonale à Y , est caractérisée par un angle α par rapport à la direction X normale aux marches.

II.3.2 Géométrie du système étudié et contrainte appliquée

Le système modèle sur lequel nous basons notre étude est un monocristal d'aluminium présentant deux surfaces libres de type $\{100\}$ (Fig. II.5). Les plans $\{111\}$ forment ainsi un angle $\theta_1 = 35,26^\circ$ avec la normale aux surfaces. Des conditions aux limites périodiques sont appliquées suivant les directions $X = [0\bar{1}1]$ et $Z = [011]$, imitant ainsi un film mince semi-infini. Sur l'une des surfaces libres, deux marches sont construites en ajoutant une ou plusieurs couches d'atomes, selon la hauteur de marche désirée. Les lignes de marches sont orientées suivant Z , elles sont donc l'intersection entre les plans $\{111\}$ et la surface. Des atomes peuvent également être retirés le long des marches pour obtenir une géométrie plus complexe.

Nous avons effectué des simulations sur des systèmes de différentes tailles, allant de 10 à 90 plans atomiques dans chaque direction. Sauf mention contraire, le système modèle auquel il sera fait référence dans cette étude a une taille de $60 \times 40 \times 60$ plans atomiques (144000 atomes), soit $170,55 \text{ \AA} \times 84,42 \text{ \AA} \times 170,55 \text{ \AA}$, avec une distance minimale entre les marches de $56,85 \text{ \AA}$. Nous avons vérifié que des systèmes de tailles plus grandes produisaient les mêmes résultats, en particulier en terme de défauts formés ou de contrainte

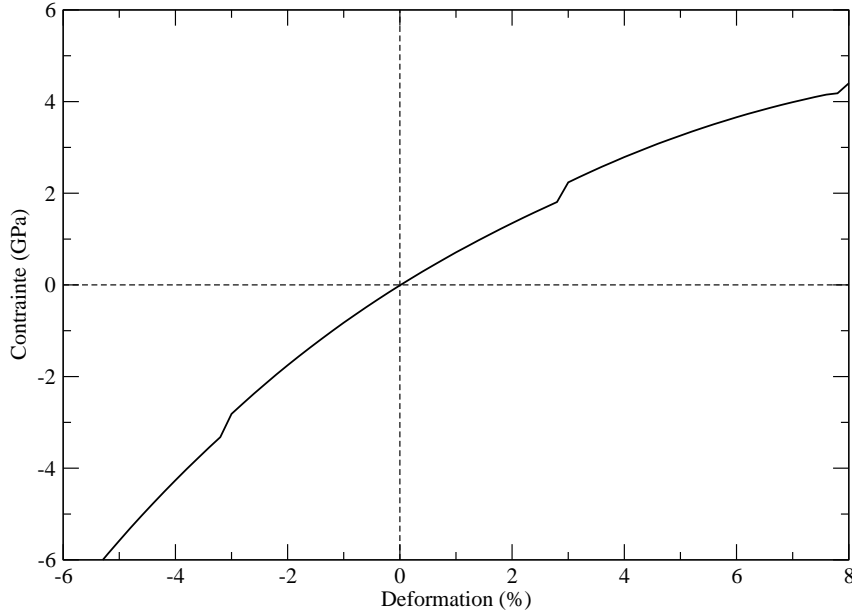


FIG. II.6 – Évolution de la contrainte σ_{XX} en fonction de la déformation appliquée ϵ_{XX} , dans l'aluminium massif. Les valeurs négatives correspondent à une compression, les positives à une traction le long de l'axe $X = [0\bar{1}1]$. Les discontinuités sur les courbes autour de $\pm 3\%$ de déformation proviennent probablement d'une discontinuité au rayon de coupure du potentiel utilisé (voir Annexe B).

de nucléation.

Le système est soumis à une contrainte uniaxiale σ suivant une direction faisant un angle α dans le plan (100) par rapport à la normale aux lignes de marche (Fig. II.5). Pour cela, une déformation ϵ est appliquée dans cette direction, par incréments choisis de 1 ou 0,1%. Dans le même temps, le matériau est déformé suivant les directions orthogonales en utilisant le facteur de Poisson de l'aluminium (0,35), ce qui est justifié par la relative isotropie de l'aluminium⁵.

La déformation ϵ peut être traduite en termes de contrainte. La Fig. II.6 montre la relation contrainte-déformation dans l'aluminium massif, pour une déformation le long de la direction $[0\bar{1}1]$ ($\alpha = 0$), calculée à l'aide du potentiel EAM; tout au long de cette

⁵Coefficient d'anisotropie $A = 2C_{44}/(C_{11} - C_{12})$: 1,07 (potentiel EAM Aslanides et Pontikis); 1,22 (expérience [Zener 1948, Thomas 1968]).

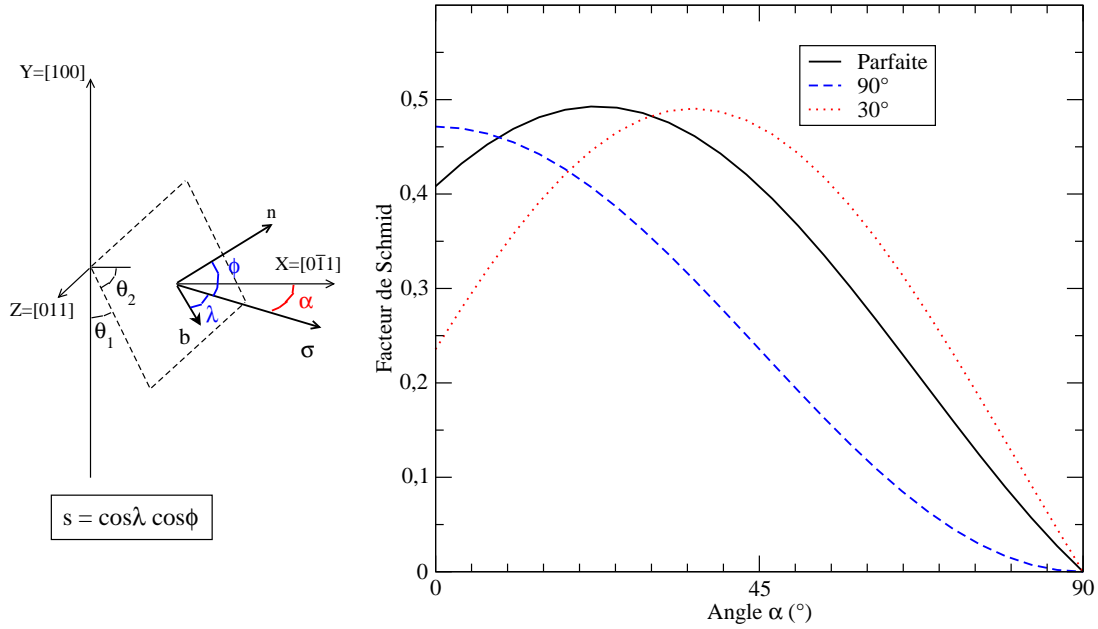


FIG. II.7 – À gauche : géométrie du système étudié (les directions sont les mêmes que sur la Fig. II.5), et les angles employés pour le calcul du facteur de Schmid. À droite : facteur de Schmid s pour le système étudié.

thèse nous emploierons cette courbe pour déterminer la correspondance entre contrainte et déformation. Les résultats obtenus dans l'aluminium massif montrent que la relation contrainte-déformation n'est pas linéaire ; de plus à déformation égale, la contrainte est plus importante en compression qu'en traction.

Connaissant les plans de glissement et la direction de la contrainte, nous pouvons calculer la scission résolue τ pour différentes directions de glissement :

$$\tau = \sigma s \tag{II.11}$$

où σ est la contrainte uniaxiale appliquée, et s est le facteur de Schmid. Le calcul de s permet ainsi d'évaluer la contrainte résolue pour chaque type de dislocation. Il est défini en fonction des angles λ entre le vecteur de Burgers de la dislocation et la direction de la contrainte, et ϕ entre la direction de la contrainte et la normale au plan de glissement

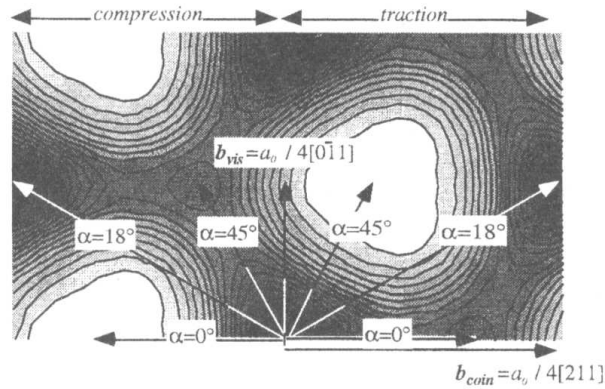


FIG. II.8 – γ -surface de l’aluminium (vue plane de la Fig. II.3) ; les régions claires correspondent à des maxima d’énergie, les régions sombres à des minima (tiré de [Brochard 1998]). En traction, la formation d’une partielle 30° (pour $\alpha=45^\circ$ par exemple) n’est pas possible car elle produirait un empilement de type ABC|CABC. Il en va de même en compression pour la partielle 90° ($\alpha=0^\circ$).

(Fig. II.7) :

$$s = \cos \lambda \cos \phi \quad (\text{II.12})$$

Nous avons tracé sur la Fig. II.7 le facteur de Schmid pour chaque type de dislocation (partielles de Shockley et parfaite 60°), en fonction de l’orientation de contrainte α . Ainsi la partielle 90° a le facteur le plus élevé dans le cas d’une traction suivant $[0\bar{1}1]$ ($\alpha = 0$). Pour des angles compris entre $8,6^\circ$ et $29,8^\circ$, c’est la dislocation parfaite qui a le plus grand facteur de Schmid. Enfin, pour un angle α supérieur à $29,8^\circ$, la partielle 30° est celle qui a le facteur de Schmid le plus élevé.

Des informations supplémentaires sont fournies par la γ -surface (Fig II.8). Par exemple, bien que la partielle 30° ait un facteur de Schmid élevé en traction pour $\alpha=45^\circ$, la γ -surface indique qu’il existe une très grande barrière d’énergie dans cette direction ; la formation d’une telle partielle semble donc improbable. Il en va de même pour une orientation de contrainte $\alpha=0^\circ$ en compression : former une partielle 90° n’est pas possible, même si cette dislocation a le plus fort facteur de Schmid. En conséquence, dans ce travail de thèse nous baserons notre analyse à la fois sur la γ -surface et sur le facteur de Schmid.

II.3.3 Minimisation de l'énergie

Une méthode simple permettant d'obtenir l'état fondamental d'un système consiste à annuler les forces afin de minimiser l'énergie totale; on parle alors de relaxation. Dans ces simulations dites statiques, les forces s'appliquant aux atomes sont dérivées des potentiels interatomiques. La méthode de minimisation de l'énergie que nous avons utilisée ici est celle des gradients conjugués (voir Annexe B). Ici, nous considérons que la convergence du calcul est atteinte lorsque la force maximum subie par un atome est inférieure à 10^{-5} eV.Å⁻¹.

De telles méthodes sont surtout utilisées pour relaxer des structures atomiques. En effet, elles permettent au système d'atteindre le minimum local le plus proche, mais ne permettent pas de franchir une barrière d'énergie par exemple. Pour le problème qui nous intéresse ici, sans l'aide de la température la probabilité de nucléation est rigoureusement nulle s'il existe une barrière d'énergie, aussi petite fût-elle (Chap. I). Ces méthodes de minimisation d'énergie ne peuvent donc, par essence, fournir que la contrainte athermique, pour laquelle l'énergie d'activation s'annule.

II.3.4 Dynamique moléculaire

Les simulations en dynamique moléculaire (DM) permettent de modéliser l'évolution temporelle du système à une température donnée, à travers le calcul des trajectoires atomiques individuelles. Les vitesses sont calculées par intégration des lois de Newton, le plus souvent via un algorithme optimisé. Le code XMD utilise un algorithme de Gear du cinquième ordre [Gear 1971], tandis que LAMMPS emploie un algorithme de Verlet [Verlet 1967a, Verlet 1967b] (voir Annexe B). Dans les simulations présentées ici, le pas de temps choisi pour l'intégration est de 4×10^{-15} s, adapté pour minimiser les temps

Chapitre II. Modèles et méthodes

de simulation et pour éviter toute divergence de l'énergie à 300 K. La température est modélisée en assignant initialement une distribution de vitesses de Maxwell-Boltzman aux atomes ; elle est ensuite maintenue par une renormalisation des vitesses à chaque pas de dynamique (XMD), ou bien par un algorithme dit thermostat de Nosé-Hoover (LAMMPS) (voir Annexe B).

La dynamique moléculaire est basée sur les lois de Newton, qui sont déterministes ; autrement dit, un système placé dans un état initial donné évoluera toujours de la même manière⁶. Ici, l'état de départ est construit en assignant une distribution aléatoire de vitesses qui diffère d'une simulation à l'autre ; ainsi l'évolution du système n'est jamais rigoureusement la même.

Dans cette thèse, la dynamique moléculaire sera employée pour étudier l'évolution d'un système en fonction du temps, à différentes contraintes et températures. Cette évolution temporelle permettra de connaître, par exemple, l'instant de nucléation ou bien la vitesse des dislocations.

II.3.5 La méthode Nudged Elastic Band

La caractérisation d'une barrière d'énergie est difficile car cette dernière implique un processus faisant passer le système par des états instables, difficiles à caractériser. En effet, opérer une relaxation de ces états fait évoluer le système vers des configurations d'équilibre (Fig. II.9a), ce qui ne fournit aucune information sur la barrière d'énergie.

La méthode Nudged Elastic Band (NEB) a justement été développée pour étudier les états de transition [Jónsson et al. 1998, Henkelman et Jónsson 2000, Henkelman et al. 2000].

⁶À moins d'exécuter la simulation sur un autre ordinateur. En effet, d'une machine à l'autre, les erreurs d'arrondis peuvent être sensiblement différents et mener à des évolutions différentes malgré des états de départ strictement identiques.

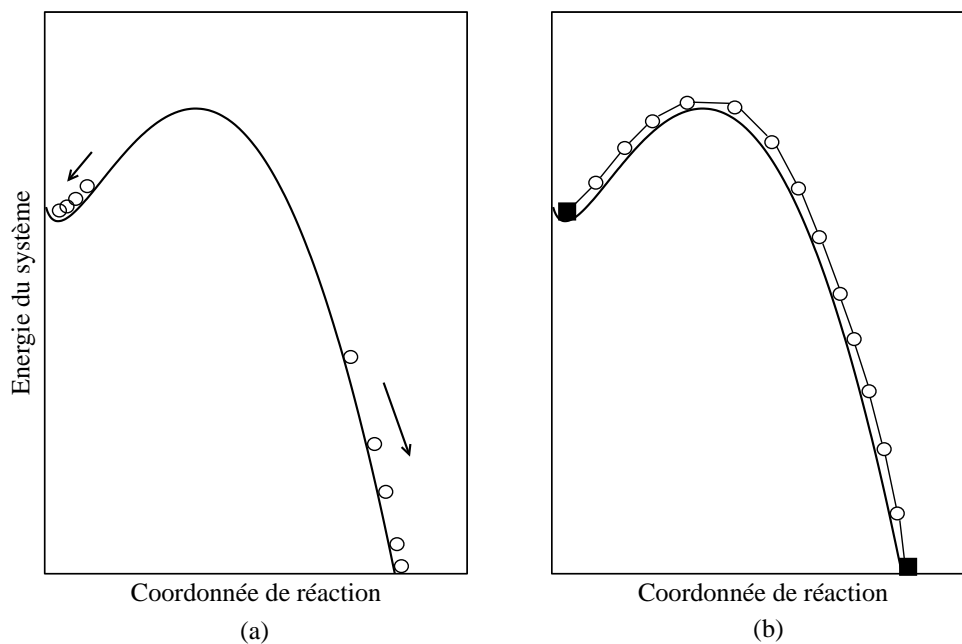


FIG. II.9 – Principe de la méthode Nudged Elastic Band. Plusieurs images, correspondant aux différents états empruntés par le système pour franchir la barrière, sont prises comme points de départ.

(a) Lors d'une simple relaxation, toutes les images tendent vers une configuration stable, d'un côté ou de l'autre de la barrière.

(b) Lors d'un calcul NEB, les images sont liées entre elles et contraintes à rester quasi-équidistantes. Les images initiale et finale (carrés noirs) sont maintenues fixes, et la chaîne d'images tend vers le chemin d'énergie minimum.

Chapitre II. Modèles et méthodes

Elle utilise des configurations successives que le système emprunte en franchissant la barrière, qui forment ce que l'on appelle une chaîne d'images (Fig. II.9b). Les configurations initiale et finale sont entièrement relaxées de manière indépendante. Ensuite lors du calcul NEB, les images intermédiaires sont relaxées, mais les déplacements atomiques sont contraints par les configurations précédente et suivante de la chaîne, empêchant les images de relaxer complètement vers un état stable du système. Les images convergent ainsi vers le chemin d'énergie minimum (CEM).

Dans ce travail de thèse, nous emploierons deux raffinements à la méthode NEB : le *climbing image* qui autorise l'image possédant la plus haute énergie à monter le long du CEM, lui faisant atteindre la configuration du point col ; et l'*improved tangent*, qui élimine de possibles problèmes de divergence lors du calcul de la composante de la force tangente à la chaîne d'images. Le formalisme de la méthode NEB ainsi que de ces deux améliorations sont détaillés dans l'Annexe B.

Nous construisons l'image de départ en relaxant un système déformé, mais sans dislocation. Les images suivantes quant à elles, contiennent des demi-boucles de dislocation de rayons croissants. Enfin, l'image finale correspond à une demi-boucle de dislocation que nous choisirons arbitrairement grande, et relaxée de façon à ce que son énergie soit inférieure de plusieurs eV à celle de l'image initiale ; ainsi cette image ne se trouve sans doute pas sur le chemin d'énergie minimum, mais elle correspond à un état emprunté par le système et joue un rôle mineur sur la convergence des autres images vers le CEM. Les images intermédiaires et finale sont construites à partir de configurations que le système emprunte lors d'une simulation en dynamique moléculaire. Dans ce cas, des simulations en DM sont donc un préalable nécessaire (Chap. IV).

La méthode Nudged Elastic Band est donc une méthode de choix pour déterminer les paramètres associés à une barrière d'énergie. Elle a été utilisée dans de nombreuses études

II.3 Simulations atomistiques

impliquant des dislocations [Rasmussen et al. 1997, Vegge et al. 2000, Vegge et al. 2001, Ngan et Wen 2001, Pizzagalli et al. 2008]. Mais, nous le verrons, elle n'est pas toujours simple à mettre en œuvre, surtout lorsque le système étudié présente un grand nombre de degrés de liberté ; une topologie complexe dans l'espace des configurations peut rendre le calcul fastidieux, voire impossible.

II.3.6 Moyens d'analyse du système

II.3.6.1 Énergie potentielle

La dynamique moléculaire classique permet d'accéder aux grandeurs thermodynamiques du système, notamment la température, ainsi qu'aux énergies cinétique et potentielle individuelles ou totales. À la différence des méthodes de minimisation d'énergie, l'agitation thermique fera varier l'énergie du système. Ces fluctuations, de l'ordre de $Nk\Delta T$ avec N le nombre de degrés de libertés du système et ΔT l'amplitude des fluctuations thermiques, peuvent atteindre plusieurs eV selon la température, et rendre difficile la distinction d'une variation de l'énergie potentielle qui serait liée à un événement plastique. Le suivi de l'énergie potentielle est toutefois utile pour contrôler la dynamique du système : après que la température a été introduite, elle peut osciller un certain moment avant de se stabiliser. Cette phase dite de thermalisation peut se traduire par de fortes oscillations dans l'énergie potentielle. Si de telles oscillations se produisaient à forte déformation, elles pourraient déclencher la nucléation de manière artificielle. Dans les simulations présentées ici, nous avons toujours vérifié, à travers les variations de l'énergie potentielle, que ces perturbations sont minimisées bien avant qu'un événement plastique ait lieu (Fig. II.10).

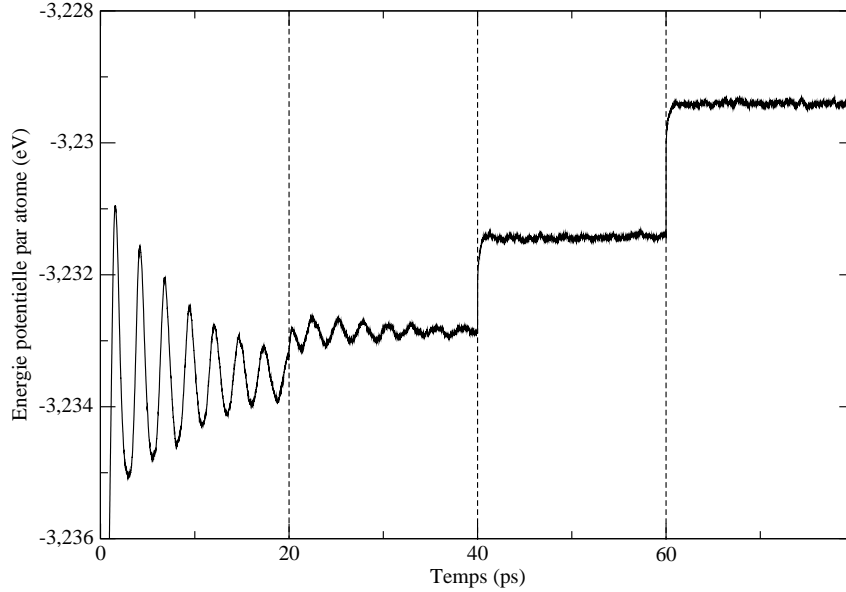


FIG. II.10 – Évolution de l'énergie potentielle en fonction du temps lors d'un essai de traction à 300 K, un incrément de déformation de 1% étant appliqué toutes les 20 ps. Lors de la phase de thermalisation, on observe de grandes oscillations, qui s'estompent après quelques dizaines de ps.

II.3.6.2 Visualisation du système

Nous avons utilisé le programme Atomeye [Li 2003] pour visualiser les systèmes issus des simulations. Il donne une représentation simple des atomes et des liaisons. Nous verrons que cette représentation permet de visualiser des déplacements atomiques, notamment le précisaillement existant avant la nucléation, que nous avons décrit dans le Chap. I.

Afin de faciliter la visualisation des défauts à l'intérieur des systèmes étudiés, nous utiliserons le critère de centrosymétrie. Ce critère a d'abord été proposé par Kelchner *et al.* [Kelchner *et al.* 1998]. Chaque atome se voit octroyer une valeur du paramètre de centrosymétrie c_i , dépendant de la différence de distance entre les paires de premiers voisins :

$$c_i = \sum_{j=1,6} \left| \vec{R}_j - R_{j+6} \right|^2 \quad (\text{II.13})$$

II.3 Simulations atomistiques

Ainsi dans un cristal cfc parfait, les atomes sont symétriques deux à deux, chaque atome a donc une valeur de c égale à zéro. Un autre avantage de ce critère est qu'il est insensible à la déformation élastique, durant laquelle les atomes s'éloignent en conservant la symétrie de leur environnement et donc un critère $c_i = 0$. En revanche, lorsqu'il y a brisure de symétrie, comme c'est le cas pour les atomes de surface ou lorsqu'il se produit des événements plastiques, les atomes qui ne sont plus dans un environnement cfc ont un critère de centrosymétrie qui devient positif.

Un inconvénient de cette définition est que la valeur de c ne sera pas caractéristique que d'un défaut donné, mais aussi du matériau considéré puisqu'il dépend des distances R_j entre atomes, et donc du paramètre de maille du système étudié. Une autre définition, indépendante cette fois du paramètre de maille, a ensuite été proposée par Li [Li 2003]. C'est ce critère, également implémenté dans Atomeye, que nous utiliserons. Chaque type de défaut est caractérisé par une valeur bien définie de c , quel que soit le matériau ; ainsi, en choisissant une fourchette de valeurs, il est possible de masquer les atomes qui ont un environnement cfc, et de visualiser uniquement les atomes situés dans des défauts (Fig. II.11).

Atomeye permet également d'observer la répartition des contraintes. Puisqu'il ne manipule que des positions atomiques, il ne peut calculer les véritables contraintes ; il donne cependant accès aux invariants du tenseur des contraintes de Von Mises [Li 2003], ce qui permet tout de même d'évaluer et de visualiser la répartition des contraintes sur les atomes. Les endroits présentant une concentration de contrainte, susceptible d'aider à la nucléation, peuvent ainsi être repérés.

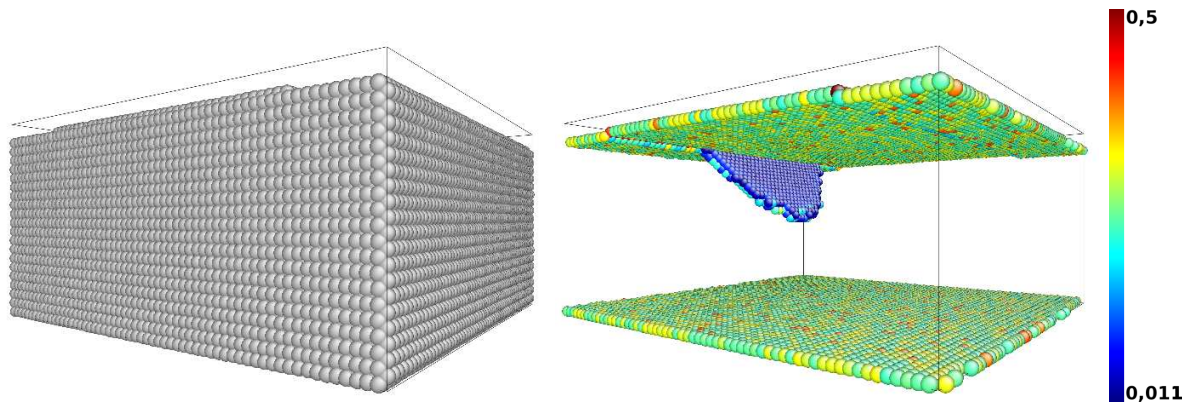


FIG. II.11 – Utilisation du critère de centrosymétrie. À gauche : si le critère n’est pas utilisé, alors il est impossible de distinguer des structures singulières au sein du cristal massif. À droite : en n’affichant que les atomes correspondant à une fourchette de valeurs de c , les défauts à l’intérieur du système peuvent être facilement visualisés. Ici, les atomes en surface sont jaune-vert, les atomes dans le cœur d’une dislocation bleu clair, et les atomes dans un défaut d’empilement bleu foncé ; les atomes dans un environnement cfc parfait ($c < 0,011$) ne sont pas représentés.

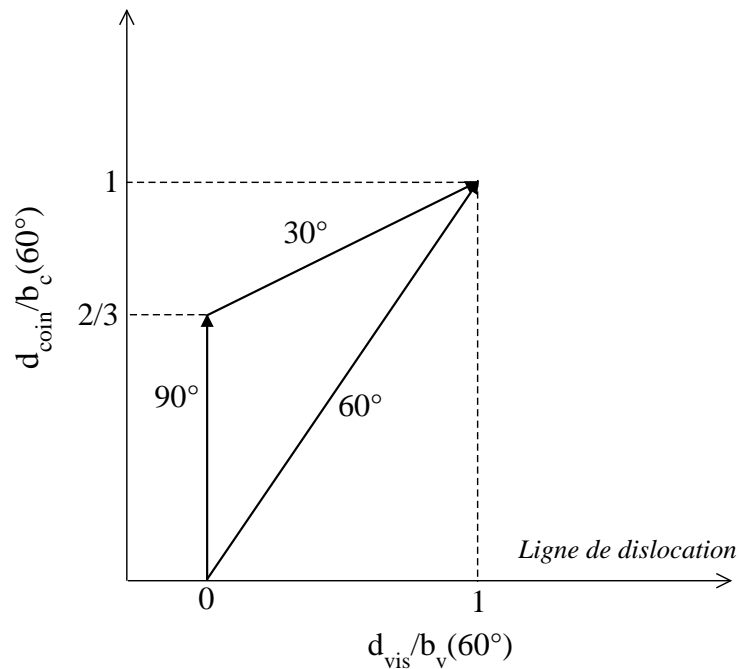


FIG. II.12 – Valeurs des déplacements atomiques relatifs vis et coin, normalisés aux composantes correspondantes d’une dislocation parfaite. Une partielle 90° aura ainsi une composante coin égale à $2/3$ et une composante vis nulle, tandis qu’une partielle 30° aura ces mêmes composantes égales à $1/3$ et 1 , respectivement.

II.3.6.3 Caractérisation des défauts

Le critère de centrosymétrie permet une visualisation aisée des défauts dans le matériau simulé, mais reste insuffisant pour caractériser quantitativement le défaut ; en particulier, le vecteur de Burgers de la dislocation doit être déterminé par un autre moyen.

Dans cette thèse, la caractérisation se fait par le calcul des positions relatives des atomes de part et d'autre d'un plan $\{111\}$ donné. Pour une meilleure lisibilité, les composantes vis d_{vis} et coin d_{coin} de ces déplacements sont normalisées aux composantes correspondantes d'une dislocation parfaite 60° , respectivement $b_v(60^\circ)$ et coin $b_c(60^\circ)$, de sorte que les coordonnées des vecteurs déplacement ont des normes fractionnaires ou entières (Fig. II.12).

Un avantage d'une telle méthode est qu'elle permet d'identifier les dislocations sans ambiguïté. Si les plans atomiques subissent tous deux une même translation ou rotation, alors leur déplacement relatif restera nul. En revanche, s'ils glissent l'un par rapport à l'autre comme c'est le cas lors du passage d'une dislocation, alors leur déplacement relatif pourra être représenté par un vecteur -par définition, le vecteur de Burgers s'il s'agit d'une dislocation. Pour faire ce type de calcul, un programme a été développé et utilisé de manière systématique sur les systèmes étudiés (voir Annexe C). D'autres informations peuvent être extraites à partir de ce programme, comme la forme de la dislocation, la position et l'extension du coeur, et dans le cas de simulations en dynamique moléculaire, la vitesse de la dislocation.

Pour déterminer à quel moment précis la nucléation se produit, nous utilisons dans notre programme les critères suivants : dans le cas d'une partielle de Shockley de vecteur de Burgers b_{90° , le déplacement coin relatif des atomes de surface doit être égal à au moins la moitié de la norme du vecteur de Burgers d'une partielle 90° , autrement dit $1/3$ de la composante coin d'une parfaite 60° ; et la dislocation doit être stable, c'est-à-dire

Chapitre II. Modèles et méthodes

se propager, ceci pour ne pas considérer les embryons de dislocation qui se rétracteraient en surface. L’instant de nucléation peut ainsi être déterminé de façon relativement précise.

II.4 Conclusions

Dans ce Chapitre nous avons explicité plusieurs méthodes possibles pour investiguer le problème de la nucléation des dislocations. Cette revue met déjà en lumière certains de leurs points forts et faiblesses.

La théorie de l’élasticité, si elle permet de développer des modèles analytiques pour la formation d’une dislocation depuis une surface, a l’inconvénient de ne pas pouvoir prédire la forme des dislocations formées (la plupart des modèles existants supposent une demi-boucle parfaitement circulaire). De plus, nous avons montré que l’élaboration de modèles élastiques plus complexes requiert l’introduction de paramètres ajustables, qui nécessitent de faire appel à d’autres méthodes.

Afin d’obtenir une meilleure description de la nucléation à l’échelle atomique, la dynamique moléculaire employant un potentiel semi-empirique s’avère indispensable. Enfin, la méthode NEB est très attractive à première vue ; nous verrons cependant qu’elle réclame beaucoup de précautions pour être mise en œuvre, et gagne à être utilisée complémentai-
rement à d’autres méthodes.

Chapitre III

Paramètres influant sur la nucléation

Le processus de nucléation d'une dislocation depuis une surface dépend de nombreux paramètres. Les études citées dans le Chap. I montrent qu'entre autres, la température, l'état de la surface (reconstruction, passivation, défauts), l'orientation et la vitesse de déformation, peuvent jouer un rôle sur les paramètres associés à la barrière d'énergie.

Il convient donc dans un premier temps d'étudier le rôle de chacun de ces facteurs sur la nucléation. Pour cela, nous avons effectué des simulations sur le système présenté dans le Chapitre précédent (Fig. II.5), en faisant varier les différents paramètres ou la géométrie du système. Nous nous attacherons dans ce Chapitre à décrire le premier événement plastique, à savoir la formation de la première dislocation ; l'évolution ultérieure du système sera décrite plus en détail dans le Chap. V.

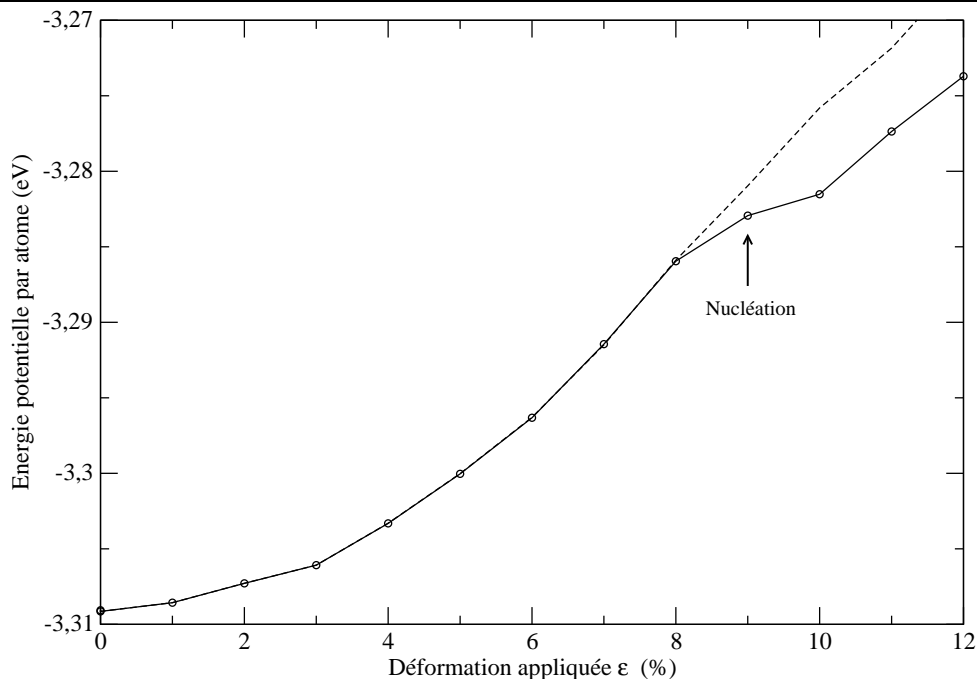


FIG. III.1 – Évolution de l'énergie potentielle d'un système déformé par pas de 1% à 0 K, sans relaxation (tirets), et en minimisant l'énergie à chaque incrément de contrainte (trait plein).

III.1 Effet de la température

L'événement de nucléation étant thermiquement activé, la température est un paramètre clé dont le rôle est à déterminer précisément. Ses effets ont été testés sur un système modèle comprenant deux marches monoatomiques rectilignes, pour une contrainte de traction orthogonale à la ligne de marche ($\alpha = 0^\circ$) (Fig. II.5). Nous avons comparé, pour ce système, la minimisation de l'énergie, simulation représentative d'une température nulle, et des simulations en dynamique moléculaire à différentes températures.

Comme cela a été mentionné au Chap. II, les simulations à 0 K permettent d'obtenir la contrainte athermique, pour laquelle la barrière d'énergie devient nulle. Afin d'obtenir cette contrainte, deux types de simulations à 0 K sont comparées. Dans un premier essai, la déformation purement élastique du matériau est simulée en étirant le système par pas de 1%, sans opérer de relaxation des forces. L'énergie potentielle du système est calculée à chaque incrément de déformation, et croît de façon régulière, comme le montre la

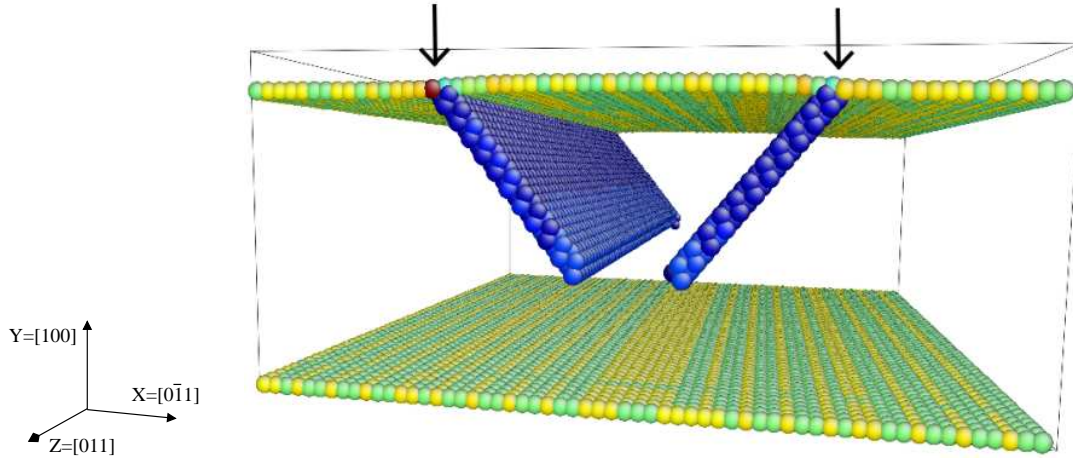


FIG. III.2 – Dislocations formées à partir de marches monoatomiques à 0 K, dans un échantillon déformé de 9%. Les flèches indiquent les positions initiales des marches de surface. Seuls les atomes qui ont un critère de centrosymétrie non nul sont représentés (voir Chap. II).

courbe pointillée sur la Fig. III.1. Lors d'un deuxième essai, le même système est déformé en minimisant cette fois son énergie à chaque incrément de déformation. Dans ce cas, à une certaine déformation, un événement plastique provoque une chute brutale de l'énergie potentielle par rapport au système non relaxé ; c'est le cas ici pour une déformation $\epsilon = 9\%$ sur la Fig. III.1. La comparaison entre les deux courbes permet ainsi de définir sans ambiguïté la limite élastique du système. Ce type de simulation a été effectué sur des systèmes de différentes tailles, donnant des résultats très similaires : l'apparition de la plasticité se fait pour une déformation d'environ 9%.

Le type de défaut nucléé peut être visualisé en sélectionnant les atomes selon le critère de centrosymétrie, mettant en évidence deux dislocations rectilignes (Fig. III.2). Ces dislocations se sont nucléées depuis les marches, et se sont propagées dans le matériau dans des plans $\{111\}$ de façon symétrique. Ce résultat s'explique par la symétrie parfaite du système : à cette déformation la barrière d'énergie est nulle, et tous les sites potentiels de nucléation sont équivalents sur les deux marches. Une analyse plus fine des déplacements atomiques relatifs confirme que les dislocations sont rectilignes (Fig. III.3). Elle permet également d'établir le type de ces dislocations : la composante coin vaut environ

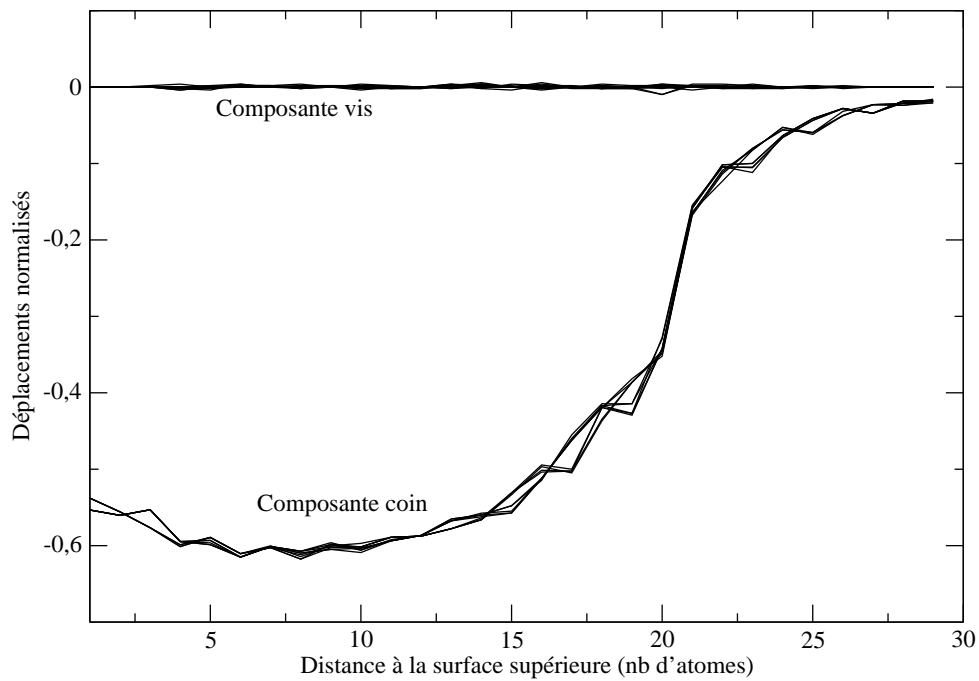


FIG. III.3 – Déplacements atomiques normalisés le long des directions vis et coin, dans un plan de glissement activé d'un échantillon déformé de 9% à 0 K. Toutes les "tranches" dZ sont représentées (voir Annexe C). La surface supérieure, contenant la marche initiale, correspond à la gauche du graphe; la surface inférieure à la droite.

III.1 Effet de la température

$(2/3)b_c(60^\circ)$ et la composante vis est quasi-nulle, ce sont donc des dislocations partielles de Shockley 90° . Elles sont de type $\frac{1}{6}[2\bar{1}\bar{1}](1\bar{1}1)$ pour celle se formant depuis la marche située à gauche sur la Fig. III.2, et $\frac{1}{6}[2\bar{1}1](11\bar{1})$ depuis la marche située à droite. Ce résultat est en accord avec la valeur du facteur de Schmid, qui est maximum pour cette orientation de contrainte sur ce type de dislocation (Chap. II).

Du fait de la formation de ces dislocations, les marches de surface voient leur hauteur diminuée de $2/3$, ce qui correspond à la norme projetée du vecteur de Burgers des dislocations émises. Les dislocations formées traînent des défauts d'empilements intrinsèques derrière elles, visibles en bleu foncé sur la Fig. III.2. La position du coeur de la dislocation, correspondant au maximum de la dérivée des déplacements atomiques (Annexe C), est situé ici à environ 21 atomes de la surface supérieure (Fig. III.3). Cette position correspond au système entièrement relaxé; les deux dislocations ne se propagent pas plus avant car du fait de leur interaction, il doit exister une barrière d'énergie qu'elles ne peuvent franchir à 0 K.

Dans un deuxième temps, des simulations en dynamique moléculaire à température non nulle sont effectuées sur des systèmes de même géométrie. Comme cela a été discuté dans le Chap. II, le suivi de l'énergie potentielle ne suffit pas dans ce cas à déterminer l'instant de nucléation. En effet, comme à 0 K, une chute brutale de l'énergie indique qu'un événement plastique s'est produit (Fig. III.4). Toutefois, l'agitation thermique empêche de déterminer précisément l'instant de nucléation à partir de la seule variation de l'énergie potentielle du système; aussi la caractérisation de l'événement et du type de défaut passera-t-elle par l'analyse des déplacements atomiques relatifs.

Le système étudié a été soumis à des tests de traction pour des températures situées entre 5 et 300 K, avec un incrément de déformation de 0,1% toutes les 20 ps, soit une vitesse de déformation $\dot{\epsilon} = 5 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$. À 5 K, la nucléation se produit pour une défor-

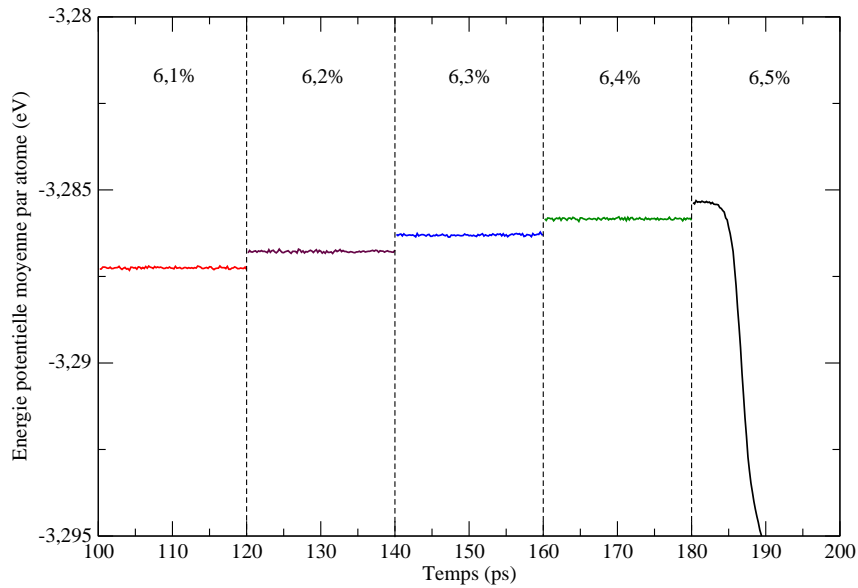


FIG. III.4 – Évolution de l'énergie potentielle en fonction du temps lors d'un essai de traction à 100 K, un incrément de déformation de 0,1% étant appliqué toutes les 20 ps. Un événement plastique fait chuter brutalement l'énergie potentielle, mais l'instant de nucléation ne peut pas être déterminé précisément.

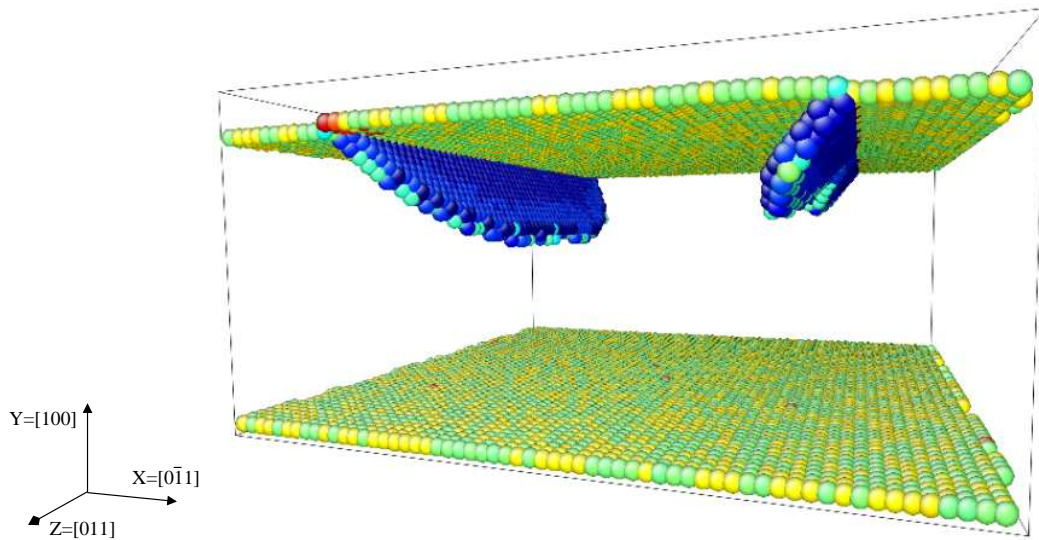


FIG. III.5 – Dans un système déformé de 6,7% à 10 K, les dislocations se nucléent simultanément depuis les deux marches, et gardent une forme très étendue le long de la marche.

III.1 Effet de la température

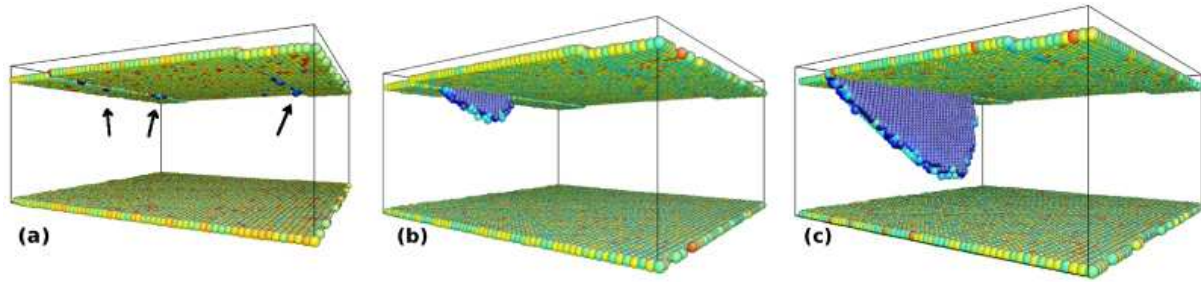


FIG. III.6 – Dislocation formée dans un système déformé de 6,5% à 300 K. Des embryons de dislocation se forment puis se rétractent le long des marches (a), jusqu'à ce que l'un atteigne le rayon critique et se propage dans le cristal (b,c). Le même type de scénario se produit à des températures entre 50 et 300 K, la nucléation pouvant se produire depuis n'importe quel site le long des deux marches.

mation de 6,8%, soit une contrainte appliquée d'environ 3,9 GPa (Fig. II.6). L'agitation thermique, pourtant faible à 5 K, permet l'activation du processus de nucléation ; c'est donc que l'énergie d'activation est relativement faible à cette contrainte.

Pour des températures inférieures à 50 K, les défauts formés ne sont pas très différents de ceux obtenus à 0 K. La Fig. III.5 montre le premier événement plastique dans un échantillon déformé de 6,7% à 10 K. À cette température, deux dislocations partielles de Shockley se forment depuis les deux marches de surface, en conservant une forme très allongée, quasi rectiligne, le long de la marche. Ceci montre que l'énergie d'activation reste petite, rendant la nucléation probable sur de nombreux sites simultanément. Pour ces faibles températures, la nucléation est donc essentiellement dominée par la contrainte, qui rend la barrière d'énergie quasiment nulle.

Lorsque la température atteint 50 K et au-delà, l'événement de nucléation change de nature. Pendant toute la durée de l'essai de traction, des embryons de dislocations se forment puis se rétractent le long des marches (Fig. III.6a). Puis une dislocation, et une seule, se forme depuis l'une des deux marches de surface (Fig. III.6b), pour une déformation variant de 6,4 à 6,6% (3,8~3,9 GPa), et après un temps supérieur à environ 8 ps (variable selon les simulations). Cet aspect local et la nature stochastique de la nu-

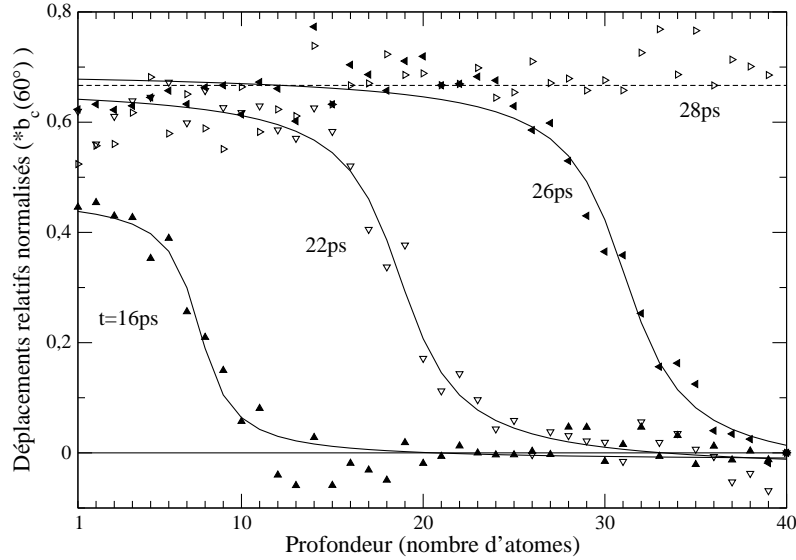


FIG. III.7 – Déplacements atomiques relatifs normalisés dans un échantillon déformé de 6,5% à 300 K, le long de la direction coin et pour la tranche dZ correspondant au front de la dislocation, à différents instants de la propagation d'une dislocation ; l'origine des temps correspond à l'instant de nucléation. La composante coin (triangles) est ajustée avec une fonction de type arctan (lignes pleines). La composante vis, quasi-nulle, n'est pas représentée. La surface supérieure, contenant la marche initiale, correspond à la gauche du graphe, la surface inférieure à la droite.

cléation montrent qu'à ces déformations la barrière d'énergie est significativement plus grande, et qu'elle est franchie sur un site au hasard le long d'une marche grâce à l'agitation thermique, donnant à la dislocation une forme de demi-boucle. L'événement peut alors être considéré comme thermiquement activé, avec une fréquence qui dépend de la température. Un embryon devra ainsi atteindre le rayon critique pour pouvoir se propager.

Le calcul des déplacements atomiques relatifs (Fig. III.7) montre que le défaut qui se forme est une demi-boucle de dislocation partielle de Shockley, de même type que les dislocations obtenues à 0 K (soit $\frac{1}{6}[21\bar{1}](1\bar{1}1)$ ou $\frac{1}{6}[2\bar{1}1](11\bar{1})$ selon le site de nucléation), ce qui est toujours cohérent avec le facteur de Schmid. La demi-boucle laisse donc derrière elle un défaut d'empilement intrinsèque. La Fig. III.7 montre l'évolution de la composante coin à différents moments de la propagation, pour la tranche dZ correspondant au front de la dislocation. L'origine des temps correspond à l'instant de nucléation tel que défini à la fin du Chap. II.

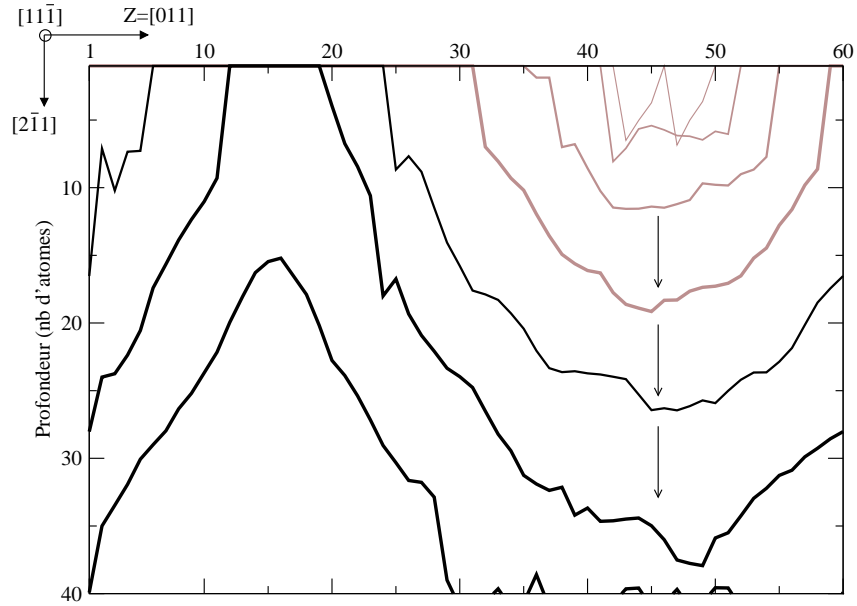


FIG. III.8 – Évolution de la ligne d’une dislocation dans son plan de glissement $\{111\}$, depuis la nucléation jusqu’à ce qu’elle atteigne la surface inférieure, dans un échantillon déformé de 6,5% à 300 K. Les positions successives de la dislocation sont obtenues à des intervalles de temps de 0,8 ps ; les flèches indiquent la direction de propagation. La surface supérieure, contenant la marche initiale alignée suivant Z, est en haut du graphe, la surface inférieure en bas.

La visualisation de la forme de la dislocation (Fig. III.8) montre qu’elle adopte une forme plutôt elliptique ; conformément à ce qui avait été proposé par Tanguy *et al.* [Tanguy *et al.* 2003], les composantes vis et coin de la dislocation ne se meuvent pas à la même vitesse. Le modèle élastique que nous utiliserons pour décrire la formation d’une demi-boucle devra donc bien prendre en compte cette ellipticité ; c’est ce que nous verrons dans le Chap. IV.

Les simulations en dynamique moléculaire ont permis d’étudier la gamme de températures allant de 0 à 300 K ; la Fig. III.9 (cercles) montre l’évolution de la déformation ϵ_n pour laquelle se produit la nucléation en fonction de la température. Alors que ϵ_n diminue fortement lorsque l’on passe de 0 à 5 K, pour des températures supérieures la nucléation se produit toujours pour des déformations de 6,5 ou 6,6%. Cet événement de nucléation est bien thermiquement activé, mais dépend peu de la température au-delà de 10 K, pour la

Chapitre III. Paramètres influant sur la nucléation

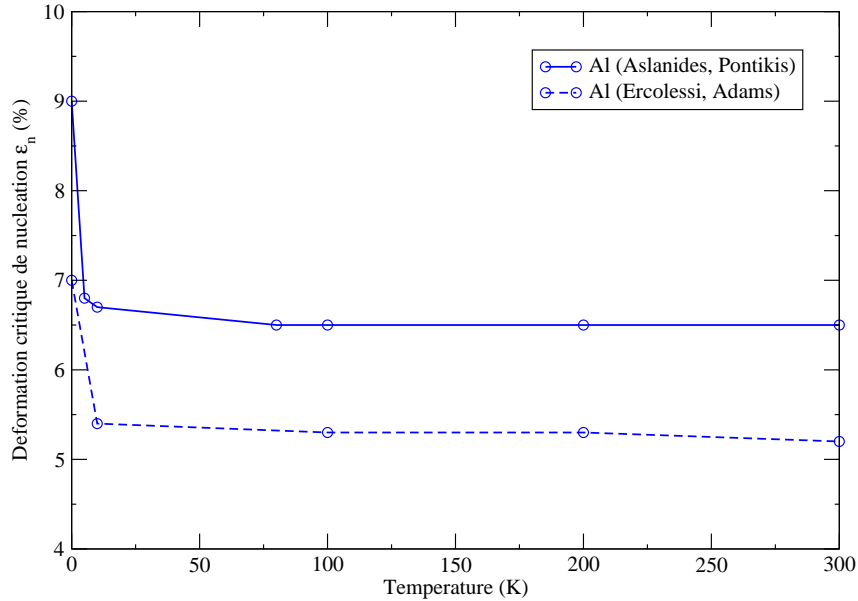


FIG. III.9 – Évolution de la déformation à laquelle se produit la nucléation en fonction de la température, pour une vitesse de déformation $\dot{\epsilon} = 5 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$. Les cercles correspondent aux simulations pour l'aluminium, avec le potentiel EAM d'Aslanides et Pontikis (ligne continue : cinq simulations au moins pour les températures de 100, 200 et 300 K, une seule pour les autres) et avec celui d'Ercolessi et Adams (tirets, une simulation à chaque température).

vitesse de déformation utilisée ici. C'est donc que la contrainte joue un grand rôle : si elle est trop faible, alors la barrière d'énergie sera sans doute beaucoup trop importante pour être franchie thermiquement aux températures et dans les intervalles de temps considérés ici.

À titre de comparaison, nous avons réalisé des simulations utilisant le potentiel proposé par Ercolessi et Adams pour l'aluminium [Ercolessi et Adams 1994]. Ces simulations montrent également une faible dépendance de la déformation critique vis-à-vis de la température dans la gamme 10-300 K (pointillés sur la Fig. III.9). La nucléation se produit toutefois à des déformations moindres : la limite athermique est d'environ 7%, et la nucléation se produit pour une déformation d'environ 5,3% pour $T > 10 \text{ K}$ et pour une même vitesse de déformation ($\dot{\epsilon} = 5 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$). Cette différence quantitative entre les deux potentiels pourrait être due à l'énergie de défaut d'empilement obtenue par le potentiel d'Ercolessi et Adams, bien plus faible que celle donnée par le potentiel d'Aslanides et

III.1 Effet de la température

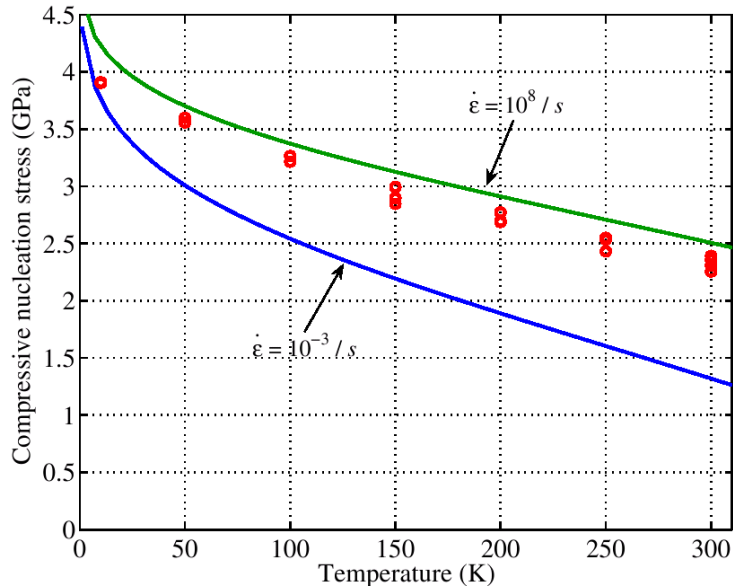


FIG. III.10 – Évolution de la contrainte de nucléation en fonction de la température dans un nanopilier de cuivre en compression [Zhu et al. 2008]. Les lignes continues sont les courbes théoriques, correspondant à des vitesses de déformation typiques des simulations (vert) et des expériences (bleu) ; les cercles correspondent aux simulations atomistiques réalisées par les auteurs.

Pontikis¹, conduisant ainsi à une sous-estimation de la barrière d'énergie à franchir.

Ces résultats peuvent être comparés avec ceux obtenus par Zhu *et al.* pour un nanopilier de cuivre subissant une compression (Fig. III.10). La contrainte de nucléation est alors relativement sensible à la température, passant de 4 GPa (environ 10% de déformation) pour une température de quelques Kelvin, à environ 2,3 GPa à 300 K. La sensibilité de la contrainte de nucléation à la température dépend donc fortement du matériau et du mécanisme impliqué.

¹Ercolessi et Adams : $\gamma_i^{EA} = 104 \text{ mJ/m}^2$; Aslanides et Pontikis : $\gamma_i = 155 \text{ mJ/m}^2$.

III.2 Influence de l'état de surface

Comme nous l'avons souligné dans le Chap. I, les défauts présents sur la surface sont pressentis pour être des sites privilégiés pour la nucléation. La nature de ces défauts, leur géométrie, doivent donc grandement conditionner la plasticité du matériau, et influencer sur la contrainte de nucléation notamment. Nous comparons ici trois types de défauts : une marche monoatomique rectiligne, une marche monoatomique irrégulière, et des marches plus hautes.

Dans cette section, le système est toujours soumis à une contrainte uniaxiale orthogonale à la ligne de marche ($\alpha = 0^\circ$). Les défauts formés sont toujours des dislocations partielles de Schockley de vecteur de Burgers \vec{b}_{90° , mais l'état de surface de départ influence fortement sur le plan de glissement activé et la déformation critique.

III.2.1 Marche de surface monoatomique

Les simulations présentées auparavant ont montré qu'en présence de marches monoatomiques, la déformation athermique se situe autour de 9%, et la contrainte de nucléation diminue avec la température. Dans tous les cas, la nucléation se produit systématiquement depuis les marches, et toujours dans le même plan de glissement (celui qui diminue la hauteur de la marche). Qu'est-ce qui conditionne ces résultats ?

Une analyse plus fine des déplacements atomiques montre que lors de la déformation du matériau, et *avant* la nucléation en elle-même, il existe un précisaillement dans un plan $\{111\}$ passant par la marche (Fig. III.11), ce qui avait déjà été observé par une étude précédente pour un système similaire [Brochard et al. 2000b, Brochard 1998]. Ce précisaillement existe même en l'absence de contrainte appliquée, et il devient de plus en plus important à mesure que la contrainte augmente. La marche a pour effet de localiser ce précisaillement dans un plan $\{111\}$ qui passe par la marche. Ainsi le plan de glissement

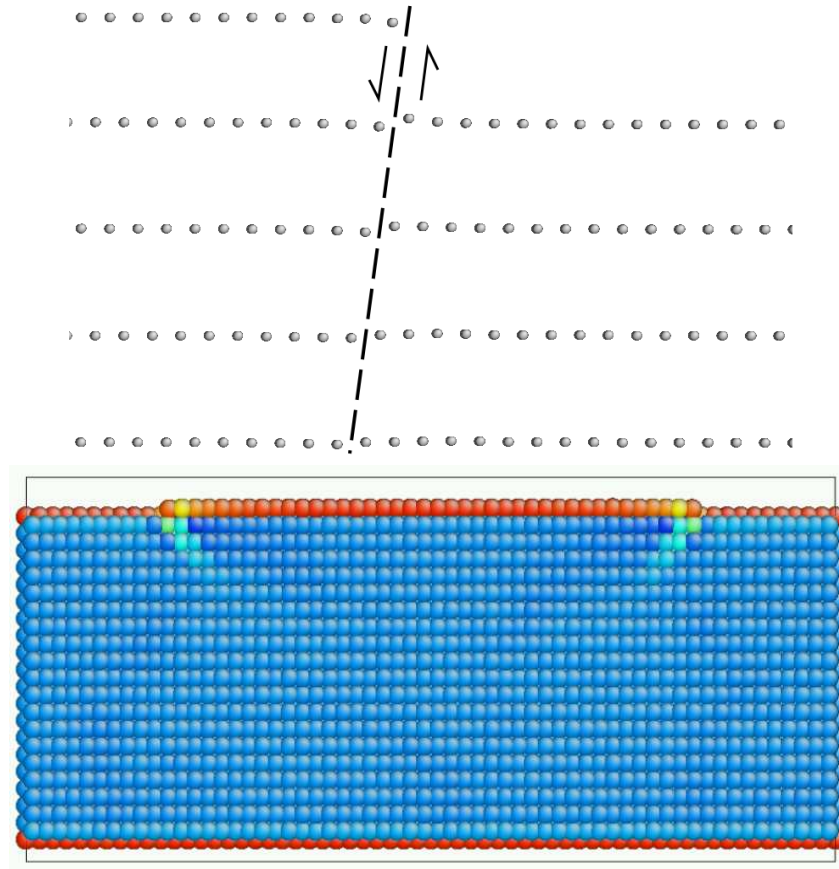


FIG. III.11 – Système à marches monoatomiques relaxé pour une déformation de 8%, avant nucléation.

(En haut) Les positions atomiques indiquent un précisaillement dans le plan $\{111\}$ diminuant la hauteur de marche. Les tirets correspondent au plan $\{111\}$, les flèches au sens du précisaillement. L'image a été déformée afin de mieux montrer l'effet dû au précisaillement.

(En bas) La coloration des atomes selon l'invariant de Von Mises montre que les atomes situés dans les plans $\{111\}$ passant par la marche (vert clair) subissent une contrainte plus élevée que les autres (bleu). Le précisaillement, et par la suite la nucléation, se produisent dans ces plans.

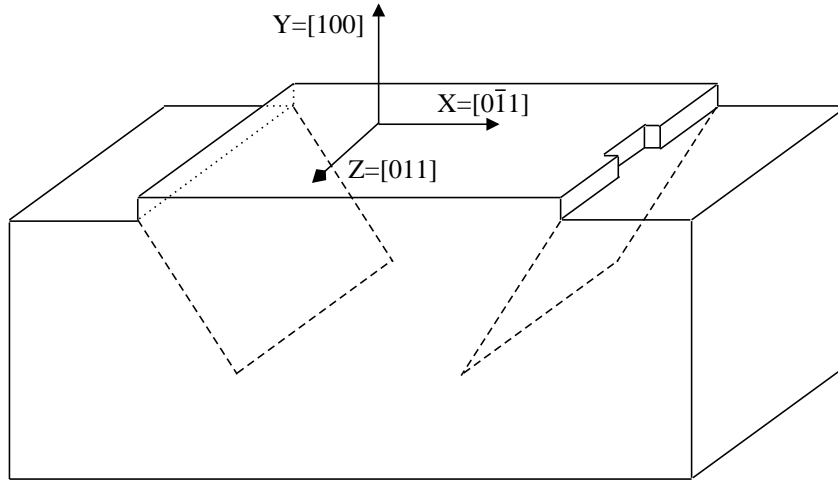


FIG. III.12 – Géométrie d'un système présentant une marche crantée (à droite).

qui sera activé est favorisé bien avant que la nucléation ait lieu.

À titre de comparaison, nous avons effectué des simulations sur des systèmes présentant des surfaces parfaites, sans aucune marche ni irrégularité. À 0 K, la limite élastique du matériau atteint 20%, et la plasticité se manifeste alors par la formation de multiples défauts depuis des sites indiscernables en surface. Cela confirme le rôle très important des marches de surface, qui diminuent grandement la contrainte nécessaire pour la nucléation, et la localisent.

Des simulations employant le potentiel d'Ercolessi et Adams montrent des résultats similaires dans le cas d'une marche monoatomique. Seule la déformation critique à laquelle se produit la nucléation change, comme nous l'avons vu précédemment (environ 5,3% pour $T > 10$ K).

III.2.2 Marche monoatomique crantée

La description de certains mécanismes, notamment la nucléation telle que décrite par Pirouz [Pirouz et Ning 1995] ou Edirisinghe [Edirisinghe et al. 1997], laisse sous-entendre

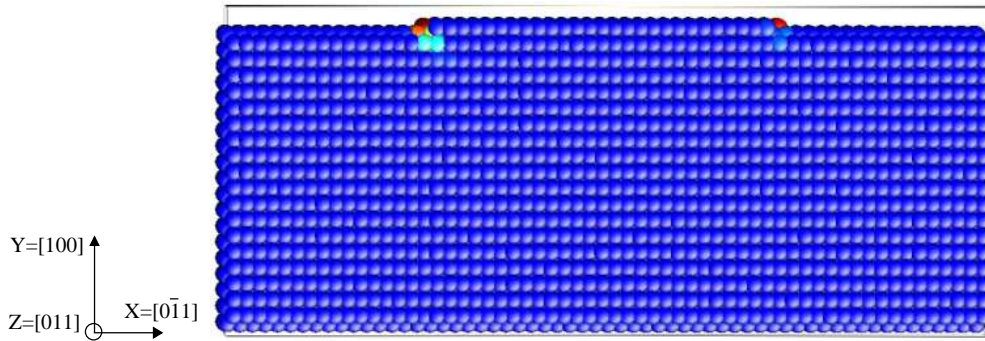


FIG. III.13 – Sur un système présentant une marche crantée, déformé de 9% et relaxé, la coloration des atomes selon l'invariant de Von Mises montre que les contraintes locales sont bien moins fortes au niveau d'un cran (à droite) que sous une marche rectiligne (à gauche).

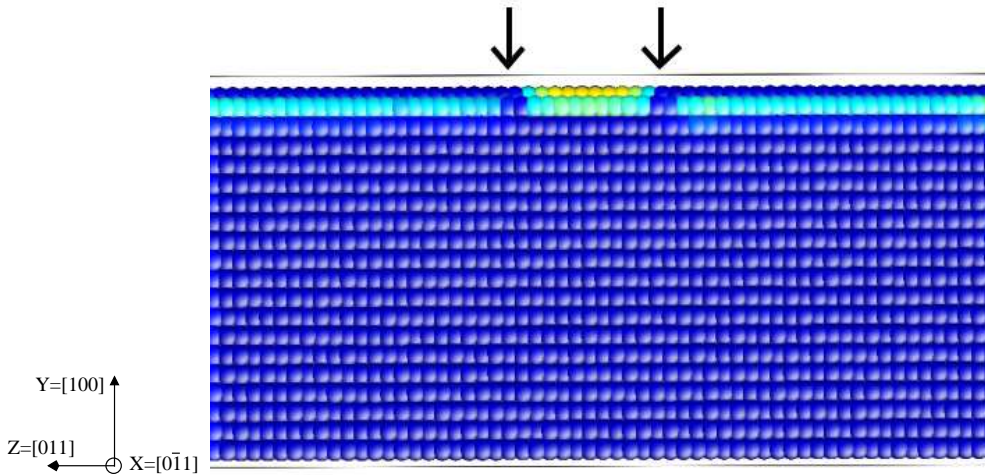


FIG. III.14 – Sur le système déformé de 9%, l'invariant de Von Mises montre également que le long de la marche, située en haut de la figure, les contraintes sont réduites au niveau des crans. Les deux crans le long de la marche (flèches) apparaissent nettement.

que des défauts le long des marches (décrochements) pourraient favoriser la nucléation de demi-boucles de dislocation. Nous avons donc testé une configuration de ce type. Le système est construit de la même manière que précédemment, et une dizaine d'atomes sont retirés le long d'une marche de surface pour former un cran, composé de deux décrochements (Fig. III.12).

Nous avons d'abord effectué des simulations à 0 K, afin d'observer si ce type de défaut pouvait modifier les conditions de nucléation par rapport à une marche parfaitement

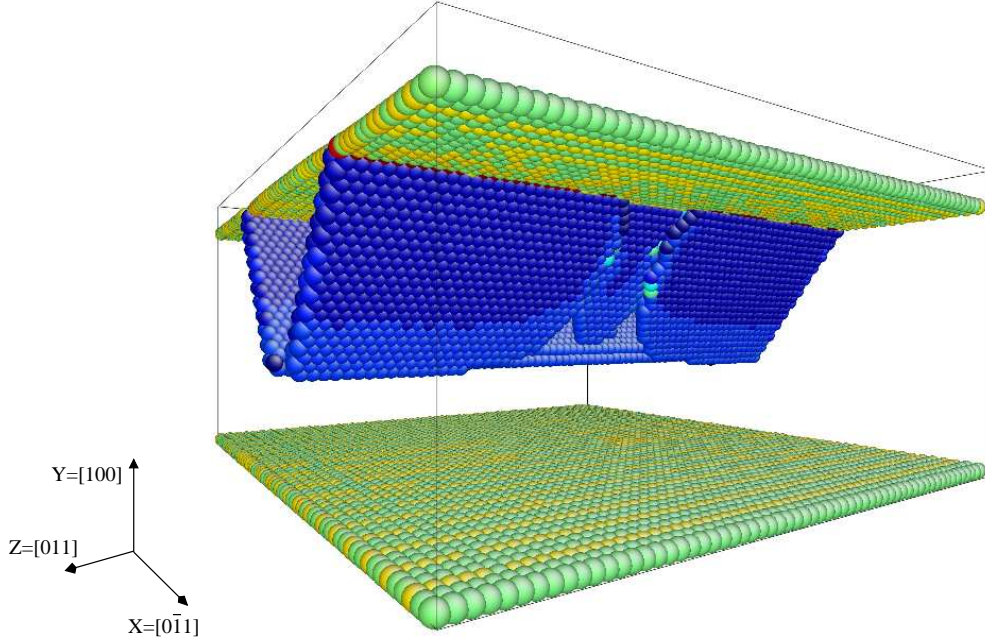


FIG. III.15 – Dislocations formées à 0 K dans un système déformé de 10%, présentant une marche crantée. Des dislocations sont émises depuis les deux marches ; dans le cas de la marche crantée (premier plan), deux dislocations se forment dans des plans $\{111\}$ adjacents, correspondant au cran initial.

rectiligne. Le système est déformé par pas de 1%. Le calcul de l'invariant de Von Mises montre qu'au niveau du cran, les contraintes ne se concentrent pas, mais au contraire sont réduites, comparativement aux contraintes qui existent au niveau d'une marche rectiligne (Fig. III.13 et III.14).

La limite élastique atteinte est de 10%, soit un peu plus élevée que pour une marche parfaitement rectiligne (9%). Les dislocations sont de nouveau des partielles de vecteur de Burgers \vec{b}_{90° diminuant la hauteur de marche, et la nucléation se fait simultanément à partir des deux marches, crantée et non crantée (Fig. III.15). Depuis la marche crantée, deux dislocations se forment dans des plans $\{111\}$ adjacents.

Nous avons ensuite étudié l'effet de la température dans ce même système, en le déformant par pas de 0,1% ($\dot{\epsilon} = 5 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$) à 300 K dans deux simulations en dynamique

III.2 Influence de l'état de surface

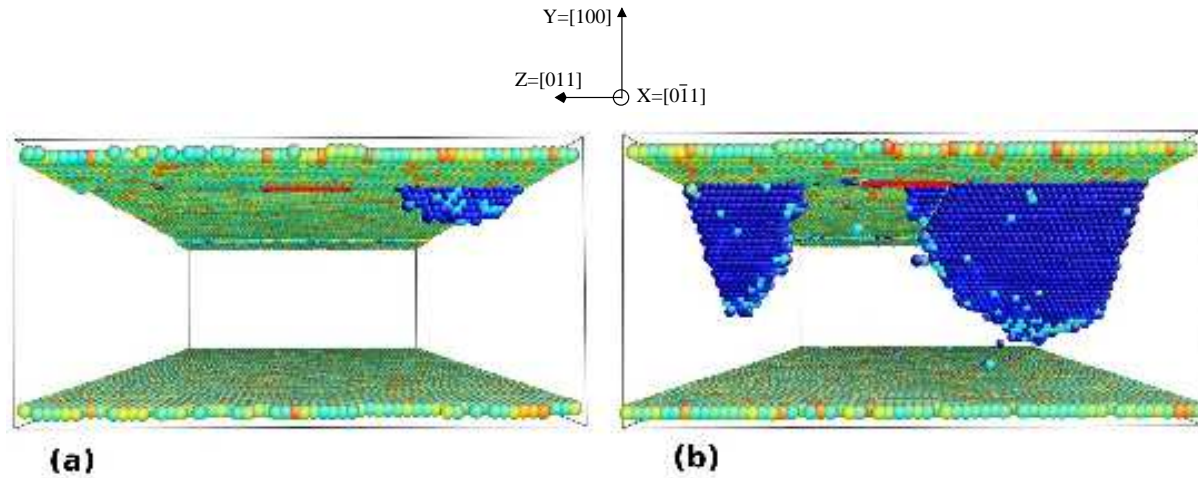


FIG. III.16 – Dislocations formées à 300 K dans un système déformé de 6.5%, présentant une marche crantée (la position du cran est soulignée en rouge). La dislocation se forme à côté du cran (a), et sa propagation le long de la marche est "gênée" par le décrochement (b). Une seconde dislocation se forme alors dans le plan de glissement adjacent.

moléculaire. Dans un premier cas, une demi-boucle de dislocation se forme pour une déformation de 6,5% depuis la marche rectiligne, la marche crantée restant intacte. Ceci semble indiquer que les décrochements présents sur l'autre marche ne constituent pas des endroits privilégiés pour la nucléation. Dans un second cas, une dislocation se forme depuis la marche crantée (Fig. III.16a), mais relativement loin du décrochement lui-même, pour une déformation de 6,6%. La propagation de cette dislocation se trouve momentanément bloquée par le décrochement qu'elle rencontre le long de la marche; elle poursuit ensuite sa course alors qu'une deuxième dislocation se forme dans le plan $\{111\}$ adjacent, depuis la marche située dans le cran (Fig. III.16b).

Ainsi, les décrochements le long des marches ne constituent certainement pas des sites privilégiés pour la nucléation. Ceci peut s'expliquer par leur caractère ponctuel, donc de plus faible dimensionnalité que les dislocations. Cette différence topologique fondamentale rend les décrochements plutôt mal adaptés pour la formation de dislocations. Ces sites seraient même plutôt inhibiteurs de la nucléation, puisque comme nous l'avons vu, ils ont un caractère partiellement bloquant sur la propagation des dislocations.

III.2.3 Influence de la hauteur de marche

Si les marches de surface sont rarement parfaites dans les études expérimentales, elles sont également rarement monoatomiques. Il apparaît donc pertinent de vérifier si la hauteur de la marche h influence la nucléation de quelque manière que ce soit, l'idée étant qu'*a priori* une marche plus haute concentrerait plus de contrainte, et permettrait donc l'apparition de la plasticité à une plus faible déformation appliquée.

Tout d'abord, un système présentant des marches de surface hautes de deux couches atomiques a été construit, et trois tests de traction ont été effectués, à une température de 300 K et toujours avec la même vitesse de déformation $\dot{\epsilon} = 5 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$. Dans tous les cas, une déformation de 7,5% a été nécessaire pour voir un événement plastique se produire, soit bien plus que dans le cas d'une marche monoatomique ($\approx 6,5\%$). De plus, si les dislocations formées sont bien toujours les mêmes (des partielles de Shockley), le plan de glissement n'est plus le même, et la nucléation augmente cette fois-ci la hauteur de marche (Fig III.17). À titre d'exemple sur la Fig. III.17, depuis la marche située à droite c'est une dislocation de type $\frac{1}{6}[21\bar{1}](1\bar{1}1)$ qui se forme, alors que dans le cas d'une marche monoatomique seules des dislocations de type $\frac{1}{6}[2\bar{1}1](11\bar{1})$ ont été observées. Ainsi, le simple fait de passer d'une marche monoatomique à une marche double a modifié le mécanisme de nucléation, et augmenté la déformation critique.

Des tests de traction similaires ont été réalisés sur des systèmes présentant des marches plus hautes, $h=4, 6$ et 8 couches atomiques, à 300 K ($\dot{\epsilon} = 5 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$). Le mécanisme de plasticité reste le même que pour la marche double : l'émission d'une dislocation augmente la hauteur de la marche, ainsi que la surface $\{111\}$ qui lui est associée. De plus, nous avons observé qu'à mesure que la hauteur initiale de marche augmente, la contrainte de nucléation diminue de façon inversement proportionnelle (Fig. III.18) ; elle passe ainsi

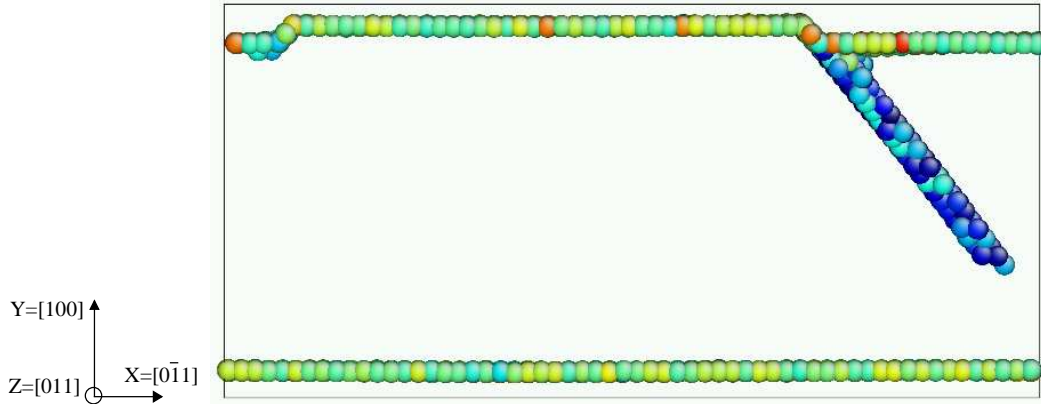


FIG. III.17 – Dislocation formée à 300 K dans un système déformé de 7.5%, présentant une marche haute de deux atomes. Le glissement se fait dans le plan $\{111\}$ qui augmente la hauteur de la marche.

d'environ 4,1 GPa ($\epsilon = 7,5\%$) pour $h = 2$, à 3,7 GPa ($\epsilon = 6,1\%$) pour $h = 8$. Si l'ajustement avec une fonction en $1/h$ est correct, alors la contrainte de nucléation pour des marches hautes de 10 et 20 atomes serait d'environ 3,5 et 3,4 GPa, respectivement.

Pour rappel, Li *et al.* avaient obtenu une diminution de moitié de la contrainte de nucléation lorsque la hauteur de marche augmentait d'un ordre de grandeur, en appliquant un modèle de Peierls-Nabarro à l'étude de la nucléation [Li et Xu 2006]. Ces résultats ont ensuite été confirmés par Segall *et al.* grâce à des simulations atomistiques dans le tantale et le molybdène [Segall et al. 2006a]; ces auteurs ont également observé un changement de direction de glissement lorsque la hauteur de marche augmente². Ici, le comportement est qualitativement le même, mais la diminution n'est pas aussi brutale, la contrainte de nucléation diminuant d'un facteur 1,2 entre une marche double et une marche $h = 20$.

Les simulations que nous avons effectuées dans l'aluminium pour des marches $h \geq 2$ montrent que le glissement ne s'opère pas dans le même type de plan $\{111\}$ que dans le cas d'une marche monoatomique. Quelle est la cause d'un tel changement de mécanisme ?

²Ces deux métaux cristallisent dans la structure cubique centrée, pour laquelle les dislocations sont différentes de la structure cfc. Dans les deux études citées ici, les auteurs observent des dislocations dans des plans de type $\{110\}$ ou $\{112\}$.

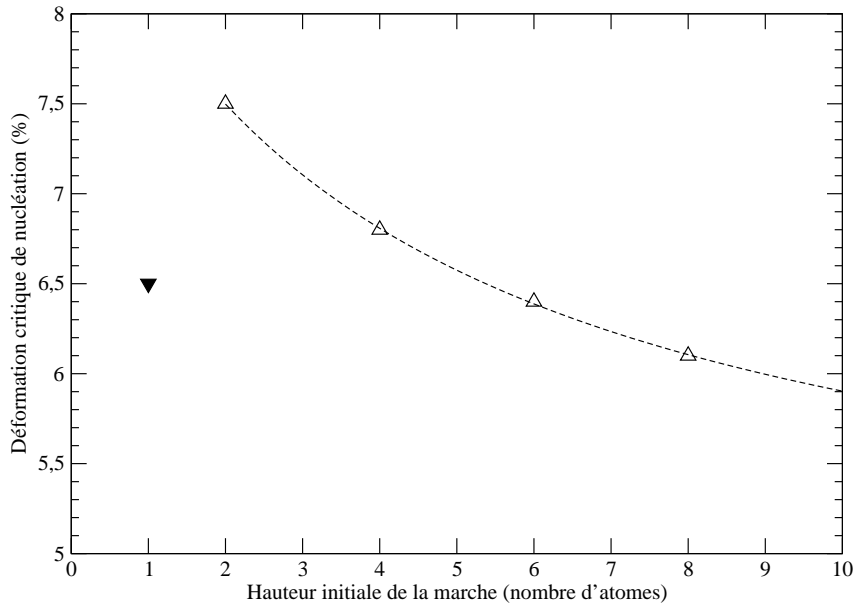


FIG. III.18 – Évolution de la déformation à laquelle se produit la nucléation en fonction de la hauteur de la marche de surface. Le triangle pointant vers le bas correspond à un mécanisme de nucléation diminuant la hauteur initiale de marche ; ceux pointant vers le haut à un mécanisme augmentant la hauteur de marche. La ligne pointillée correspond à un ajustement avec une fonction inversement proportionnelle à la hauteur initiale de marche (pour $h > 2$).

Il est possible de représenter les configurations atomiques après glissement dans différents plans $\{111\}$ passant par une marche double (Fig. III.19). Dans trois plans de glissement en zone avec la marche, la nucléation diminue la hauteur initiale de la marche (b,c,d), et dans un autre elle l'augmente (e). Cependant les configurations (b) et (d) mènent à des surfaces irrégulières, dont la formation doit requérir de grandes énergies ; ceci est d'autant plus vrai si on considère la formation de demi-boucles de dislocation, pour lesquelles l'intersection avec la surface mènerait à des configurations étranges. En revanche, l'activation des plans de glissement (c) et (e) mènent à des marches de surface de configuration similaire à ce que nous avons vu auparavant, et doit donc demander bien moins d'énergie. Pour le potentiel d'Aslanides et Pontikis, la contrainte et le précisaillement se localisent dans le plan (e) qui augmente la hauteur de marche (Fig. III.20), et c'est ce plan qui est activé lors de la nucléation. En revanche, avec le potentiel d'Ercolessi et Adams, c'est le plan (c), diminuant la hauteur de la marche, qui est activé pour $h = 1$ (à une déformation $\epsilon = 5,3\%$), ainsi que pour $h = 2$ (à une déformation de 6%).

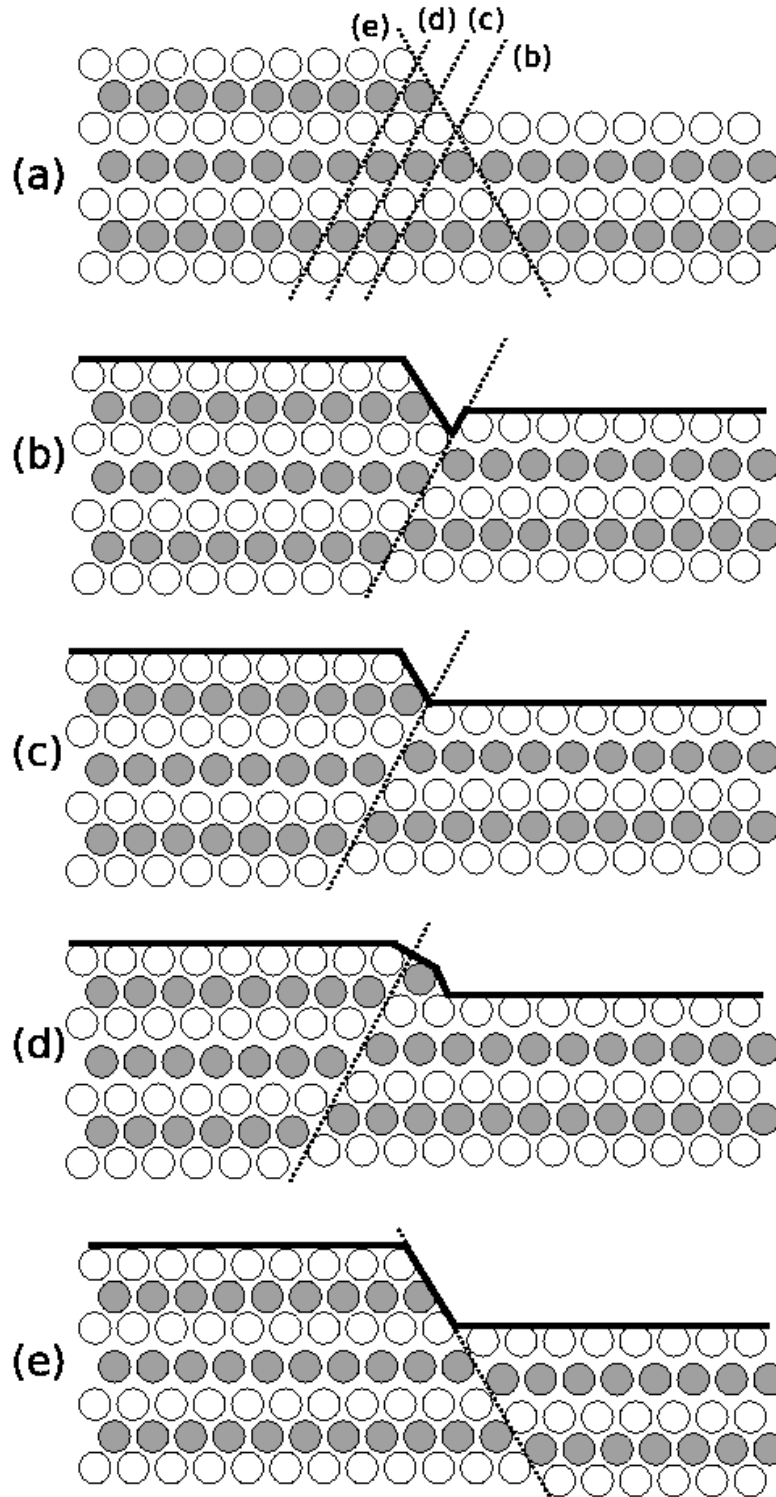


FIG. III.19 – Systèmes de glissement possibles passant par une marche double. Les cercles blancs correspondent aux atomes dans le plan de la figure, ceux en gris aux atomes au-dessus ou en-dessous. (a) On peut distinguer quatre plans de glissement (pointillés) passant par la marche : (b,c,d) trois faisant diminuer la hauteur initiale de marche, de même orientation que le plan activé pour une marche monoatomique ; et (e) un faisant augmenter la hauteur de marche. Les plans de faibles indices sur les surfaces finales sont indiqués par des lignes épaisses.

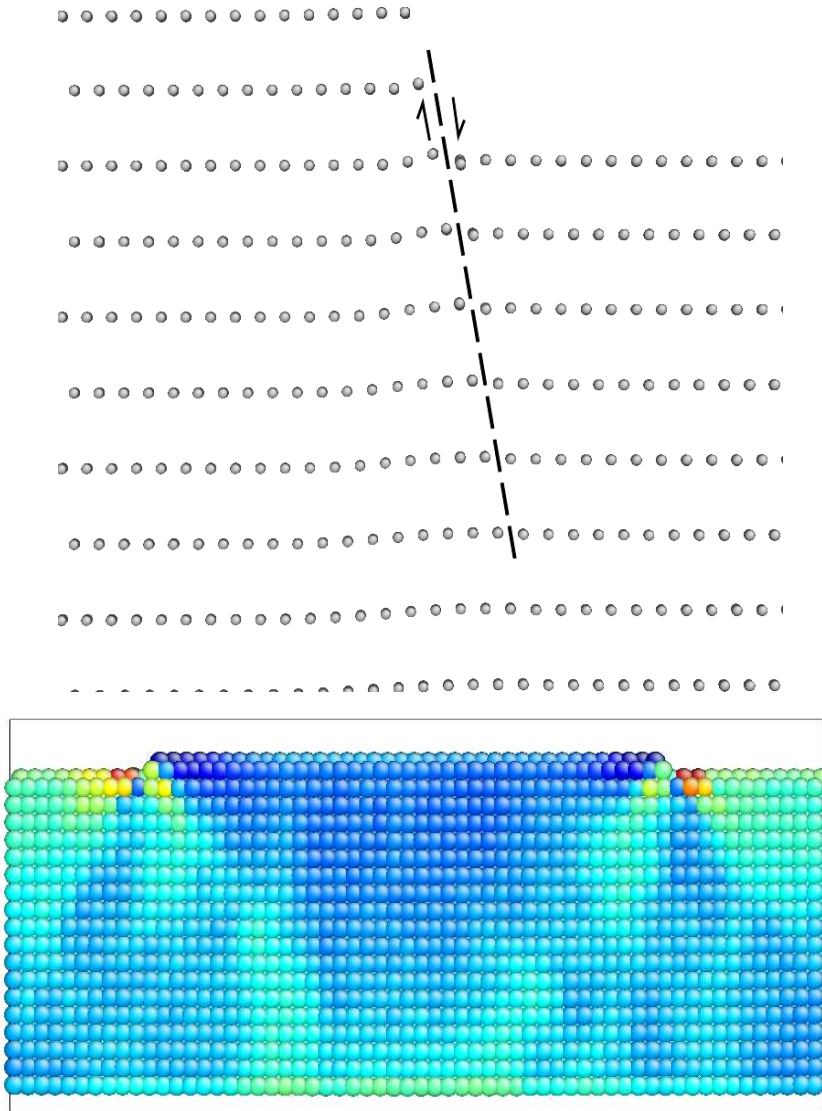


FIG. III.20 – Système à marches doubles avant nucléation, pour une déformation de 7,1%. (En haut) Les positions atomiques relaxées indiquent un précisaillement dans le plan $\{111\}$ (tirets) augmentant la hauteur de marche. (En bas) La coloration des atomes selon l'invariant de Von Mises montre que la contrainte est plus concentrée au pied de la marche, et dans le plan augmentant la hauteur de marche.

III.3 Influence de l'orientation et du sens de la contrainte

Pour résumer, le possible changement de mécanisme entre $h = 1$ et $h = 2$ peut s'expliquer par la compétition entre les deux plans de glissement (c) et (e). Pour $h = 1$, c'est le plan (c) qui est activé quel que soit le potentiel, car il diminue l'énergie du système. Pour $h = 2$, il y a compétition entre deux plans de glissement : (c) qui mène à la diminution partielle de la marche, mais laisse tout de même une marche sur la surface; et (e) qui augmente la surface $\{111\}$. L'activation de l'un ou l'autre mécanisme dépendra des énergies mises en jeu, lesquelles dépendent du potentiel utilisé. D'autres simulations seraient nécessaires afin d'observer s'il existe, avec le potentiel d'Ercolessi et Adams, un changement de mécanisme pour des marches plus hautes ($h > 2$).

Pour le potentiel d'Aslanides et Pontikis, la Fig. III.18 montre que la contrainte de nucléation diminue lorsque la hauteur de marche augmente au-delà de $h = 2$. Les études précédentes [Li et Xu 2006, Segall et al. 2006a] évoquent des effets de couplage entre le champ de contrainte dû à la marche, qui dépend de la déformation ϵ et de la hauteur de marche h , et l'augmentation de surface de l'ordre de $2bR$ lié à la nucléation. Dans le cadre de ce travail de thèse, nous n'avons pu déterminer quantitativement ce qui cause une diminution de la contrainte de nucléation (donc de l'énergie d'activation) lorsque la hauteur de marche augmente.

III.3 Influence de l'orientation et du sens de la contrainte

Jusqu'à présent, nous n'avons considéré que le cas d'un essai de traction dans la direction orthogonale à la ligne de marche, ce qui donne aux partielles de Shockley 90° le facteur de Schmid maximum. Or, d'autres orientations de contrainte privilégient d'autres types de dislocations. De plus, nous avons vu dans le Chap. I que les nanopiliers sont souvent soumis à une compression plutôt qu'à une traction. Il est donc important d'avoir une indication des effets de l'orientation et du sens de la contrainte sur l'événement de

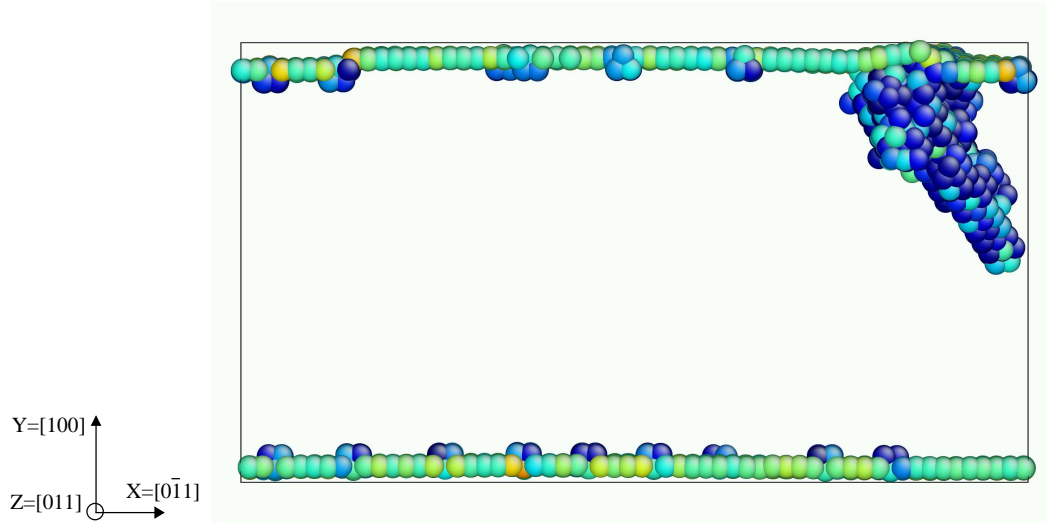


FIG. III.21 – Formation de dislocations dans un échantillon déformé de 7,1% en compression.

nucléation.

Nous présentons ici des simulations effectuées sur un système à marches monoatomiques, en compression, et pour deux orientations de contrainte en traction (Fig. II.5) : $\alpha = 18^\circ$ pour laquelle le facteur de Schmid est maximal pour la dislocation parfaite, et $\alpha = 36^\circ$ pour laquelle le facteur de Schmid est maximum pour la partielle de Shockley 30° .

III.3.1 Compression

Pour une compression selon l'axe $[0\bar{1}1]$ ($\alpha = 0^\circ$), ce sont les partielles 90° qui ont le facteur de Schmid le plus élevé ; cependant l'étude de la γ -surface de l'aluminium (Fig. II.8) montre que ce type de déplacement est impossible. Ce sont donc les parfaites 60° qui sont privilégiées dans cette orientation de contrainte.

Nous avons simulé des tests de compression sur un système possédant deux marches monoatomiques, à une température de 300 K. Au final, la nucléation intervient pour une déformation de 7,1%, ce qui équivaut à une contrainte de 9,3 GPa, soit bien plus grande

III.3 Influence de l'orientation et du sens de la contrainte

que pour une traction sur le même système.

Plusieurs dislocations se nucléent dans différents plans $\{111\}$ près d'une marche, formant une structure complexe de dislocations (Fig. III.21). L'analyse des déplacements relatifs permet toutefois d'identifier la formation d'une partielle de tête 30° , en accord avec l'analyse basée sur la γ -surface.

III.3.2 Traction désorientée

Dans le cas d'une traction uniaxiale désorientée par rapport à la normale à la marche ($\alpha \neq 0$), le facteur de Schmid pour les différentes dislocations possibles est grandement modifié; le type de défaut dont la formation sera privilégiée changera donc aussi (voir Chap. II). Nous avons vérifié que les simulations atomistiques reproduisaient bien ce comportement, en testant deux orientations de contrainte à une température de 300 K.

Pour une orientation $\alpha = 18^\circ$, le facteur de Schmid est maximum pour la dislocation parfaite 60° ; ce type de dislocation tend à se dissocier en deux partielles (voir Chap. II). Nous avons effectué une simulation pour cette orientation de contrainte. Il se nucléé, depuis la marche, d'abord une dislocation partielle de vecteur de Burgers \vec{b}_{90° , puis une de vecteur de Burgers \vec{b}_{30° , les deux étant séparées d'environ 30 Å (Fig. III.22). Cette distance de dissociation est comparable à celles obtenues expérimentalement, comprises entre 14 et 68 Å [Liao et al. 2004]; cette faible distance est également cohérente avec la grande énergie de défaut d'empilement qui caractérise l'aluminium. Les dislocations obtenues dans cette simulation correspondent donc à une dislocation parfaite dissociée, ce qui est bien en accord avec la prédiction basée sur le facteur de Schmid.

Pour une autre traction, désorientée cette fois de 36° par rapport à la normale aux marches, le facteur de Schmid est maximum pour la dislocation partielle 30° . Or au cours

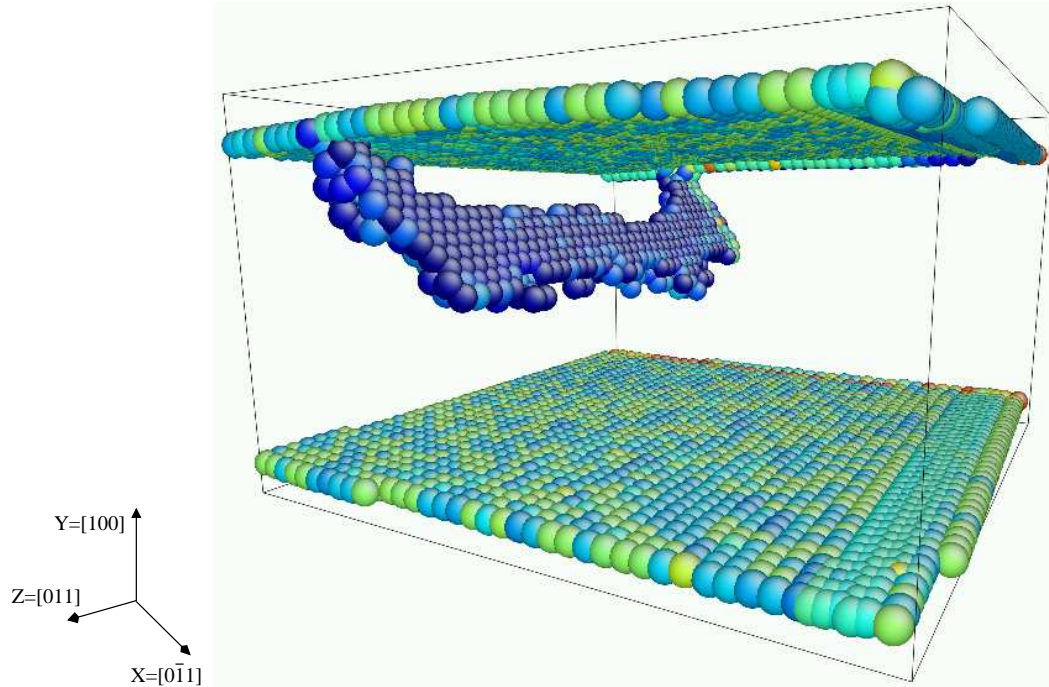


FIG. III.22 – Formation d’une dislocation parfaite dissociée dans un échantillon à 300 K sous une contrainte appliquée de 6 GPa désorientée de 18° .

de la simulation correspondante, il se nucléé d’abord une dislocation 90° , puis une dislocation 30° qui efface le défaut d’empilement (Fig. III.23). Il s’agit donc là aussi d’une dislocation parfaite dissociée; la distance de dissociation est du même ordre que celle mesurée précédemment pour $\alpha = 18^\circ$. Ceci correspond à l’analyse basée sur la γ -surface : la formation d’une partielle 30° est impossible, il se nucléé donc une dislocation parfaite dissociée.

III.4 Influence de la vitesse de déformation

La vitesse de déformation est un paramètre clé lors d’essais de traction expérimentaux. Comme nous l’avons vu dans le Chap. I, on s’attend à ce qu’elle joue un rôle sur les paramètres *extrinsèques* de la nucléation, comme la contrainte de nucléation. Ainsi, passer d’une vitesse de déformation de 10^8 s^{-1} , typique des simulations, à $\sim 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, ordre

III.4 Influence de la vitesse de déformation

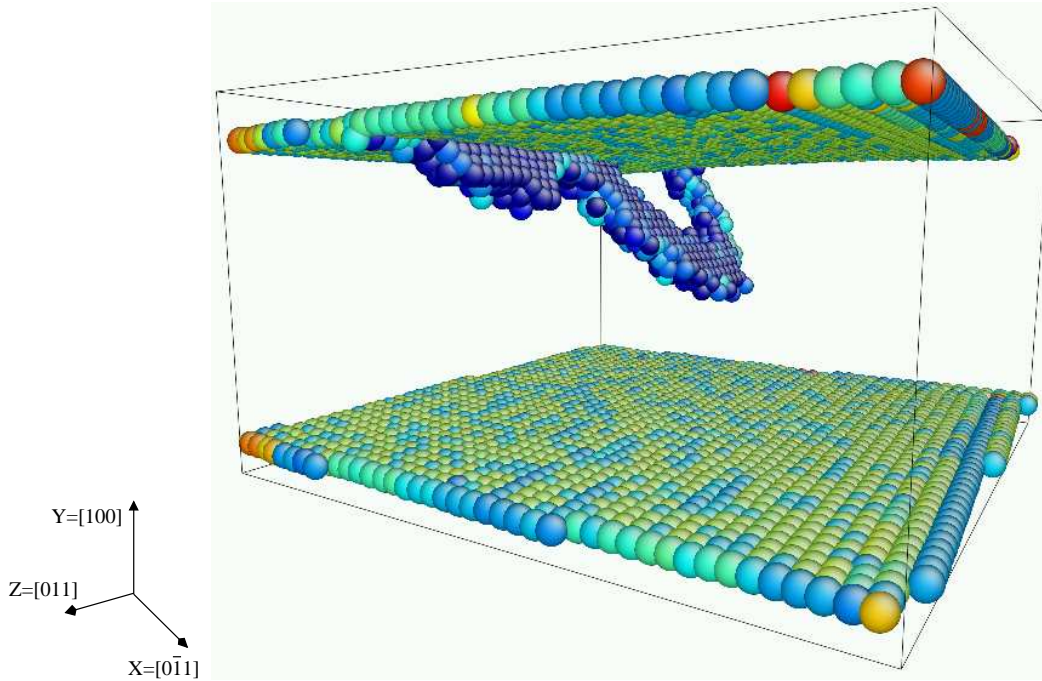


FIG. III.23 – Formation d’une dislocation parfaite dissociée dans un échantillon à 300 K sous une contrainte appliquée de 7 GPa désorientée de 36° .

de grandeur caractéristique des expériences, peut diminuer la contrainte de nucléation de moitié [Zhu et al. 2008]. Les paramètres *intrinsèques* (énergie et volume d’activation, rayon critique), eux, devraient être indépendants de la vitesse de déformation.

Pour observer des effets notables, il serait nécessaire de recourir à des expériences sur de l’aluminium monocristallin possédant très peu de défauts ; des expériences de traction à différentes vitesses de déformation devraient révéler la dépendance de la nucléation à ce paramètre. Les simulations à l’échelle atomique ne pouvant simuler que des événements se produisant en quelques nanosecondes au mieux, elles sont contraintes à employer de très hautes vitesses de déformation ($10^7 \sim 10^8 \text{ s}^{-1}$). Restant dans un cadre de simulation numérique, nous n’avons pu, lors de ce travail de thèse, étudier l’influence de la vitesse de déformation sur l’événement de nucléation.

III.5 Conclusions

Dans ce Chapitre, l'importance de différents paramètres sur l'événement de nucléation a été analysée, à l'aide de simulations à 0 K et en température. Il apparaît clairement que certains paramètres ont une grande influence sur la nucléation.

Tout d'abord, la température a pour premier effet de diminuer la déformation à laquelle se produit la nucléation, qui passe de 9% à 0 K, à environ 6,5% à 300 K dans les conditions imposées par les simulations (temps de nucléation limité à 20 ps à une déformation donnée). En effet, l'agitation thermique permet d'augmenter la fréquence de franchissement de la barrière, et la nucléation devient donc de plus en plus probable lorsque la température augmente. D'autre part, si le type de défaut formé reste le même quelle que soit la température, à savoir des partielles de Shockley, la forme des dislocations change : à 0 K elles sont rectilignes, tandis qu'à haute température on observe des demi-boucles de dislocations ; la formation de ces demi-boucles est donc bien thermiquement activée. Cependant, nous avons observé qu'augmenter la température n'affecte pas beaucoup la contrainte de nucléation.

En comparaison, l'état de surface joue un grand rôle sur la contrainte de nucléation. Sans grande surprise, les surfaces parfaites sont celles qui montrent la plus grande limite élastique. Ensuite, la diminution de cette limite va dépendre du type de défaut introduit sur la surface. Une marche monoatomique facilite la nucléation d'une partielle 90° qui *diminue* la hauteur de la marche. L'introduction de décrochements le long d'une marche ne semble pas faciliter la nucléation, elle serait même plutôt inhibitrice de la nucléation, et aurait un effet bloquant sur la propagation des dislocations. Enfin, des marches plus hautes peuvent entraîner un changement de mécanisme, des partielles se nucléant cette fois dans le plan $\{111\}$ qui *augmente* la hauteur de la marche. Cependant, ce changement de mécanisme entre marches monoatomiques et marches plus hautes semble dépendre du potentiel, et devra être vérifié par d'autres simulations.

Le troisième paramètre clé dans le processus de nucléation est bien sûr la contrainte. D'abord parce que son orientation détermine le type de défaut qui va se nucléer préférentiellement ; la nature de la dislocation peut être prédite en suivant l'estimation basée sur le calcul du facteur de Schmid, et en analysant la topologie de la γ -surface. Ensuite parce que la contrainte de nucléation dépend en principe de la vitesse de déformation ; or nous avons vu que les méthodes atomistiques ne permettent de simuler que des vitesses de déformations très élevées. Nous n'avons donc pas pu, dans cette thèse, tester plus avant les effets de ce paramètre. Il est cependant possible, une fois les paramètres d'activation déterminés, d'évaluer l'évolution de la contrainte de nucléation en fonction de la vitesse de déformation [Zhu et al. 2008]. La détermination des paramètres d'activation est donc incontournable pour étudier en détail l'évènement de nucléation, et permettre une meilleure comparaison avec l'expérience.

La nucléation de cette première demi-boucle de dislocation constitue le premier évènement de déformation plastique du matériau, et est souvent suivie de la formation d'autres défauts tels une partielle de queue ou bien une micro-macle. Cette évolution ultérieure est discutée en détail dans le Chap. V. Avant cela, il convient de caractériser la barrière d'énergie associée à ce premier évènement. Quelle est l'énergie d'activation, et quel rayon critique la demi-boucle de dislocation doit-elle atteindre pour pouvoir se propager ? Dans le Chapitre suivant, nous proposons différentes méthodes d'investigation pour apporter des réponses à ces questions. Nous appliquons ces méthodes à un système présentant des marches de surface monoatomiques rectilignes qui, comme nous avons pu le voir, semble être la configuration la plus simple à étudier.

Chapitre IV

Détermination des paramètres d'activation

Dans le Chapitre précédent, nous avons étudié l'influence de différents paramètres sur les premiers stades de la plasticité dans l'aluminium sous contrainte. Dans ce Chapitre, nous cherchons à déterminer précisément les paramètres d'activation pour la nucléation, dans un système présentant deux marches rectilignes monoatomiques de surface, et soumis à une contrainte de traction orthogonale aux lignes de marche. En effet, d'après ce que nous avons pu voir il s'agit du système qui présente la géométrie la plus simple, et privilégie grandement la formation d'une seule partielle de Shockley ; cela nous permettra donc de nous focaliser sur la nucléation de ce type particulier de défaut.

Comme cela a été exposé dans le Chap. I, la nucléation nécessite le franchissement d'une barrière d'énergie. Cette barrière est caractérisée par des paramètres qui peuvent être considérés comme intrinsèques, puisqu'ils ne dépendent d'aucun facteur extérieur si ce n'est la contrainte appliquée : une énergie d'activation et un rayon critique que la dislocation doit atteindre pour se propager. Nous utilisons dans ce Chapitre plusieurs méthodes pour déterminer ces paramètres d'activation intrinsèques.

Chapitre IV. Détermination des paramètres d'activation

Le rayon critique, tout d'abord, peut être obtenu en suivant l'évolution de différentes configurations issues de la dynamique moléculaire. Ces résultats peuvent dès lors être utilisés pour ajuster les paramètres du modèle élastique de Beltz et Freund, présenté au Chap. II. Une fois la configuration atomique au point critique déterminée, elle peut être utilisée pour le calcul de l'énergie d'activation, par une méthode de relaxation contrainte. Ensuite, nous verrons que la méthode Nudged Elastic Band permet d'obtenir l'ensemble des paramètres d'activation de manière plus systématique. Enfin, l'évolution de l'énergie d'activation en fonction de la contrainte appliquée donne accès au volume d'activation, valeur qui est le plus souvent obtenue expérimentalement.

IV.1 Détermination du rayon critique

IV.1.1 Utilisation de la dynamique moléculaire : méthode d'essai-erreur

Afin de déterminer la taille critique associée à la formation d'une demi-boucle de dislocation stable, la méthode suivante, qui s'apparente à un procédé "essai-erreur", a été appliquée (Fig. IV.1). Lors d'un test de traction en température, et sur un système déformé de 6,6% dans lequel une dislocation se forme, les positions atomiques sont sauvegardées tous les 50 pas de dynamique, c'est-à-dire toutes les 0,2 ps. Chacune des configurations ainsi obtenues comprend une demi-boucle de rayon R . Afin de minimiser l'influence de la surface inférieure, seules des configurations caractérisées par un rayon R inférieur à la moitié de l'épaisseur de l'échantillon ont été retenues. Ensuite, chaque configuration est ramenée à une déformation ϵ inférieure à 6,6%, et les vitesses atomiques sont annulées afin d'effacer l'historique de la dynamique du système. Le but est alors de déterminer comment la configuration va évoluer lorsque l'on minimise son énergie, autrement dit, si la dislocation va se rétracter en surface (Fig. IV.1a) ou bien se propager (Fig. IV.1b), indiquant que R est respectivement inférieur ou supérieur au rayon critique R_c . Pour

IV.1 Détermination du rayon critique

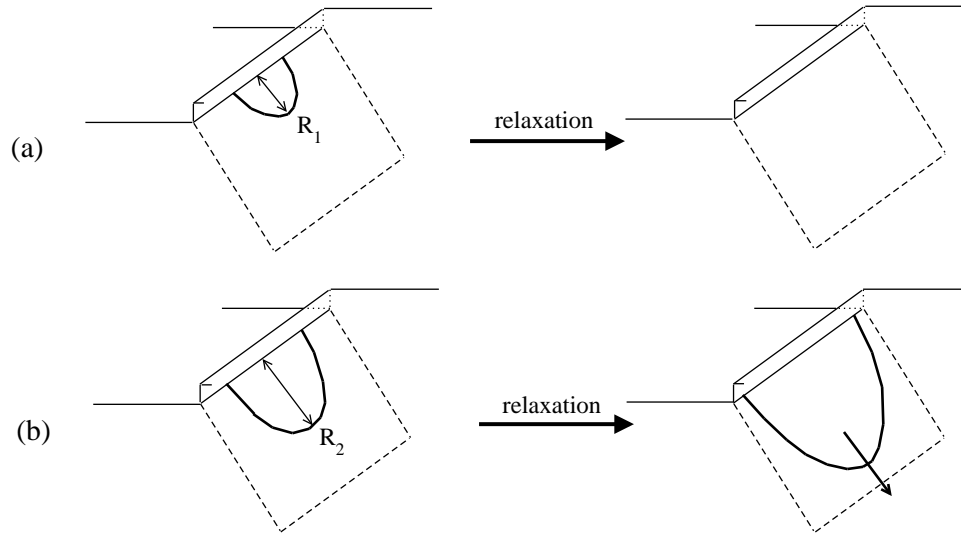


FIG. IV.1 – Principe de la méthode essai-erreur. (a) Un système placé sous une déformation donnée, contenant une dislocation de rayon R_1 (à gauche), est relaxé ; la dislocation se rétracte en surface (à droite), c'est donc que R_1 est inférieur au rayon critique R_c .

(b) Pour la même déformation, un système contenant une dislocation de rayon R_2 (à gauche) est relaxé ; la dislocation se propage (à droite), R_2 est donc supérieur à R_c .

chaque déformation appliquée, des configurations correspondant à des demi-boucles de plus en plus grandes ont ainsi été relaxées, jusqu'à ce qu'un changement dans la direction de propagation de la dislocation soit observé, permettant de déterminer le rayon critique.

Cette méthode a été appliquée pour obtenir la variation du rayon critique de la demi-boucle de dislocation en fonction de la déformation appliquée. Cette variation est représentée sur la Fig. IV.2. Elle peut être assez bien ajustée par une simple fonction inversement proportionnelle à ϵ (courbe pointillée), en accord avec la compétition entre la force image, proportionnelle à $1/R$, et la force due à la contrainte, proportionnelle à la déformation ϵ . Le rayon critique prend des valeurs très faibles (quelques Å) pour les hautes déformations ($\epsilon \gtrsim 6\%$). Les embryons de dislocation peuvent alors facilement atteindre de tels rayons, ce qui rend la nucléation plus probable. *A contrario*, R_c augmente de façon importante pour les faibles déformations, dépassant les 40 Å pour $\epsilon \approx 4\%$. Pour atteindre de tels rayons, le mouvement cohérent de nombreux atomes est nécessaire, ce qui rend la nucléation relativement improbable.

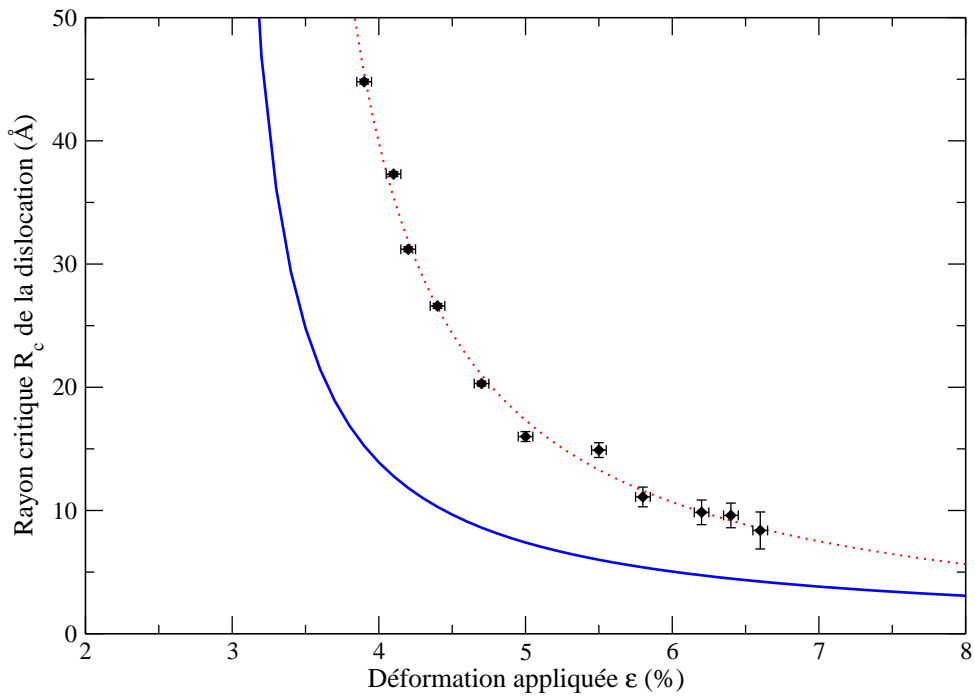


FIG. IV.2 – Évolution de la taille critique d'une dislocation en fonction de la déformation. Les valeurs obtenues par simulation (losanges) ont été ajustées par une fonction dépendant inversement de ϵ (pointillés). La courbe correspondant au modèle élastique d'une dislocation rectiligne infinie (Eq. II.4) a également été reportée (trait plein).

IV.1 Détermination du rayon critique

La courbe obtenue ici pour une demi-boucle diffère sensiblement de la courbe correspondant au modèle élastique de la formation d'une dislocation rectiligne infinie (ligne continue), cette dernière sous-estimant systématiquement la distance critique à atteindre. Il importe donc de prendre correctement en compte la forme de la dislocation dans le modèle élastique utilisé, afin d'avoir une estimation correcte des paramètres d'activation.

IV.1.2 Ajustement du modèle élastique

Nous avons montré dans le Chap. I que des modèles élastiques fournissent des équations analytiques permettant d'obtenir simplement l'évolution de la barrière d'énergie en fonction de la contrainte pour une demi-boucle de dislocation. Nous reprenons ici le modèle de Beltz et Freund, présenté en détail dans le Chapitre II. Afin de tenir compte de la géométrie du système que nous étudions dans ce Chapitre, nous apportons trois modifications à ce modèle.

Premièrement, le plan de glissement pourra être incliné au lieu d'être considéré normal à la surface ; cette inclinaison peut être prise en compte en ajustant la valeur du paramètre m que les auteurs avaient introduit dans leur équation (II.5).

Deuxièmement, Beltz et Freund ne se sont intéressés qu'à la formation de dislocations parfaites. Dans le cas de dislocations partielles, il faut donc tenir compte de l'énergie du défaut d'empilement, d'autant que nous avons vu (Chap. II) qu'il s'agit d'un paramètre prépondérant. Si cette énergie par unité de surface est γ_i , alors un défaut d'empilement de surface S contribuera avec une énergie $\gamma_i S$.

Troisièmement, les simulations en dynamique moléculaire ont montré (Chap. III) que les dislocations formées sont elliptiques. Nous généralisons donc les formules du modèle

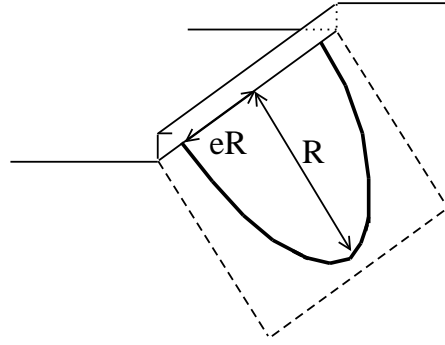


FIG. IV.3 – Demi-boucle de dislocation elliptique se formant depuis une marche de surface.

élastique pour prendre ce facteur de forme en compte, en introduisant un facteur d'ellipticité e entre les deux axes principaux de la boucle¹ (Fig. IV.3). L'énergie relaxée par la dislocation devient alors :

$$E_{\epsilon} = \frac{-\mu b(1+\nu)}{(1-\nu)} e\pi R^2 \cos\theta_1 \cos\theta_2 \epsilon \quad (\text{IV.1})$$

Compte tenu de ces termes, la variation d'énergie due à la formation d'une demi-boucle de dislocation dans le système s'exprimera comme :

$$\begin{aligned} E = & \frac{\mu b^2(2-\nu)}{8(1-\nu)} R \left[\ln\left(\frac{8m\alpha R}{b}\right) - 2 \right] \\ & - \frac{\mu b(1+\nu)}{(1-\nu)} e\pi R^2 \cos\theta_1 \cos\theta_2 \epsilon \\ & - \frac{4}{3} eR\sigma_S + \frac{1}{2} \gamma_i \pi e R^2 \end{aligned} \quad (\text{IV.2})$$

La connaissance de la variation de l'énergie du système en fonction du rayon de la dislocation permet de déterminer les grandeurs pertinentes liées à la nucléation, en particulier le rayon critique et l'énergie d'activation, en fonction de la déformation. Le rayon critique s'obtient en annulant la dérivée de cette énergie par rapport au rayon de la demi-boucle,

¹ $e = 1$ revient à considérer une dislocation circulaire.

IV.1 Détermination du rayon critique

μ (GPa)	ν	σ_S (J.m ⁻¹)	γ_i (J.m ⁻²)	b (Å)	θ_1 (°)	θ_2 (°)
26	0,35	$5,133 \times 10^{-11}$	0,155	1,641	35,26	54,73

TAB. IV.1 – Valeurs employées dans le modèle élastique pour le système étudié ici. Les angles correspondent à ceux de la Fig. II.5.

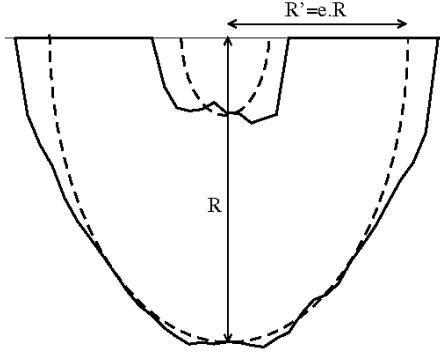


FIG. IV.4 – Évolution de la forme d'une dislocation lorsqu'elle se propage en dynamique moléculaire (traits pleins), et telle que considérée dans le modèle élastique (tirets), pour deux configurations de rayons différents.

ce qui donne l'équation auto-cohérente :

$$R_c = \frac{1}{16\pi e(1+\nu) \cos\theta_1 \cos\theta_2 \epsilon} \times \left\{ b(2-\nu) \left[\ln\left(\frac{8m\alpha R_c}{b}\right) - 1 \right] + \frac{8e(1-\nu)}{\mu b} \left(\gamma_i \pi R_c - \frac{4}{3} \sigma_S \right) \right\} \quad (\text{IV.3})$$

Les paramètres employés dans ce modèle sont ceux de l'aluminium, reportés dans le Tab. IV.1. L'énergie du défaut d'empilement γ_i , auquel le modèle est particulièrement sensible, a été calculé avec le potentiel EAM [Brochard et al. 1998], et est en bon accord avec les données expérimentales comme cela a déjà été souligné dans le Chap. II. L'énergie linéique σ_S de la marche monoatomique a également été déterminée par simulations atomistiques avec le même potentiel [Brochard 1998].

Dans ce modèle élastique, restent des facteurs à déterminer : le facteur géométrique m ;

Chapitre IV. Détermination des paramètres d'activation

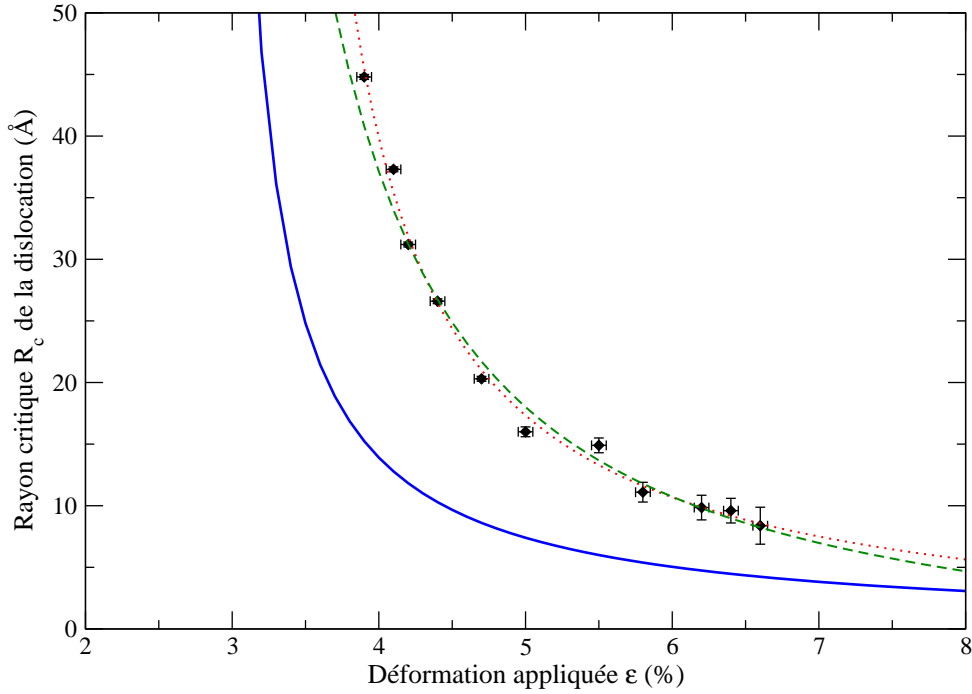


FIG. IV.5 – Évolution de la taille critique d’une dislocation en fonction de la déformation, obtenue par simulation (losanges) ; par simple ajustement par une fonction dépendant inversement de ϵ (pointillés) ; et à partir du modèle élastique ajusté (Eq. IV.3) (tirets verts). Le trait plein en bleu correspond à une dislocation rectiligne infinie (Eq. II.4).

le paramètre de cœur α ; et le facteur d’ellipticité e . Puisque nous avons obtenu l’évolution du rayon critique avec la déformation par simulations atomistiques (section précédente), nous utiliserons ce résultat pour ajuster l’Eq. IV.3.

Nous utilisons ici $\alpha = 2$, valeur typiquement utilisée pour des métaux [Hirth et Lothe 1982]. L’ajustement des deux autres facteurs donne alors $m = 0,47$ et $e = 0,82$, ce qui est cohérent avec les considérations qui avaient été faites. En particulier, le facteur d’ellipticité obtenu donne à la demi-boucle élastique une forme proche de celle obtenue dans les simulations atomistiques (Fig. IV.4).

L’évolution du rayon critique calculée par ce modèle élastique ajusté est reportée sur la Fig. IV.5 (tirets verts) ; le modèle permet un bon ajustement à l’évolution obtenue par simulations, à l’exception des très petits et très grands rayons.

IV.2 Détermination de l'énergie d'activation

Ces déviations peuvent s'expliquer, d'abord, par le ratio elliptique e qui est pris constant dans le modèle élastique. Au contraire, les simulations montrent que ce paramètre évolue, la dislocation devenant de plus en plus elliptique à mesure de sa propagation (Fig. IV.4). Un modèle utilisant un e constant ne peut donc pas reproduire la forme de la dislocation pour n'importe quel rayon. De plus, les dislocations obtenues en dynamique moléculaire ne sont pas des demi-ellipses parfaites. Ainsi, le modèle élastique tend à sous-estimer la surface couverte par le défaut d'empilement qui, comme discuté dans le Chap. I, a une contribution non négligeable à l'énergie. Ceci expliquerait la sous-estimation du rayon critique. D'autre part, la forme de la dislocation peut également dépendre de la déformation appliquée ϵ ; le paramètre e dépendrait à la fois du rayon de la dislocation et de la déformation. Enfin, le cœur de la dislocation devient plus large (donc α devient plus petit) lorsque la dislocation est proche d'une surface. De telles relations auto-cohérentes entre les différents paramètres complexifient énormément le problème, elles ont donc été ignorées ici. Une autre source possible d'erreur est l'attraction de la dislocation lorsqu'elle approche la surface inférieure du système dans les simulations, qui ne peut pas être négligée pour les grands rayons, et qui n'est pas prise en compte dans le modèle élastique.

IV.2 Détermination de l'énergie d'activation

IV.2.1 Utilisation du modèle élastique ajusté

Il apparaît naturel d'utiliser désormais le modèle élastique ajusté pour calculer également la variation de l'énergie du système en fonction de la taille de la dislocation (Eq. IV.2), et en déduire l'énergie d'activation. Cette évolution pour une déformation $\epsilon = 5\%$ est reportée sur la Fig. IV.6. La forme de la barrière d'énergie peut ainsi être déterminée pour n'importe quelle contrainte.

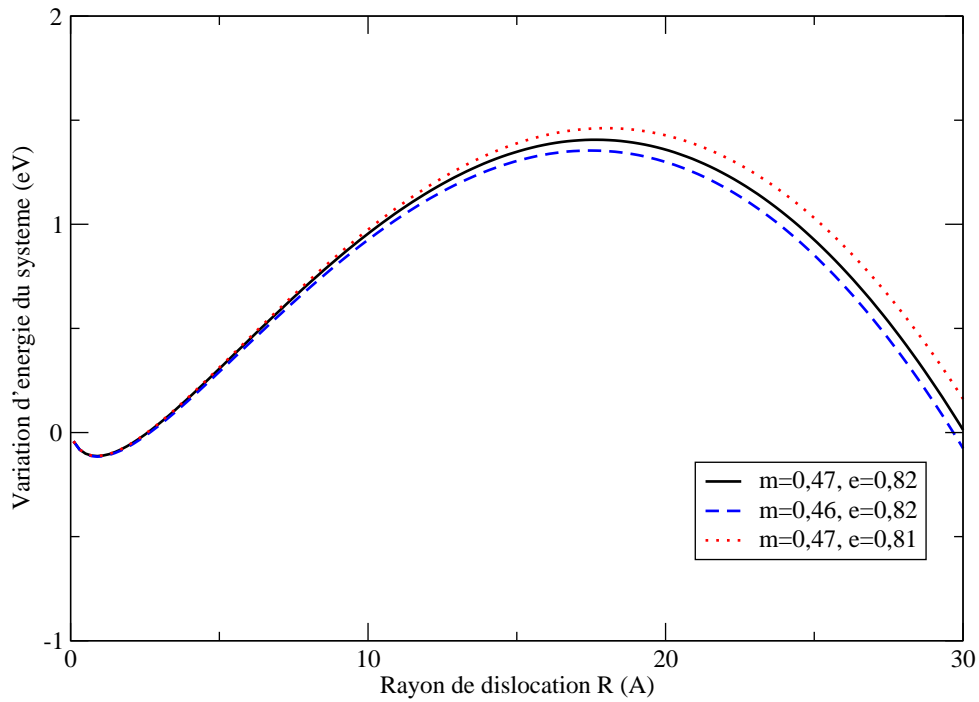


FIG. IV.6 – Variation de l'énergie totale du système en fonction de la taille de la demi-boucle de dislocation, fournie par le modèle élastique, pour une déformation $\epsilon = 5\%$. Chaque courbe correspond à des valeurs de m et e différentes de 0,01. Le rayon critique varie d'environ 0.5 \AA ($\sim 2\%$ d'erreur relative) et est donc assez peu sensible à une faible variation de m et e . L'énergie d'activation y est plus sensible, puisqu'elle varie de plus de $0,1 \text{ eV}$ soit 10% d'erreur relative.

IV.2 Détermination de l'énergie d'activation

Malheureusement, l'énergie d'activation qui en est déduite est plus sensible que le rayon critique aux valeurs des paramètres ajustables (Fig. IV.6). Il se révèle donc indispensable d'utiliser d'autres méthodes pour déterminer plus précisément cette énergie d'activation. Dans ce travail de thèse, nous avons employé trois méthodes : celle du graphe d'Arrhenius, une méthode de relaxation contrainte, et enfin la méthode NEB.

IV.2.2 Méthode d'Arrhenius

Puisque la dynamique moléculaire permet de décrire l'évolution de la thermodynamique du système, la méthode d'Arrhenius semble un bon moyen pour déterminer l'énergie d'activation. C'est d'ailleurs cette méthode que Vegge *et al.* ont employée avec succès pour étudier le glissement dévié de dislocations vis dans le cuivre [Vegge *et al.* 2000]. On reprend ici l'Eq. I.1 donnant la fréquence de franchissement, en regroupant les termes indépendants de la température dans un préfacteur A :

$$t^{-1} = A. \exp\left(\frac{-E_a}{kT}\right) \quad (\text{IV.4})$$

Il est donc possible, en principe, d'obtenir l'énergie d'activation E_a pour une déformation donnée, en effectuant des simulations à différentes températures et en déterminant à chaque fois la fréquence de nucléation.

Dans notre cas, de nombreuses simulations ont été effectuées pour des températures situées entre 100 et 300 K, sur un système déformé de 6,5%. Le système est d'abord thermalisé à $\epsilon = 6,4\%$. Il est ensuite porté à une déformation de 6,5%, moment choisi comme origine du temps. Enfin, le temps mis par le système pour nucléer une dislocation est déterminé. Cinq simulations au moins ont été réalisées à chaque température afin d'obtenir une estimation de la dispersion statistique.

Chapitre IV. Détermination des paramètres d'activation

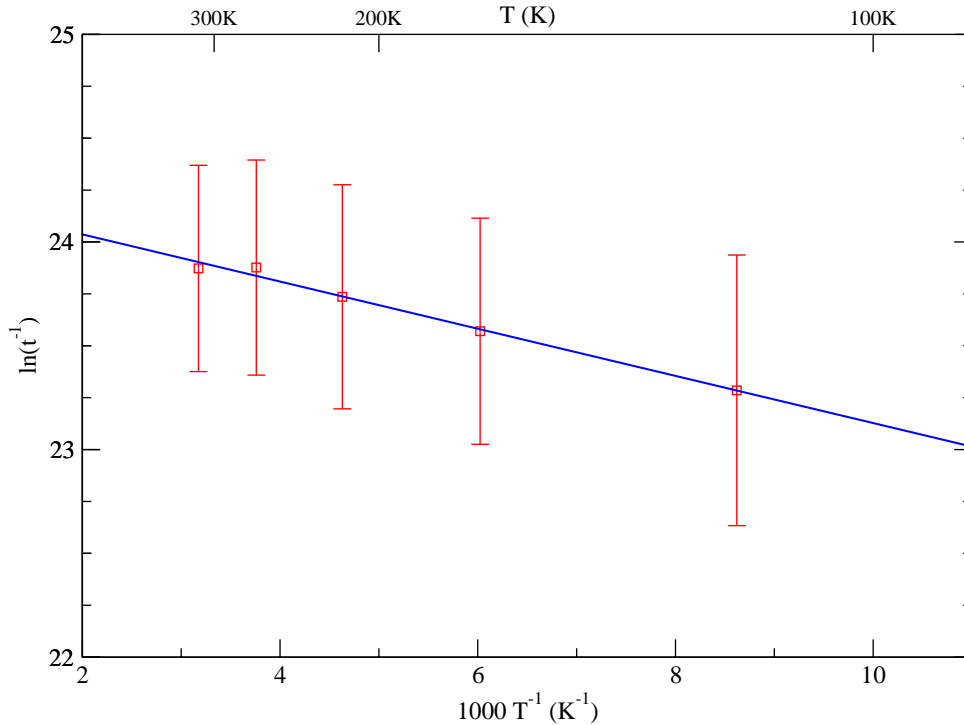


FIG. IV.7 – Graphe d'Arrhenius obtenu par des simulations sur un échantillon déformé de 6,5%. Les barres d'erreur correspondent à l'écart-type sur le temps de nucléation.

Les temps de nucléation t ont été reportés sur un graphe d'Arrhenius (Fig. IV.7). L'énergie d'activation déterminée par cette méthode est $E_a \approx 10$ meV. Pour chaque température, l'écart-type sur le temps de nucléation est représenté sous forme de barres d'erreurs, dont la largeur diminue lorsque la température augmente. Ceci est cohérent puisque l'événement est thermiquement activé : plus la température est élevée, plus l'incertitude sur le temps t est petite. Cette déviation amène à une incertitude sur l'énergie d'activation de 10 meV, soit du même ordre de grandeur que l'énergie d'activation elle-même.

Ainsi, l'efficacité de cette méthode pour notre problème apparaît discutable. Puisque c'est une méthode stochastique, un grand nombre de simulations doit être effectué, ce qui la rend très coûteuse en temps de calcul. De plus, pour la déformation discutée ici, 6,5%, le temps de nucléation varie grandement, ce qui conduit à une grande incertitude sur l'énergie d'activation. Enfin, t peut atteindre ici 200 ps, soit 50 000 pas de dynamique,

IV.2 Détermination de l'énergie d'activation

et opérer ce genre de simulations à des déformations moindres requerrait des temps de simulation encore plus grands. L'association de la méthode du graphe d'Arrhenius et de la dynamique moléculaire n'est donc pas bien adaptée pour étudier de façon systématique l'énergie d'activation associée à l'événement de nucléation ; d'autres méthodes doivent être employées.

IV.2.3 Relaxation contrainte

L'énergie d'activation est, par définition, la différence entre l'énergie du système contenant une dislocation au point col, et l'énergie du même système déformé et sans défaut. Or, le calcul du rayon critique effectué précédemment dans ce Chapitre donne accès à la configuration atomique au proche voisinage du point col ; il suffit donc en principe d'en calculer l'énergie. Ceci impose deux précautions : tout d'abord, cette configuration étant issue de la dynamique moléculaire, il est nécessaire au préalable d'opérer une relaxation de ce système pour se débarrasser du bruit introduit par la température ; deuxièmement, cette configuration au point col étant par définition hors-équilibre, il faut s'assurer que la dislocation ne se propage pas du fait de cette relaxation.

Afin de conserver la forme et la taille de la dislocation, nous avons utilisé une méthode de relaxation contrainte similaire à celle employée par Aslanides et Pontikis pour étudier l'interaction entre une dislocation coin et une surface libre [Aslanides et Pontikis 1998a]. Le système est d'abord relaxé en maintenant fixes les atomes situés dans le cœur de la dislocation ; ensuite, une relaxation est opérée sur le cœur de la dislocation en maintenant tous les autres atomes fixes. Ces deux types de relaxation sont alternés, jusqu'à obtenir une convergence de quelques meV sur l'énergie du système. Au terme de cette simulation, il est aisé de vérifier que la dislocation a bien toujours le même rayon, autrement dit que la configuration est restée au proche voisinage du point col.

Chapitre IV. Détermination des paramètres d'activation

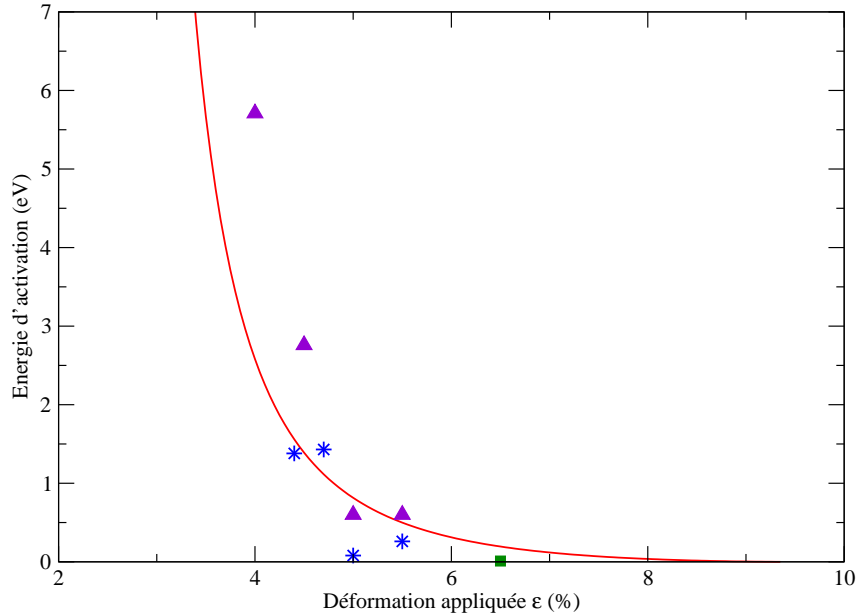


FIG. IV.8 – Évolution de l'énergie d'activation en fonction de la déformation appliquée, obtenue par les différentes méthodes présentées dans ce Chapitre : Arrhenius (carré), modèle élastique ajusté (ligne continue), relaxation contrainte (étoiles), et NEB (triangles).

Nous avons appliqué cette méthode aux configurations issues du calcul du rayon critique. Les énergies d'activation qui ont pu en être déduites sont reportées sur la Fig. IV.8. Les valeurs obtenues sont de l'ordre de grandeur de celles déterminées par ajustement du modèle élastique ; cependant elles ne décroissent pas de façon monotone, et ne permettent pas d'établir de courbe d'évolution.

Cette méthode de relaxation contrainte pose deux difficultés majeures, qui peuvent expliquer son inadéquation à reproduire l'évolution correcte de l'énergie d'activation. Premièrement, elle se base sur la connaissance de la configuration atomique au point col, dont la détermination peut s'avérer délicate, surtout si la dislocation est très proche de la surface (très faibles rayons, demi-boucle très déformée). Si la configuration relaxée n'est pas exactement celle du point col, ou si la dislocation se déplace lors de la relaxation, alors l'énergie obtenue ne sera pas celle du point col. Deuxièmement, la définition des atomes de coeur est un point également délicat, et leur sélection est une opération qui peut devenir difficile lorsque la taille de la demi-boucle de dislocation devient très grande.

IV.3 La méthode NEB : détermination du chemin d'énergie minimum

C'est donc une méthode plutôt adaptée pour étudier des rayons de demi-boucle moyens, de l'ordre de quelques dizaines d'angströms.

IV.3 La méthode NEB : détermination du chemin d'énergie minimum

La méthode Nudged Elastic Band (NEB), décrite au Chap. II, permet la détermination complète du chemin d'énergie minimum (CEM). Les exemples cités au Chap. I suggèrent que cette méthode pourrait s'appliquer de façon efficace au problème de la nucléation. Cependant, la difficulté réside ici dans le grand nombre d'atomes de notre système, qui impose une topologie complexe dans l'espace des configurations. Ainsi, l'utilisation d'une simple interpolation pour construire les images sera mal adaptée, car elle donnera des configurations trop éloignées du chemin d'énergie minimum, rendant la convergence du calcul NEB fastidieuse.

Le type de problème investigué ici réclame de commencer le calcul NEB avec des images déjà proches du CEM. Pour cela, à une déformation donnée, nous utilisons trois configurations issues des simulations atomistiques. L'image de départ est construite en relaxant un système sans dislocation. L'image finale quant à elle, est un système issu de la dynamique moléculaire, contenant une demi-boucle de dislocation arbitrairement grande, et relaxé de manière à ce que son énergie soit inférieure de plusieurs eV à l'image de départ. Par ailleurs, la configuration obtenue précédemment par la méthode de relaxation contrainte, donc proche du CEM, est utilisée comme image intermédiaire. Ensuite, entre ces trois images initiales, des images supplémentaires sont introduites par interpolation, afin d'obtenir un nombre d'images significatif (une dizaine environ) pour le calcul NEB. Un très grand avantage du NEB est la possibilité de réutiliser les mêmes images à une déformation différente, ce qui permet de repartir de configurations déjà très proches du

Chapitre IV. Détermination des paramètres d'activation

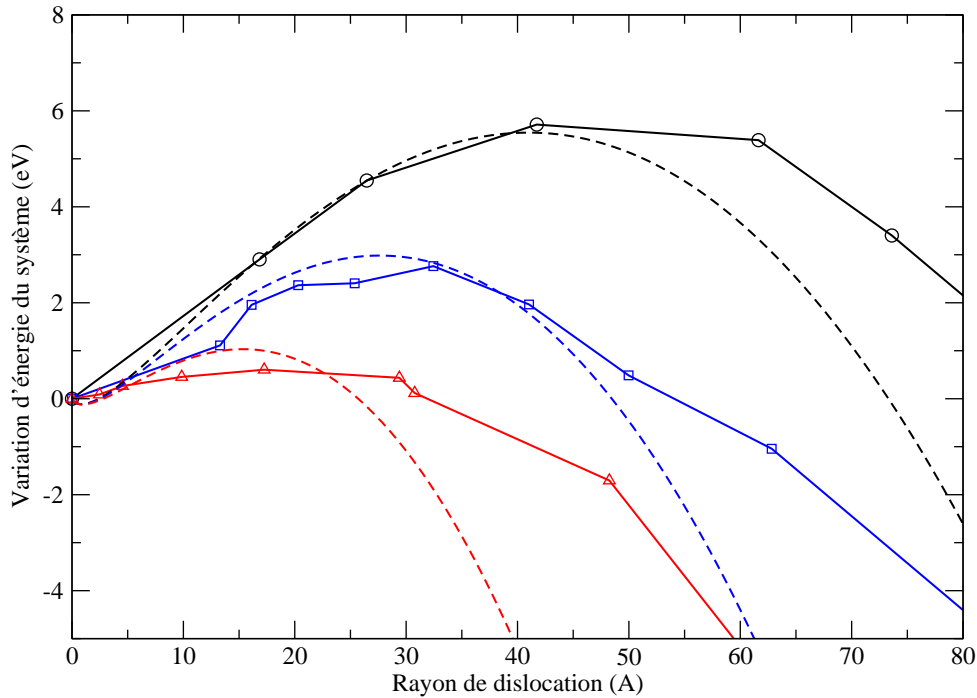


FIG. IV.9 – Exemples de chemins d'énergie minimum obtenus par la méthode NEB, pour une déformation de 4% (cercles), 4,5% (carrés) et 5% (triangles). Pour chaque déformation, la courbe tirée du modèle élastique ajusté a été superposée (tirets).

CEM.

Afin de pouvoir comparer les CEM entre eux, l'énergie du système a été tracée en fonction du rayon de la dislocation². La Fig. IV.9 montre des exemples de CEM obtenus en NEB (courbes pleines), ainsi que les courbes pour les mêmes déformations issues du modèle élastique ajusté (tirets). Ces dernières correspondent assez bien à l'énergie d'activation ainsi qu'au rayon critique obtenus en NEB; en revanche le modèle élastique ne reproduit pas correctement l'ensemble du CEM, en particulier pour les rayons supérieurs au rayon critique, pour lesquels l'énergie relaxée par la propagation de la dislocation est surestimée.

²En effet la méthode NEB travaille avec les distances entre les images dans l'espace des configurations, qui sont ensuite normalisées (voir Annexe B), ce qui ne permet pas de comparer directement deux calculs NEB différents.

IV.3 La méthode NEB : détermination du chemin d'énergie minimum

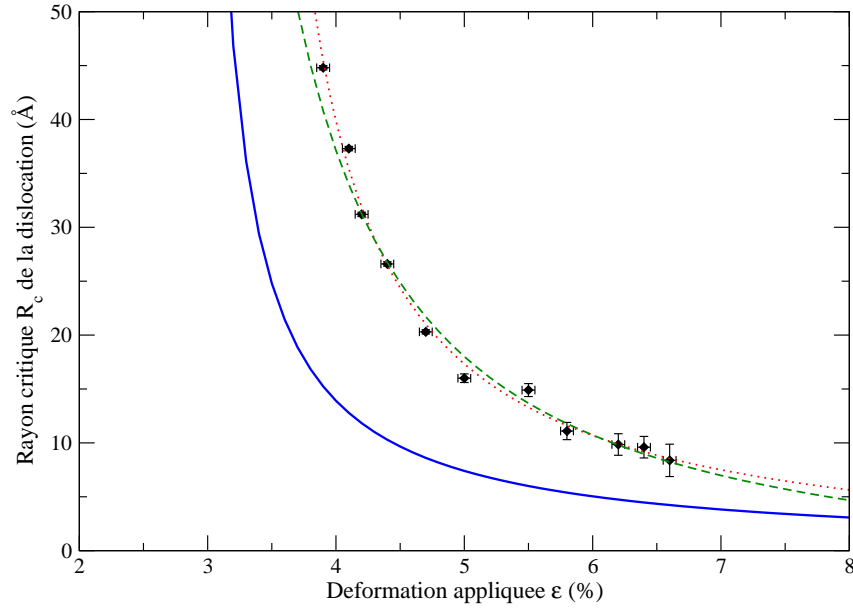


FIG. IV.10 – Évolution de la taille critique d'une dislocation en fonction de la déformation, obtenue en NEB (triangles), par comparaison aux résultats obtenus auparavant (voir Fig. IV.2).

De tels calculs NEB permettent d'extraire avec précision les paramètres associés à la barrière d'énergie. Tout d'abord, la variation de l'énergie d'activation en fonction de la déformation est reportée (triangles) sur la Fig. IV.8, superposée aux résultats obtenus précédemment. La courbe est relativement proche des résultats obtenus précédemment ; elle est cependant légèrement décalée par rapport à la courbe élastique (ligne continue). Ces déviations peuvent s'expliquer de la façon suivante : le calcul NEB fait relaxer les dislocations vers une forme de demi-boucle qui ne correspond pas exactement à la forme obtenue en dynamique moléculaire ; puisque l'énergie de défaut d'empilement intrinsèque γ_i est élevée, une petite déviation dans la surface du défaut d'empilement peut entraîner une grande déviation dans l'énergie d'activation calculée. C'est pourquoi la courbe issue du modèle élastique, ajusté sur des résultats de dynamique moléculaire, ne correspond pas tout à fait aux valeurs obtenues en NEB.

L'évolution du rayon critique obtenu en NEB (triangles sur la Fig. IV.10) correspond également assez bien au modèle élastique, ou à la méthode d'essai-erreur utilisant la dy-

Chapitre IV. Détermination des paramètres d'activation

namique moléculaire. Cependant là encore, le NEB peut apporter une meilleure précision sur le rayon de la dislocation, et est bien moins dispendieux en temps de calcul, pourvu que l'on dispose d'images de départ suffisamment proches du CEM.

La méthode NEB peut en principe être utilisée pour n'importe quelle contrainte, mais nous nous sommes heurtés ici à deux difficultés. Premièrement, lorsque la demi-boucle est trop petite ($\leq 10 \text{ \AA}$), il devient difficile d'en déterminer le rayon, il devient même difficile de savoir si les déplacements calculés font référence à une dislocation. De plus il devient difficile de converger le calcul NEB à haute déformation, l'énergie d'activation devenant alors bien inférieure à 1 eV. Deuxièmement, notre système présentant une surface libre, seules des dimensions de demi-boucles inférieures à la moitié de l'épaisseur de l'échantillon ont été considérées. Nous n'avons donc pas investigué des déformations inférieures à 4%, le rayon critique augmentant de manière dramatique et la dislocation devenant trop proche de la surface inférieure. En principe il est néanmoins possible, en opérant des tests de traction sur des systèmes plus grands, d'utiliser la méthode NEB pour investiguer ces petites déformations.

IV.4 Discussion

IV.4.1 Évolution des paramètres d'activation

La détermination de l'énergie d'activation est une problématique souvent traitée par simulations ; l'expérience en revanche, s'intéresse plus souvent à une grandeur mesurable comme le volume d'activation, défini comme la dérivée de l'énergie d'activation relativement à la contrainte appliquée :

$$\Omega(\sigma) = -\partial E_a / \partial \sigma \quad (\text{IV.5})$$

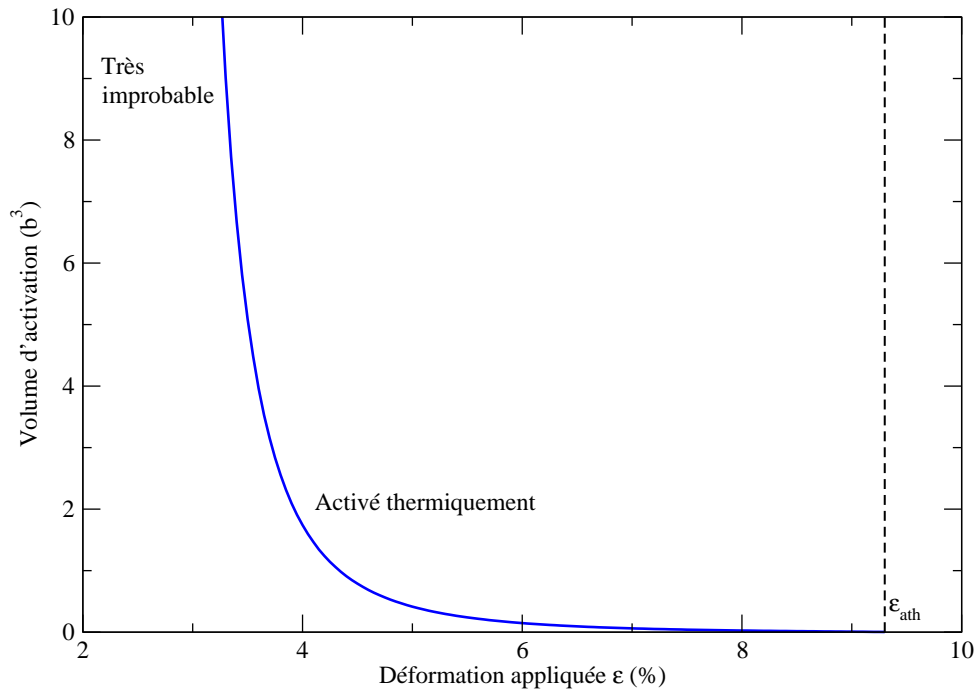


FIG. IV.11 – Évolution du volume d’activation en fonction de la déformation appliquée. La limite athermique ϵ_{ath} est représentée.

D’après l’énergie d’activation obtenue dans ce Chapitre par le modèle élastique, nous avons tracé la variation du volume d’activation en fonction de la déformation appliquée sur la Fig. IV.11. Comme c’est le cas pour le rayon critique et l’énergie d’activation, le volume d’activation varie très brutalement, passant de $100b^3$ pour une déformation de 2,8%, à environ $2b^3$ à 4%.

Cette variation brutale des paramètres d’activation est à mettre en relation avec la déformation critique à laquelle se produit la nucléation. En effet nous avons vu dans le Chap. III que cette déformation critique varie peu lorsque la température augmente. L’énergie d’activation variant très rapidement ($\sim 1/\epsilon$), le temps de nucléation augmente également de façon brutale lorsque la contrainte diminue. La nucléation restera donc peu probable tant que la contrainte ne sera pas suffisante, car la barrière d’énergie sera alors trop importante pour pouvoir être franchie thermiquement, et ce quelle que soit la température. L’aluminium semble plutôt correspondre au matériau modèle noté (2) dans le

Chapitre IV. Détermination des paramètres d'activation

Chap. I (Fig. I.5) : il existe une contrainte pour laquelle la nucléation passe de très improbable à très probable.

Pour comparaison, Zhu *et al.* ont déjà employé la méthode NEB pour caractériser la formation de demi-boucles depuis un front de fissure dans le cuivre [Zhu *et al.* 2004], ou depuis des défauts de surface dans un nanopilier de cuivre [Zhu *et al.* 2008] ; les résultats obtenus sont similaires à ceux obtenus ici. Depuis un front de fissure, l'énergie d'activation lorsque le matériau subit 75% de la contrainte athermique a été estimée à 1,1 eV. Depuis un coin dans un nanopilier, elle est d'environ 0,1 eV pour une contrainte équivalente. Ces valeurs pour le cuivre sont sensiblement plus importantes et plus faibles, respectivement, que celles évaluées ici pour l'aluminium depuis le modèle élastique. Dans le cas de la nucléation depuis un coin dans un nanopilier de cuivre sous compression, la variation en fonction de la contrainte est également plus douce que celle obtenue ici pour l'aluminium (Fig. IV.12).

La comparaison de ces résultats suggère que la nature des défauts préexistants joue un rôle crucial sur l'événement de nucléation, allant dans le sens des observations faites dans le Chap. III. Lors d'essais mécaniques expérimentaux, des défauts variés peuvent être présents dans les échantillons, tels des marches de hauteurs variables, des fissures, des joints de grains, des dislocations, des défauts ponctuels ou des précipités... Chacun de ces défauts peut modifier de façon plus ou moins importante les paramètres de la barrière d'énergie, et donc la contrainte de nucléation.

IV.4.2 Existence d'un minimum d'énergie local près de la surface

Le modèle élastique employé révèle un minimum d'énergie local lorsque la dislocation est proche de la surface (Fig. IV.6). Nous n'avons jamais observé un tel minimum dans

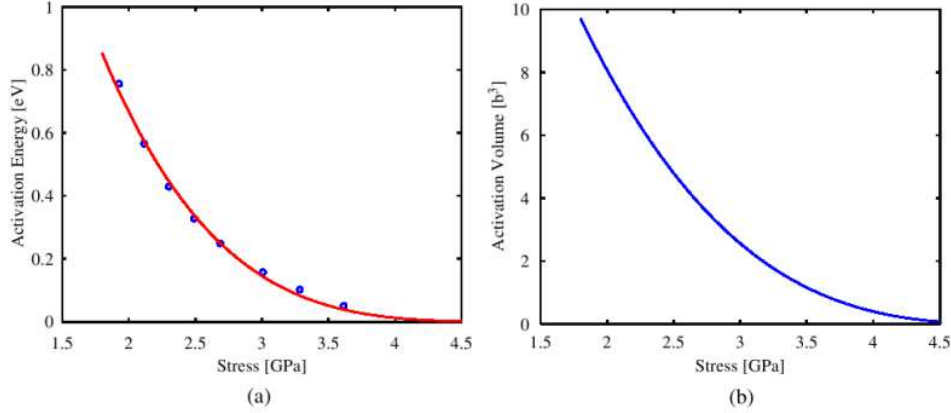


FIG. IV.12 – Évolution de l'énergie (a) et du volume (b) d'activation pour la formation d'une demi-boucle de dislocation, en fonction de la contrainte de compression dans des nanopiliers de cuivre, obtenus par Zhu *et al.* [Zhu *et al.* 2008].

les CEM obtenus en NEB (Fig. IV.9), même après avoir augmenté le nombre d'images près de $R = 0$.

Cette différence entre les deux méthodes pourrait s'expliquer par le fait qu'elles ne considèrent pas tout à fait le même système comme point de départ, à $R = 0$. Dans le modèle élastique, la dislocation existe toujours dans le matériau, même lorsque $R \rightarrow 0$. Le minimum d'énergie dans ce modèle n'est pas pour $R = 0$, mais correspond à une dislocation près de la surface. On notera qu'à de telles distances, la théorie de l'élasticité atteint ses limites de validité.

Dans les simulations atomistiques, et *a fortiori* dans la méthode NEB, le point de départ ($R = 0$) correspond au système sans dislocation, mais *relaxé*. Cela implique que la marche s'est légèrement affaissée, et qu'un précisaillement s'est mis en place dans un plan passant par la marche, comme nous l'avons montré dans le Chap. III. Ce système relaxé est donc déjà dans son état d'énergie minimum, et il n'existe pas d'autre minimum local près de la surface.

IV.5 Conclusions

Dans ce Chapitre nous avons employé plusieurs méthodes pour déterminer les paramètres d'activation associés à la nucléation d'une demi-boucle de dislocation partielle depuis une marche monoatomique de surface. Les résultats obtenus grâce aux différentes méthodes présentées sont cohérents. La méthode d'Arrhenius permet d'obtenir une énergie d'activation avec une bonne précision (10 meV); cependant dans notre cas, l'énergie d'activation, et donc les temps de simulation requis, augmentent grandement, ce qui rend une telle méthode difficilement utilisable de façon systématique.

En revanche, la dynamique moléculaire s'avère un moyen relativement précis et rapide pour déterminer le rayon critique à différentes contraintes. La méthode d'essai-erreur présentée ici ne nécessite en effet qu'un petit nombre de simulations à chaque contrainte. De par sa simplicité de mise en œuvre, cette méthode peut facilement être généralisée à d'autres matériaux, et à d'autres configurations.

Le développement d'un modèle élastique, et son ajustement sur des résultats en dynamique moléculaire, ont permis d'obtenir des équations analytiques décrivant l'évolution des paramètres d'activation associés à la barrière en fonction de la déformation. Si un tel modèle se révèle utile, il dépend de variables inconnues *a priori* qui doivent être ajustées à l'aide d'autres méthodes, et l'ajustement peut se révéler délicat à opérer.

La méthode NEB a déjà été employée à de nombreuses reprises pour étudier des barrières d'énergies associées à des mécanismes impliquant des dislocations (Chap. I). Cependant, si cette méthode semble sur le principe la mieux adaptée, il peut s'avérer difficile de la mettre en œuvre seule. L'obtention de configurations "réalistes", c'est-à-dire comprenant des demi-boucles de dislocation avec une certaine forme elliptique, nécessite de faire appel à la dynamique moléculaire; et pour faciliter la convergence du calcul NEB, une méthode de relaxation contrainte peut permettre de minimiser l'énergie de certaines

configurations tout en préservant la forme de la demi-boucle.

Les paramètres d'activation calculés ici ont révélé un comportement très brutal vis-à-vis de la déformation. Entre 3 et 5%, le rayon critique et l'énergie d'activation diminuent très rapidement ; dans ce faible intervalle, de très improbable l'évènement de nucléation devient très probable. Du fait de cette forte variation, lorsque la déformation appliquée diminue les temps de nucléation augmentent également très vite, et deviennent trop longs pour pouvoir être simulés en dynamique moléculaire ; donc, seules les fortes déformations ($\epsilon > 5 \sim 6\%$) permettent d'observer la nucléation en dynamique moléculaire. Ceci explique également que la contrainte de nucléation dépende peu de la température, comme nous l'avons montré au Chap. III.

Chapitre IV. Détermination des paramètres d'activation

Chapitre V

Évènements subséquents à la nucléation de la première dislocation

Dans les chapitres précédents nous nous sommes focalisés sur l'étude de la nucléation de la première dislocation, tout premier stade de la déformation plastique du matériau. Suite à sa nucléation, cette première dislocation se propage dans le matériau avec une certaine vitesse. Il est donc intéressant d'étudier cette propagation, et d'essayer de corréliser les résultats avec les modèles théoriques, en particulier en ce qui concerne l'extension de la dislocation, ainsi que sa vitesse, et la dépendance en température de cette dernière.

Les simulations en traction ont montré que la première dislocation est une partielle de Shockley. Ensuite, en poursuivant les simulations en dynamique moléculaire, nous avons observé d'autres évènements plastiques successifs, tels que la formation d'une macule ou de la partielle de queue. Nous nous sommes donc intéressés aux facteurs conditionnant l'activation de ces mécanismes plastiques ultérieurs.

Chapitre V. Évènements subséquents à la nucléation de la première dislocation

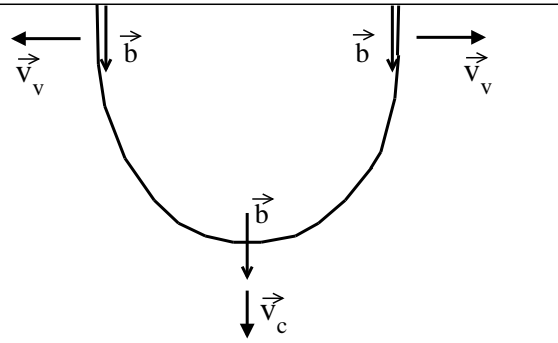


FIG. V.1 – Les demi-boucles de dislocation formées ont un segment (\vec{b} orthogonal à la ligne de dislocation) se déplaçant à une vitesse v_c , et des segments vis (\vec{b} parallèle à la ligne) se déplaçant à une vitesse v_v . Les autres parties de la ligne de dislocation sont mixtes.

Type d'onde	Transverses		Longitudinale
Direction coin	$c_{tc} = 3.2$	$c_{tc2} = 3.7$	$c_{lc} = 6.8$
Direction vis	$c_{tv} = 3.3$	$c_{tv2} = 3.5$	$c_{lv} = 6.3$

TAB. V.1 – Célérités ($\times 10^3 \text{ m.s}^{-1}$) des ondes acoustiques dans l'aluminium, en fonction du mode d'oscillation (transverse ou longitudinale) et de la direction de propagation (coin= $\langle 110 \rangle$; vis= $\langle 211 \rangle$).

V.1 Cinétique de la première dislocation

La dynamique moléculaire donne accès à l'évolution du système, ce qui permet dans notre cas de déterminer les vitesses des dislocations. Nous avons employé notre programme (Annexe C) pour obtenir de façon systématique les vitesses des segments coin et vis des demi-boucles de dislocation (Fig. V.1) alors qu'elles se propagent dans des échantillons déformés de 6,5%. La théorie élastique des dislocations prédit que la vitesse d'une dislocation ne peut dépasser la célérité du son dans le matériau; à une telle vitesse il existe une singularité dans l'énergie élastique d'une dislocation, qu'elle soit vis ou coin [Hirth et Lothe 1982]. Selon la direction de propagation et le mode de vibration, une onde acoustique peut avoir différentes célérités (Tab. V.1). Dans ce Chapitre nous comparerons les vitesses des dislocations à la célérité des ondes acoustiques dans les directions correspondantes, en considérant le même système modèle qu'au Chap. IV, c'est-à-dire présentant deux marches monoatomiques de surface et subissant une traction uniaxiale

V.1 Cinétique de la première dislocation

orthogonale à la ligne de marche, suivant $X=[0\bar{1}1]$. Nous discutons des variations de vitesse des dislocations, qui révèlent l'interaction avec les surfaces; puis de la vitesse moyenne, qui montre une certaine sensibilité à la température.

V.1.1 Variation de la vitesse lors du parcours dans le matériau

Pour chaque simulation de dynamique moléculaire, les positions atomiques ont été conservées tous les 50 pas, soit 0,2 ps. Pour une température donnée, nous avons utilisé les positions des segments coin de plusieurs simulations, et les avons ordonnées comme s'il s'agissait des positions successives d'une même dislocation. À partir de ces positions successives, la vitesse instantanée du segment coin à un endroit donné (pour un rayon R donné) est calculée. Puis pour adoucir la courbe, nous utilisons une vitesse moyenne mobile : à un rayon R donné, la vitesse est ainsi moyennée avec les trois vitesses instantanées précédentes et suivantes.

Les vitesses obtenues pour les températures de 100, 200 et 300 K sont reportées sur la Fig. V.2. La dislocation se nucléée avec une vitesse relativement élevée, environ 4 km.s^{-1} , soit supérieure à la célérité d'une onde transverse dans cette direction ($c_{tc} = 3,2 \text{ km.s}^{-1}$). La vitesse de la dislocation se stabilise ensuite entre 2,3 et $3,2 \text{ km.s}^{-1}$, quelle que soit la température. Ces vitesses au centre de l'échantillon sont du même ordre que la vitesse plateau obtenue lors de simulations atomistiques par Olmsted *et al.*, de $2,6 \text{ km.s}^{-1}$ dans l'aluminium massif [Olmsted *et al.* 2005], et sont discutées dans la sous-section suivante.

Lorsque la dislocation approche la surface inférieure de l'échantillon, sa vitesse augmente de façon significative, atteignant jusqu'à 6 km.s^{-1} . Une telle accélération peut s'expliquer par l'attraction que la surface inférieure exerce sur la dislocation. En effet, à l'approche de cette surface la dislocation subit une force image qui l'attire et accélère d'autant plus son mouvement.

Chapitre V. Évènements subséquents à la nucléation de la première dislocation

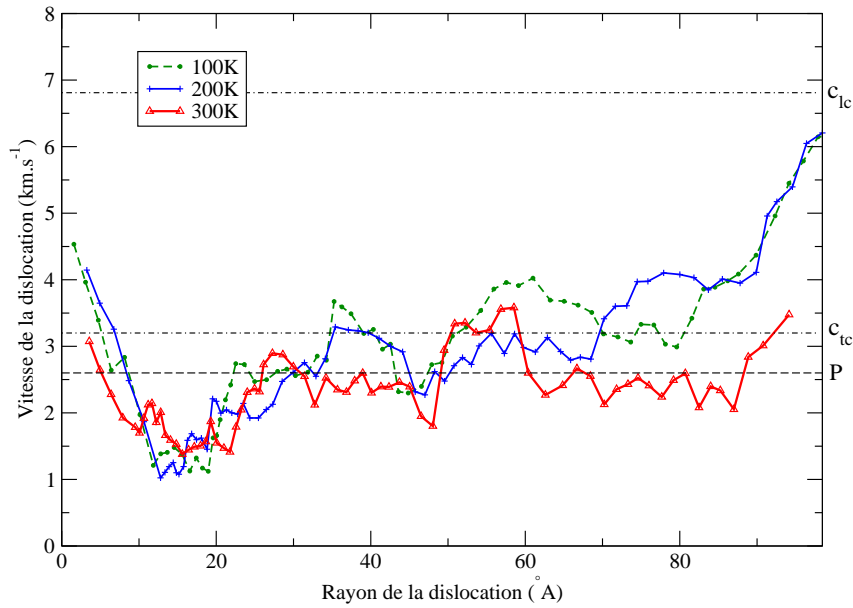


FIG. V.2 – Évolution de la vitesse moyenne mobile du segment coin d’une dislocation se formant puis traversant un échantillon déformé de 6,5%, à 100 K (points), 200 K (croix) et 300 K (triangles). La ligne pointillée indique le plateau de vitesse $P = 2,6 \text{ km.s}^{-1}$ obtenu par Olmsted *et al.*; les lignes en points-tirets indiquent la célérité d’une onde acoustique transverse ($c_{tc} = 3,2 \text{ km.s}^{-1}$) et longitudinale ($c_{lc} = 6,8 \text{ km.s}^{-1}$).

V.1.2 Extension du cœur des dislocations

Nous nous sommes intéressés à l’extension du cœur des dislocations à mesure qu’elles se propagent dans le matériau. Cette extension est ici définie comme la largeur à mi-hauteur de la dérivée des déplacements relatifs dans la direction coin (voir Annexe C). Il ne s’agit donc pas du *rayon de cœur* des dislocations, mais l’on s’attend à ce que les deux soient reliés.

L’extension de dislocations formées lors de simulations en dynamique moléculaire a été calculée pour des températures de 100, 200 et 300 K. La Fig. V.3 représente l’évolution de cette extension en fonction du rayon des dislocations. On observe une légère augmentation lorsque la température augmente : elle passe d’environ 10 Å à 100 K, à

V.1 Cinétique de la première dislocation

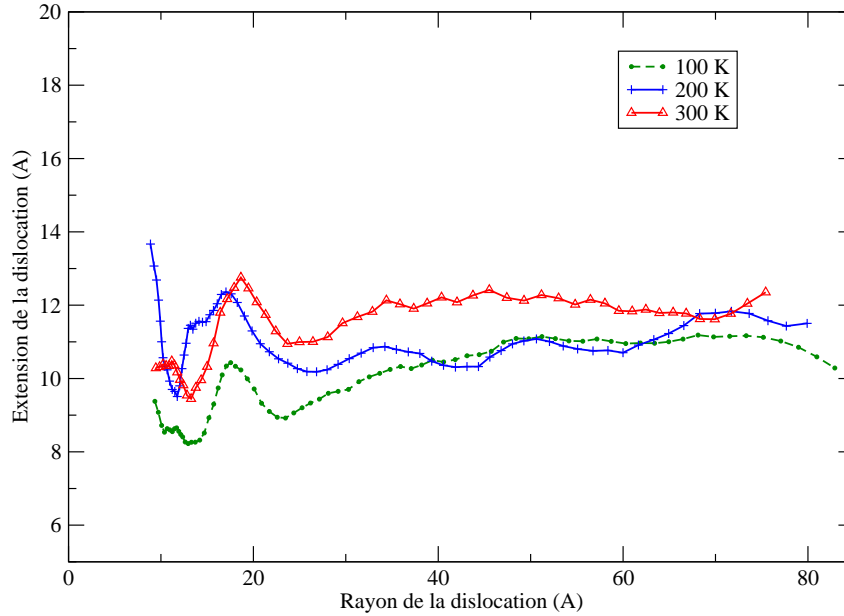


FIG. V.3 – Évolution de l'extension des dislocations en fonction de leur rayon dans un système déformé de 6,5%, pour des températures de 100 K (cercles), 200 K (plus) et 300 K (triangles). Chaque courbe correspond à une moyenne mobile.

12 Å à 300 K. La Fig. V.3 montre également qu'après la nucléation, l'extension de la dislocation connaît un maximum, pour un rayon de dislocation $R \approx 20$ Å. Ce maximum coïncide avec le minimum de vitesse observé sur la Fig. V.2. Par la suite la dislocation accélère, et son extension diminue avant de se stabiliser aux valeurs mentionnées ci-dessus.

Ces résultats semblent indiquer une corrélation entre l'extension de la dislocation et sa vitesse : plus la vitesse de la dislocation est élevée, et plus son cœur aura une petite extension dans la direction de propagation. Une telle relation est en accord avec la théorie élastique des dislocations [Hirth et Lothe 1982]. Elle peut s'expliquer qualitativement de la manière suivante : lorsqu'une dislocation apparaît dans le matériau (ou se propage), son champ élastique s'établit à une vitesse qui est celle du son dans ce matériau. Si la dislocation se déplace elle-même à une vitesse proche de celle du son, alors le champ élastique n'aura pas le temps de se propager, et son extension restera réduite. Si au contraire la dislocation se déplace lentement, alors son champ élastique se stabilisera, et son extension approchera celle d'une dislocation immobile.

V.1.3 Effet de la température sur la vitesse des dislocations

Nous nous sommes intéressés à la vitesse de la dislocation lorsqu'elle est au centre de l'échantillon, c'est-à-dire lorsque son interaction avec les surfaces supérieure et inférieure est minimisée ; cette vitesse se rapproche alors de celle que l'on devrait observer dans le cristal massif.

Pour différentes simulations en dynamique moléculaire effectuées à des températures comprises entre 100 et 300 K, nous avons moyenné les vitesses de segments vis et coin, lorsque le rayon de la dislocation est compris entre 30 et 70 Å. Ces vitesses moyennes sont reportées sur la Fig. V.4. À 100 K, un segment coin se propage à une vitesse $v_c(100 \text{ K}) \approx 3,2 \text{ km.s}^{-1}$, soit très proche des célérités d'une onde acoustique dans cette direction. Cette vitesse diminue lorsque la température augmente, atteignant environ $2,6 \text{ km.s}^{-1}$ à 300 K.

Comme cela pouvait déjà être déduit de la forme elliptique de la dislocation (Chap. III), la vitesse du segment vis est toujours inférieure à celle du segment coin. Même à 100 K, cette vitesse reste bien inférieure à la célérité du son dans cette direction ($c_{tv} = 3,3 \text{ km.s}^{-1}$). Comme pour les segments coin, la vitesse des segments vis diminue lorsque la température augmente.

Ces résultats peuvent être comparés à ceux obtenus par Olmsted *et al.* pour la mobilité de dislocations dans l'aluminium [Olmsted *et al.* 2005]. Ces auteurs ont réalisé des simulations en dynamique moléculaire, qui leur ont permis d'obtenir la variation de la vitesse v des dislocations en fonction de la contrainte appliquée σ , et ce à différentes températures (Fig. V.5). Pour des contraintes inférieures à environ 100 MPa, v augmente linéairement avec la contrainte appliquée ; elle sature ensuite à environ $2,6 \text{ km.s}^{-1}$ pour $200 \text{ MPa} < \sigma <$

V.1 Cinétique de la première dislocation

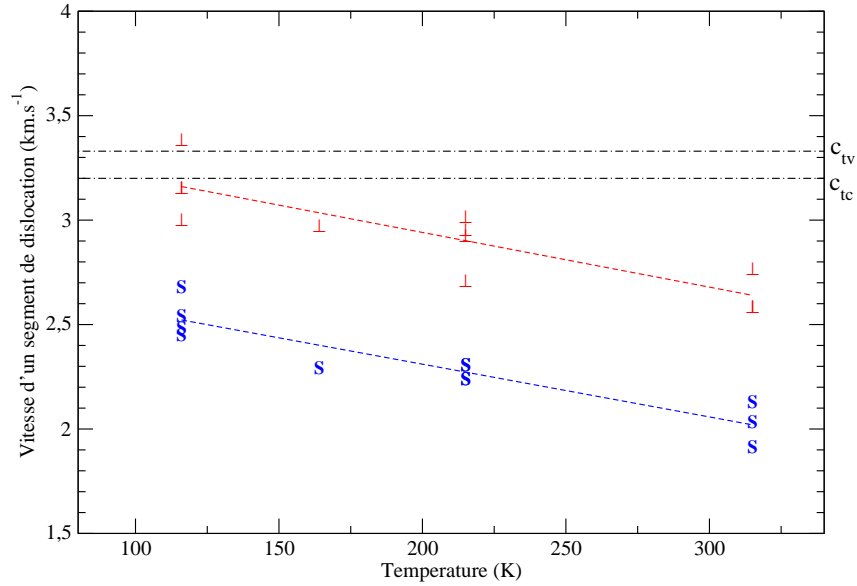


FIG. V.4 – Évolution de la vitesse moyenne des segments vis (S) et coin (\perp) d'une dislocation lorsqu'elle se trouve dans la partie centrale d'un système déformé de 6,5%, en fonction de la température. Pour chaque température plusieurs simulations sont représentées ; les tirets sont des guides pour l'œil. Les lignes en points-tirets indiquent la plus petite vitesse d'une onde acoustique, le long des directions coin (c_{tc}) et vis (c_{tv}).

500 MPa. Pour des contraintes plus grandes, la vitesse augmente de nouveau, et dépasse la célérité c_{tc} d'une onde acoustique transverse ; les dislocations sont alors supersoniques. La Fig. V.5 montre cette évolution pour plusieurs températures allant de 216 à 540 K. On peut observer qu'à une contrainte donnée, lorsque la température augmente la vitesse des dislocations diminue.

Dans notre cas, les simulations sont réalisées sous une déformation de 6,5%, ce qui correspond à une déformation appliquée d'environ 3,8 GPa. Dans le plan de glissement, cela correspond à une contrainte résolue de 1,78 GPa, soit bien supérieure aux contraintes utilisées dans leurs simulations par Olmsted *et al.*. Pourtant, les dislocations formées au cours de nos simulations ne sont pas supersoniques (Fig. V.4), mais gardent des vitesses inférieures à c_{tc} , indiquant que les vitesses des dislocations saturent dans le régime plateau à $2,6 \text{ km.s}^{-1}$ (Fig. V.5). Ceci peut s'expliquer par les différences dans les conditions de simulations. Tandis que Olmsted *et al.* se sont intéressés au mouvement d'une dislocation

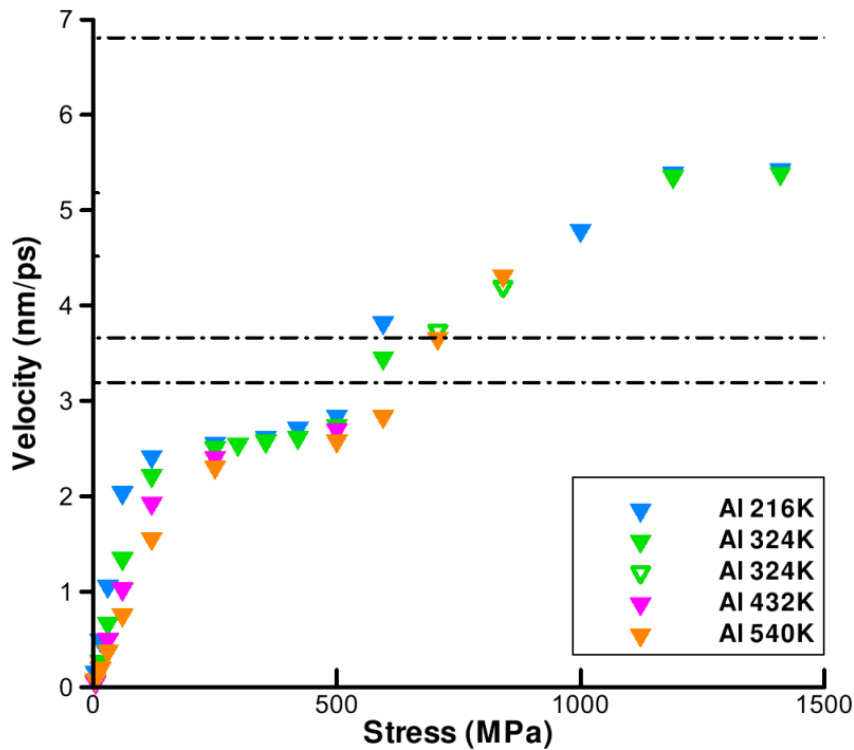


FIG. V.5 – Évolution de la vitesse moyenne d’une dislocation coin rectiligne dans l’aluminium, en fonction de la contrainte de cisaillement appliquée. Les lignes en points-tirets indiquent les différentes célérités d’une onde acoustique suivant la direction coin (par célérités croissantes : c_{tc} , c_{tc2} et c_{lc}). Un plateau de vitesses est observé pour $200 \text{ MPa} < \sigma < 500 \text{ MPa}$. Pour $\sigma > 600 \text{ MPa}$, les dislocations dépassent la plus petite célérité d’une onde acoustique c_{tc} (d’après [Olmsted et al. 2005]).

V.2 Évolution ultérieure du système

rectiligne infinie, ici la dislocation a une forme de demi-boucle. Il existe donc une tension de ligne bien plus importante, qui peut induire un amortissement supplémentaire de la vitesse. De plus la dislocation reste liée à la surface supérieure de l'échantillon, qui exerce une force image également susceptible de la freiner.

Nous l'avons vu dans le Chap. I, le ralentissement des dislocations lorsque la température augmente peut être expliqué par leur interaction avec les phonons. Aux températures que nous avons étudiées ici ($T \geq 100$ K), cette interaction est très importante. De plus, les vitesses que nous avons observées sont assez grandes devant la vitesse du son, aussi la radiation de phonons par les dislocations ne doit pas être négligeable. Ces deux phénomènes physiques, ajoutés à l'auto-interaction de la dislocation du fait de sa forme elliptique, rendent difficile la détermination du coefficient d'amortissement dans notre cas. Cependant nous avons pu mettre en évidence un effet de la température sur la vitesse des dislocations, qui est en accord avec un amortissement dû aux phonons.

V.2 Évolution ultérieure du système

Suite à la nucléation de la première dislocation, largement discutée dans les Chapitres III et IV, d'autres événements plastiques se produisent. Dans notre cas, la première dislocation étant une partielle, sa nucléation est suivie par la formation de la partielle de queue ou d'une macle.

V.2.1 Formation d'une macle

Dans la plupart des simulations en température et pour une contrainte orthogonale à la ligne de marche ($\alpha=0$), nous avons observé la formation de macles. Plusieurs processus peuvent amener à la formation et à l'élargissement de cette macle (Fig. V.6).

Chapitre V. Évènements subséquents à la nucléation de la première dislocation

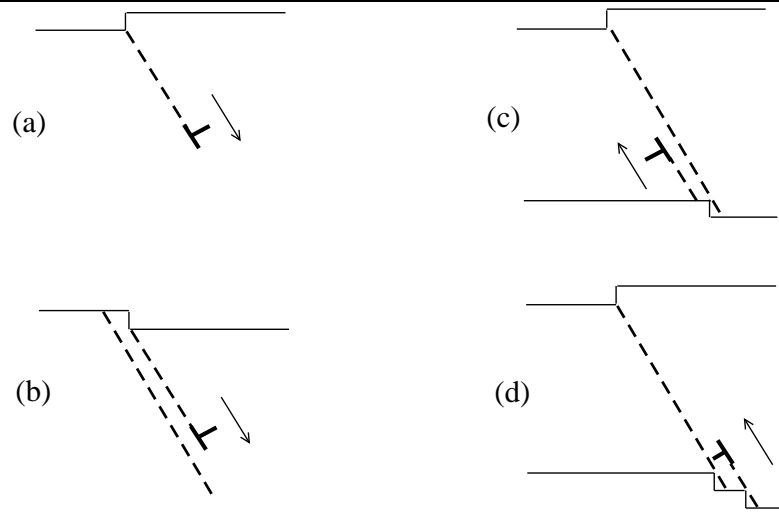


FIG. V.6 – Mécanismes possibles menant à la formation d’une macle. Les flèches indiquent la direction de propagation des dislocations ; les lignes en pointillés gras correspondent aux plans de glissement.

(a) La première dislocation partielle qui se nucléé diminue la hauteur de la marche, sans la faire disparaître complètement.

(b) Mécanisme de Pirouz : la marche restante sert de point de nucléation pour d’autres partielles dans les plans de glissement adjacents ; la marche initiale voit sa hauteur diminuée à chaque nouvelle nucléation.

(c,d) Source cinétique de Frank : si la première dislocation arrive avec une vitesse suffisamment importante, elle peut provoquer un cisaillement qui va permettre la nucléation d’une dislocation de signe opposé. Dans notre cas, les dislocations se nucléent d’un côté ou de l’autre du plan de glissement de la première dislocation partielle.

Dans le cas d’un système présentant des marches monoatomiques ($h = 1$), la première partielle se forme depuis la marche, et diminue la hauteur de celle-ci de $2/3$, mais sans la faire disparaître (Chap. III). Cette marche restante constitue toujours un endroit privilégié pour la nucléation. Depuis ce site, une autre partielle de Shockley, du même type que la première, se forme, créant une autre marche sur la surface supérieure. Plusieurs partielles se forment ainsi en cascade dans les plans $\{111\}$ adjacents, tant que la contrainte est suffisante pour permettre la nucléation, conformément au mécanisme proposé par Pirouz [Pirouz et Ning 1995] (Fig. V.6b).

Après que la première dislocation a atteint la surface inférieure du système, nous avons

V.2 Évolution ultérieure du système

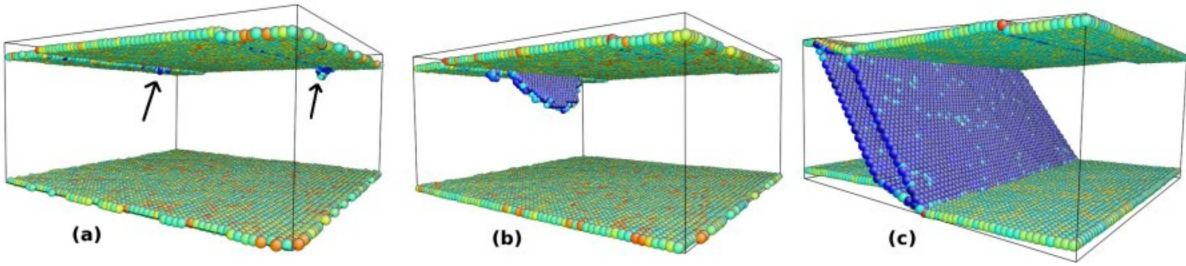


FIG. V.7 – Évolution d'un échantillon déformé de 6.5% à 300K. Des embryons de dislocation se forment puis se rétractent le long des marches (a), jusqu'à ce que l'un atteigne un rayon critique et se propage dans le cristal (b). Par la suite, d'autres partielles se nucléent dans des plans $\{111\}$ adjacents, formant finalement une micro-macle (c).

également observé la formation, depuis la surface inférieure, de dislocations partielles de vecteur de Burgers de signe opposé (Fig. V.6c,d). Ce mécanisme semble correspondre à la source cinétique de Frank [Hirth et Lothe 1982] : si une dislocation atteint une surface avec une vitesse suffisante, alors elle peut provoquer la nucléation de dislocations de signe opposé. Or nous l'avons vu, les dislocations obtenues dans les simulations ont des vitesses approchant celle du son, *a priori* suffisantes donc pour activer des sources cinétiques de Frank.

Dans la plupart des simulations que nous avons effectuées, les mécanismes de Pirouz (b) et de Frank (c) se produisent tous les deux, participant à l'élargissement de la macle. Le mécanisme (d) quant à lui, a surtout été obtenu à une température de 300 K, ce qui suggère un effet d'activation thermique.

Dans les cas où la marche de surface n'est pas monoatomique ($h \geq 2$), nous avons vu (Chap. III) que le plan de glissement activé pouvait dépendre du potentiel. Pour le potentiel d'Aslanides et Pontikis, la dislocation qui se forme augmente la hauteur de marche. Nos simulations ont montré que cet événement se poursuit souvent par la formation d'une macle, suivant le même mécanisme que celui décrit plus haut. La surface $\{111\}$ associée à la marche va ainsi être augmentée, et du fait du maillage il va se former une nouvelle surface de faible indice, une surface $\{110\}$. La Fig. V.8 illustre l'état de surface final d'un

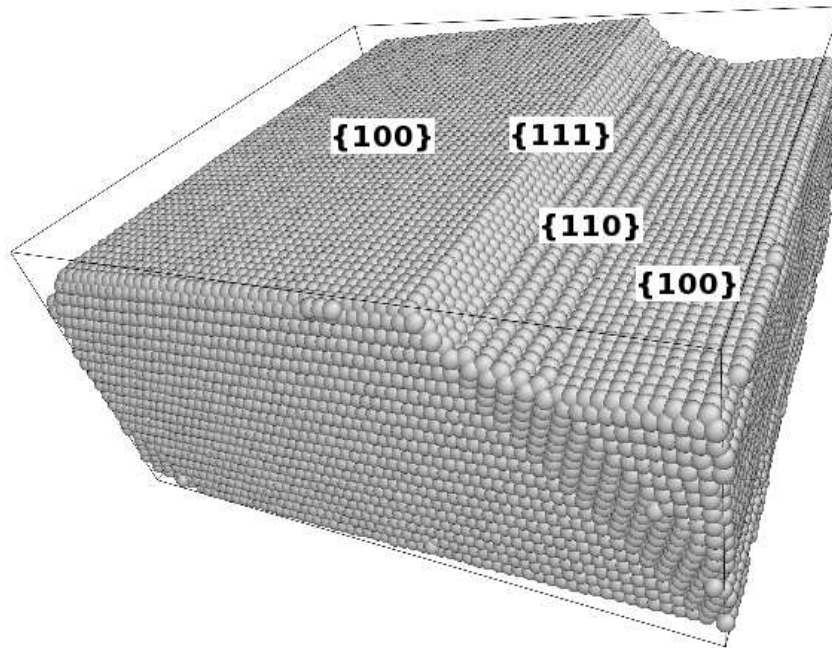


FIG. V.8 – État de surface final d'un échantillon présentant initialement des marches hautes de quatre couches atomiques, déformé de 6,8%. En plus des surfaces {100} et {111} déjà présentes avant déformation, une surface de type {110} s'est formée suite au maillage.

échantillon présentant initialement des marches hautes de quatre couches atomiques, déformé de 6,8%. Les nucléations successives liées au maillage ont fait naître une surface {110}, type qui n'était pas présent préalablement.

V.2.2 Nucléation de la partielle de queue

La formation de la partielle de queue a été obtenue pour des orientations de contraintes non orthogonales à la ligne de marche. Pour les orientations $\alpha = 18^\circ$ et $\alpha = 36^\circ$, testées dans le Chap. III, il se nucléé d'abord une dislocation partielle de tête 90° , puis la partielle de queue 30° . Comme nous l'avons vu, ceci s'explique par l'analyse de la γ -surface, qui empêche la formation d'une partielle de tête 30° .

Dans une majorité de simulations où le système subit une élongation orthogonale à la ligne de marche ($\alpha = 0^\circ$), le mécanisme de maillage a été observé de façon quasi sys-

V.2 Évolution ultérieure du système

tématique, comme cela est exposé dans la sous-section précédente. Cependant, l'un de ces essais a abouti à la nucléation de la partielle de queue, venant effacer le défaut d'empilement de la première partielle. Ce résultat montre que les deux mécanismes sont en compétition, mais que dans cette géométrie la formation de la partielle de queue est bien moins probable.

V.2.3 Discussion : macle ou partielle de queue ?

Dans le cas d'une orientation de contrainte $\alpha = 0^\circ$, de multiples simulations ont montré que le maclage est privilégié par rapport à la formation d'une partielle de queue, et ce quelle que soit la température. Pourtant, l'énergie du défaut d'empilement intrinsèque est très élevé dans l'aluminium (Chap. II), et donc une grande énergie est associée à la propagation d'une dislocation partielle seule. Ce raisonnement semble s'opposer à la formation de multiples partielles, et rendre la formation de la partielle de queue, venant effacer le défaut d'empilement, énergétiquement plus favorable. Alors comment expliquer que la formation d'une macle soit le mécanisme privilégié ?

D'abord, le facteur de Schmid sur la partielle 30° est très faible pour une orientation de contrainte $\alpha = 0^\circ$, moitié moins que pour la partielle 90° (voir Fig. II.7). Ensuite, lors du processus de maclage il n'y a pas de création de nouveau défaut d'empilement ; ainsi la force de rappel liée au défaut d'empilement (F^{sf} dans le Chap. II) qui tend à empêcher la première dislocation de se propager, ne s'applique pas aux dislocations partielles suivantes. Seule l'énergie γ_i du premier défaut d'empilement joue un rôle, et cette énergie est ensuite répartie entre les deux joints de macle. Dans ces conditions, il est énergétiquement plus favorable de nucléer une partielle 90° dans un plan adjacent que de former la partielle de queue 30° .

Ces considérations expliquent que le processus de maclage par nucléation de par-

Chapitre V. Évènements subséquents à la nucléation de la première dislocation

tielles soit favorisé lors de la déformation plastique du matériau. Elles sont corroborées par des observations expérimentales du maclage dans l'aluminium polycristallin [Chen et al. 2003].

V.3 Conclusions

Dans ce Chapitre nous nous sommes intéressés à l'évolution du système suite à la nucléation de la première dislocation. Bien qu'au départ les simulations effectuées n'avaient pas pour but une étude sur la cinétique, elles ont apporté quelques informations sur les différents évènements plastiques que nous avons obtenus.

L'étude de la cinétique de la première dislocation a permis d'observer une diminution de la vitesse moyenne lorsque la température augmente. Cette effet est principalement dû à l'interaction dislocations-phonons et, aux très fortes contraintes et grandes vitesses, sans doute à une perte d'énergie par radiation de phonons par les dislocations. Ces interactions ne sont vraisemblablement pas les seules responsables de l'amortissement de la vitesse des dislocations ; dans notre cas, la tension de ligne ainsi que la force image peuvent également jouer un rôle. En parallèle, nous avons pu établir que l'extension du cœur des dislocations suivant la direction de propagation diminue lorsque leur vitesse augmente, conformément à la théorie élastique des dislocations.

Après la nucléation de la première dislocation, le système hors équilibre peut suivre différentes évolutions, caractérisées chacune par des barrières d'énergie à franchir. L'un de ces chemins mène à la formation d'une partielle de queue, tandis qu'un autre mène à la formation d'une micro-macle. Les simulations que nous avons menées montrent que le type de mécanisme activé dépend de l'orientation de contrainte, comme nous l'avons déjà vu dans le Chap. III. Les processus de maclage obtenus par simulations correspondent à ceux déjà proposés dans la littérature. Enfin, nous avons confirmé que loin d'être impro-

V.3 Conclusions

bable, la formation d'une macule est privilégiée dans le cas d'une traction orthogonale à la ligne de marche.

Chapitre V. Conclusions générales et perspectives

Conclusions générales et perspectives

Dans ce travail de thèse, nous avons étudié la formation de dislocations depuis la surface d'un métal cfc sous contrainte. La nucléation des dislocations est en effet un processus encore mal connu et difficile à caractériser. Au cours de cette thèse, nous avons cherché à déterminer les différents paramètres de la barrière d'énergie associée au mécanisme de nucléation, ainsi que l'influence de différents facteurs extérieurs. Pour réaliser cette étude, nous avons combiné l'utilisation de calculs basés sur la théorie élastique et de différentes méthodes atomistiques classiques.

Les simulations de la formation de demi-boucles de dislocations ont mis en évidence le rôle de différents paramètres extérieurs. Il s'agit d'un mécanisme thermiquement activé ; cependant l'effet de la température sur la contrainte de nucléation semble mineur. D'un autre côté, nous avons montré l'importance des défauts de surface sur l'initiation de la plasticité. Les marches de surface jouent ici un rôle primordial. En effet, elles concentrent localement la contrainte, ce qui induit un précisaillement dans un plan de glissement passant par la marche ; la contrainte appliquée nécessaire à la nucléation se trouve alors diminuée. La hauteur de la marche semble avoir un effet important sur la contrainte de nucléation, et sur le plan de glissement activé ; néanmoins ce dernier point semble dépendre du potentiel utilisé, aussi d'autres simulations seront nécessaires pour une compréhension

Chapitre V. Conclusions générales et perspectives

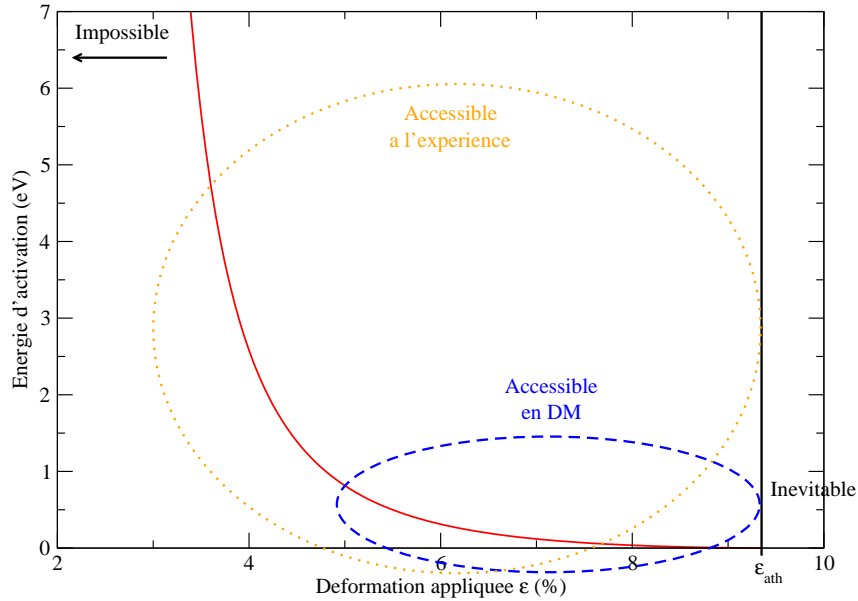


FIG. V.9 – Régimes possibles pour l’observation de la nucléation ; la courbe continue indique l’évolution de l’énergie d’activation en fonction de la déformation, obtenue ici grâce au modèle élastique ajusté (Chap. IV).

approfondie.

Nous avons déterminé les paramètres d’activation associés à la barrière d’énergie, dans le cas particulier d’un système présentant des marches de surface monoatomiques, et soumis à une traction uniaxiale orthogonale à la ligne de marche. Des simulations employant des potentiels semi-empiriques (dynamique moléculaire, relaxation contrainte, NEB) ont permis d’obtenir ces paramètres. Nous avons aussi modifié un modèle élastique existant, dont les paramètres ont été ajustés à partir des résultats des simulations. Ce modèle nous a ainsi permis d’obtenir l’évolution des paramètres d’activation sur tout l’intervalle possible de contrainte appliquée.

Les résultats obtenus indiquent que les paramètres d’activation varient très brusquement lorsque la contrainte appliquée diminue. Pour résumer, l’évolution de l’énergie d’activation montre plusieurs régimes (Fig. V.9). Pour des déformations supérieures à la déformation athermique ϵ_{ath} , l’énergie d’activation est nulle, et donc la formation de dis-

locations est inévitable même à 0 K. Pour des déformations élevées mais inférieures à ϵ_{ath} , les énergies d'activation sont relativement faibles ($0\sim 1$ eV), et les temps nécessaires à la nucléation très courts; l'évènement pourra donc être observé lors de simulations en dynamique moléculaire. Pour des déformations relativement faibles, l'énergie d'activation augmente rapidement, et les temps de nucléation deviennent inaccessibles à la dynamique moléculaire. La nucléation n'est alors observable que si la vitesse de déformation est suffisamment petite, par des expériences notamment. Nous avons toutefois montré que les simulations permettent d'obtenir les paramètres d'activation à de telles déformations, à travers des méthodes statiques utilisées dans ce travail comme la relaxation contrainte, la méthode essai-erreur, ou le NEB. Enfin, lorsque les déformations sont très faibles, l'énergie d'activation devient très élevée, et la nucléation devient un évènement fortement improbable.

Finalement, la dynamique moléculaire a également permis d'obtenir des éléments qualitatifs et quantitatifs sur la cinétique des dislocations et sur les évènements plastiques subséquents à la nucléation de la première dislocation. La diminution de la vitesse des dislocations lorsque la température augmente, principalement liée à l'interaction avec les phonons, a pu être mise en évidence. Les simulations semblent également montrer une relation entre la vitesse des dislocations et l'extension de leur cœur, résultat en accord avec la théorie élastique. Suite à la formation de la première dislocation partielle, plusieurs mécanismes plastiques ont été obtenus. Dans la plupart des cas, la formation d'une macule est privilégiée car il s'agit du mécanisme le plus favorable énergétiquement. La nucléation de la partielle de queue a essentiellement été obtenue pour des orientations de contrainte non orthogonales à la ligne de marche.

Ce travail de thèse peut être placé en perspective de l'étude d'autres problèmes impliquant des mécanismes de formation de dislocations. Les méthodes que nous avons employées ici peuvent être appliquées de façon assez générales à l'étude de la nucléation. En

Chapitre V. Conclusions générales et perspectives

particulier, la méthode essai-erreur est un moyen relativement fiable et peu dispendieux en temps de calcul. Elle permet également d'obtenir des configurations proches du point col, qui peuvent servir de bon point de départ pour un calcul NEB. On peut notamment envisager une approche similaire dans le cas de matériaux covalents tels les semiconducteurs. À la différence des métaux cfc, ces matériaux sont fragiles dans les conditions usuelles, les mécanismes de la plasticité seront donc différents. La nucléation de dislocations à partir d'un défaut de surface est un mécanisme similaire à la nucléation depuis un front de fissure, qui est une problématique fondamentale pour la compréhension de la transition fragile-ductile des semiconducteurs. Cependant, les potentiels semi-empiriques étant moins fiables pour ces matériaux, il sera peut-être nécessaire de recourir à des méthodes multi-échelles, couplant les potentiels classiques avec des calculs *ab initio* pour modéliser de façon plus précise les cœurs des défauts. L'utilisation de telles méthodes reste toutefois un challenge.

Enfin, bien que dans ce travail de thèse nous nous soyons intéressés à une surface infinie, la méthodologie employée, et dans une moindre mesure les résultats obtenus, pourraient être utilisés pour l'étude de l'initiation de la plasticité dans des nanostructures comme des nanopiliers ou des nanofils. Ces nanomatériaux présentent différentes sections (elliptiques ou polygonales) et donc différents défauts de surface; l'étude des tout premiers stades de la plasticité permettrait de mieux comprendre, dans ces structures, l'augmentation de la limite élastique pour les métaux, et l'apparition de la ductilité dans le cas des semiconducteurs.

Annexe A

Les métaux cfc et leurs applications

La métallurgie intéresse de nombreux domaines, tant du point de vue fondamental que des applications. Les métaux ont de faibles valeurs d'énergie d'activation pour la formation de dislocations ; ces défauts sont donc susceptibles de se former très facilement. Ces matériaux sont donc ductiles et facilement usinables, ils ont de très bonnes conductivités électrique et thermique (voir Tab. A.1), et mélangés à d'autres éléments, ils peuvent former des alliages aux propriétés très variées selon l'application désirée. On peut citer la fonte et l'acier (alliages de fer et de carbone), le bronze (cuivre+étain), le laiton (cuivre+zinc), ou encore les alliages d'aluminium dit alliages légers (Al+cuivre, Al+magnésium, Al+zinc, etc.). Les alliages sont utilisés depuis plusieurs milliers d'années pour fabriquer des armes, des outils, des contenants (pots, vaisselle), cercler des fûts ou des roues...

Dans la conception de dispositifs électroniques, les métaux comme le cuivre, l'aluminium, l'argent ou l'or, sont largement utilisés pour leurs propriétés conductrices, ou bien comme dissipateurs de chaleur. Des nanopiliers peuvent également être utilisés en tant que métamatériau, pour la conception de dispositifs optiques à indice de réfraction négatif [Grigorenko et al. 2005].

Annexe A. Les métaux cfc et leurs applications

Métal	Densité (kg.m^{-3})	Conductivité électrique (S.m^{-1})	Conductivité thermique ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	Module d'Young (GPa)	Température de fusion (K)
Aluminium	2700	$37,8 \times 10^6$	237	70	933
Cuivre	8920	$59,6 \times 10^6$	401	110-130	1358
Argent	10500	$63,01 \times 10^6$	429	83	1235
Or	19300	$45,2 \times 10^6$	318	78	1337

TAB. A.1 – Propriétés de quelques métaux usuels. L'aluminium est un métal pauvre, tandis que le cuivre, l'argent et l'or sont des métaux de transition.

Du point de vue de ses propriétés physiques, l'aluminium (Al) est un métal un peu particulier. C'est un élément de la treizième colonne du tableau périodique, il s'agit donc d'un métal pauvre au même titre que le gallium, l'indium ou l'étain. L'aluminium est néanmoins le métal pauvre le plus dur et ayant la plus grande température de fusion (933 K)¹. Il est non magnétique, et possède une masse atomique de 26.98 u.a.² pour son isotope le plus stable (²⁷Al). C'est un matériau malléable, relativement léger comparé aux métaux de transition (Tab. A.1). Il possède donc des propriétés bien différentes de ses voisins : le bore appartient à la même colonne, mais est un semi-métal très mauvais conducteur à température ambiante ; le gallium, métal pauvre également, est fragile à basse température et possède une température de fusion très proche de l'ambiante (29,76°C) ; le silicium est semiconducteur, fragile à basse température et ductile à haute température.

L'aluminium est le second métal le plus utilisé en terme de tonnage et de valeur marchande. S'il possède des propriétés électriques et thermiques en-deçà de certains métaux de transition, il est également plus léger et bien moins cher à produire. Il est notamment souvent utilisé en remplacement du cuivre qui est plus lourd, plus dispendieux, et qui a une température de fusion de 1357 K, plus difficile à atteindre de manière industrielle. L'aluminium est donc un bon candidat pour la conception de fils électriques, la fabrication

¹Contre 302 K pour Ga, 430 K pour In et 505 K pour Sb.

²Soit $4,48 \times 10^{-26}$ kg.

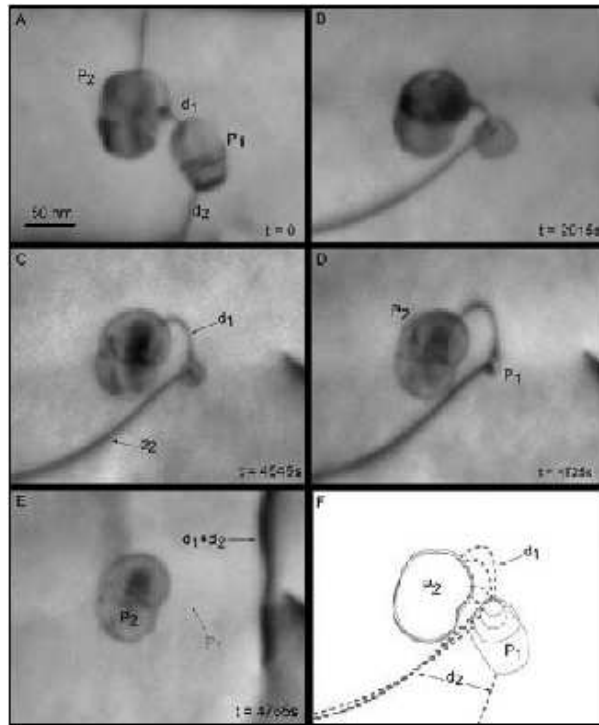


FIG. A.1 – Observation en MET *in situ* de la migration de particules de silice le long de dislocations dans un film d'aluminium. Il a été montré que ce mécanisme est en partie responsable du "vieillessement" des processeurs, et peut mener à leur dysfonctionnement (d'après [Legros et al. 2008]).

de dissipateurs de chaleurs ou, sous forme très pure, les circuits électroniques (connexions entre composants). Les alliages d'aluminium, aux propriétés variées, sont souvent utilisés dans la fabrication de moyens de transport, des appareils ménagers courants (micro-ondes, robots, ordinateurs), dans l'industrie alimentaire (conserves, papier d'aluminium) ou le bâtiment (fenêtres, volets, gouttières). Enfin, c'est un matériau relativement facile à recycler.

Dans le domaine particulier de la micro-électronique, l'utilisation de l'aluminium est essentielle. Il est utilisé par exemple pour connecter les transistors entre eux dans les circuits intégrés (puces, processeurs), en le renforçant par de la silice pour éviter des problèmes de diffusion de la matière. Or ce type d'utilisation peut se révéler problématique : les dislocations dans l'aluminium peuvent agir comme des canaux pour la diffusion de particules de silice, mécanisme qui induit une détérioration des propriétés de conduc-

Annexe A. Les métaux cfc et leurs applications

tion du film d'aluminium et conduit à un "vieillissement" des dispositifs électroniques tels que les processeurs. Ce phénomène, supposé depuis de nombreuses années, a récemment été mis en évidence expérimentalement par Legros *et al.* [Legros et al. 2008] (Fig. A.1). L'aluminium fait également partie des candidats pour la conception et l'utilisation de nanopiliers, qui pourraient être utilisés comme dissipateurs de chaleur ou en tant que métamatériau [Grigorenko et al. 2005]; de telles structures nécessitent d'être exemptes de tout défaut pour des propriétés optimales.

Annexe B

Méthodes de simulations atomistiques

Nous appelons simulations atomistiques classiques, des simulations numériques basées sur des quantités liées aux atomes dans leur globalité, sans faire le détail de leurs constituants plus élémentaires. Ces simulations utilisent un potentiel pré-établi, également appelé semi-empirique, pour calculer les forces qui s'appliquent aux atomes, et en déduire leur dynamique par intégration des lois de Newton.

Ici nous présentons le détail des méthodes, déjà introduites dans le Chap. II, que nous avons employées dans ce travail de thèse.

B.1 Le potentiel EAM d'Aslanides et Pontikis pour l'aluminium

Le formalisme des potentiels EAM est donné au Chap. II. Dans ce travail de thèse, nous avons surtout employé le potentiel EAM proposé par Aslanides et Pontikis pour mo-

Annexe B. Méthodes de simulations atomistiques

A	p	ξ	q	C1	S1	C2
0.1780	6.5000	1.3831	2.0700	0.00947	0.00515	0.01664

TAB. B.1 – Valeurs des paramètres dans l'expression B.1 du potentiel EAM pour l'aluminium présenté ici [Aslanides et Pontikis 1998b]. A , ξ , $C1$, $S1$ et $C2$ sont exprimés en eV.

décrire les interactions entre les atomes d'aluminium [Aslanides et Pontikis 1998b]. Dans ce formalisme, l'énergie potentielle de l'atome i s'exprime comme :

$$\begin{aligned}
 E_i = & \sum_{j \neq i} A \exp \left[-p \left(\frac{r_{ij}}{r_0} - 1 \right) \right] \\
 & - \left\{ \sum_{j \neq i} \xi^2 \exp \left[-2q \left(\frac{r_{ij}}{r_0} - 1 \right) \right] \right\}^{1/2} \\
 & + \sum_{j \neq i} \left\{ \left[\frac{C1 \cos(2k_f r_{ij})}{(r_{ij}/r_0)^3} \right] + \left[\frac{S1 \sin(2k_f r_{ij})}{(r_{ij}/r_0)^4} \right] + \left[\frac{C2 \cos(2k_f r_{ij})}{(r_{ij}/r_0)^5} \right] \right\} \quad (B.1)
 \end{aligned}$$

où le second terme correspond aux interactions à N -corps¹, et les premier et troisième terme sont le terme répulsif et oscillant, respectivement². Dans cette expression, les sommes sont faites sur l'ensemble des paires d'atomes (i, j) , $r_{ij} = |\vec{r}_j - \vec{r}_i|$ désigne la distance entre les atomes i et j , $r_0 = a_0/\sqrt{2}$ la distance entre premiers voisins (a_0 étant le paramètre de maille de l'aluminium), et k_f le vecteur d'onde de Fermi de l'aluminium. Les autres termes sont des coefficients ajustables dont les valeurs, déterminées par les auteurs, sont reportées dans le Tab. B.1. Ce potentiel a un rayon de coupure³ relativement grand : 9,21 Å, situé entre les dixième et onzième voisins. Ici, le potentiel n'est pas adouci autour du rayon de coupure, ce qui entraîne une petite discontinuité en R_c , sans doute responsable des "sauts" de contrainte observés sur la Fig. II.6 (Chap. II).

¹Pour faire le parallèle avec l'Eq. II.10, on aurait ici $F(\rho_i) = -\rho_i^{1/2}$ avec $\rho_i = \sum_{j \neq i} \rho(r_{ij})$, où $\rho(r_{ij}) = \xi^2 \exp \left[-2q \left(\frac{r_{ij}}{r_0} - 1 \right) \right]$.

² $\Phi(r_{ij}) = 2A \exp \left[-p \left(\frac{r_{ij}}{r_0} - 1 \right) \right] + 2 \left\{ \left[\frac{C1 \cos(2k_f r_{ij})}{(r_{ij}/r_0)^3} \right] + \left[\frac{S1 \sin(2k_f r_{ij})}{(r_{ij}/r_0)^4} \right] + \left[\frac{C2 \cos(2k_f r_{ij})}{(r_{ij}/r_0)^5} \right] \right\}$.

³Le rayon de coupure R_c est le rayon au-delà duquel le potentiel est considéré comme nul ($E_i = 0$ pour $r_{ij} > R_c$).

B.2 Relaxation : gradients simples et conjugués

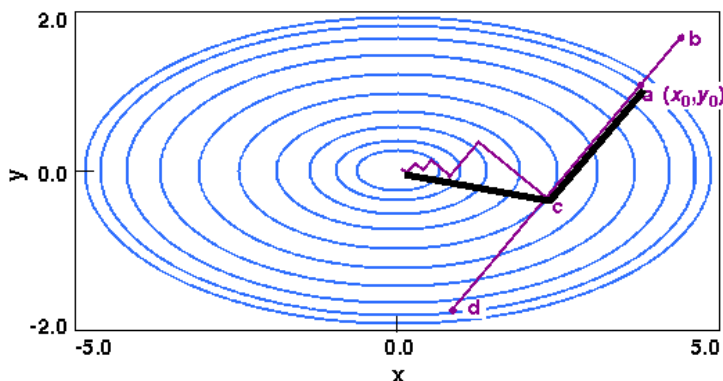


FIG. B.1 – Exemple de minimisation d'énergie dans le cas simple d'un potentiel harmonique anisotrope. Les lignes bleues indiquent les lignes d'iso-énergie, le point $a(x_0, y_0)$ indique le point de départ du calcul.

En violet : la méthode des gradients simples (*steepest descent*) suit des directions successives, déterminées à chaque itération uniquement à partir de l'opposé du gradient local. Un grand nombre d'itérations peut être nécessaire avant d'atteindre la solution.

En noir : la méthode des gradients conjugués utilise des directions conjuguées pour minimiser la fonction. Ici, deux itérations suffisent pour trouver la solution.

B.2 Relaxation : gradients simples et conjugués

Les méthodes de gradients permettent de trouver le plus proche minimum local d'une fonction de N variables ; elles nécessitent que le gradient de la fonction puisse être calculé.

Considérons le système de N équations linéaires :

$$Ax = b \tag{B.2}$$

où A est une matrice de dimensions $N \times N$, et x et b sont des vecteurs. Le problème peut se réécrire sous la forme quadratique d'une fonction f que l'on cherche à minimiser :

$$f(x) = \frac{1}{2}x^{-1}Ax - b^{-1}x \tag{B.3}$$

À partir d'une configuration de départ x_0 , le premier pas de minimisation se fait suivant la direction dans laquelle la valeur de la fonction diminue le plus vite, autrement dit la direction correspondant à l'opposé de son gradient, $-\nabla f(x_0)$; le calcul minimise alors

Annexe B. Méthodes de simulations atomistiques

la fonction dans cette direction.

Dans la méthode des gradients simples (*steepest descent*), à chaque nouvelle itération la fonction est minimisée dans la direction correspondant à l'opposé du gradient local (à la i -ème itération : $-\nabla f(x_i)$), de sorte que le chemin suivi correspond toujours à celui qui minimise le mieux la fonction dans cette direction. Cependant, cette méthode n'est pas toujours efficace. Par exemple dans le cas d'un potentiel harmonique anisotrope (Fig. B.1), cette méthode requiert un grand nombre de pas pour converger ; rien n'indique même que le nombre de pas pour parvenir à la solution soit fini.

Dans la méthode des gradients conjugués, à chaque itération supplémentaire la direction suivante est définie comme la direction conjuguée de la précédente. Autrement dit, à la i -ème itération, la direction conjuguée est calculée de sorte que :

$$\langle x_{i-1}, x_i \rangle_A = x_{i-1}^T A x_i = 0 \quad (\text{B.4})$$

et la fonction est ensuite minimisée suivant cette direction.

Cette méthode se montre généralement plus rapide que celle des gradients simples : le nombre de pas nécessaires pour atteindre la convergence est de l'ordre de N pas, N étant le nombre de variables indépendantes (Fig. B.1).

B.3 Dynamique moléculaire et algorithmes d'intégration

L'intégration numérique des lois de Newton n'est pas compliquée en principe, cependant sa mise en œuvre pose des problèmes techniques. D'abord, l'utilisation d'éléments

B.3 Dynamique moléculaire et algorithmes d'intégration

infinitésimaux est impossible, il est donc nécessaire d'intégrer sur des pas de temps finis. Le choix de ce pas de temps est crucial. S'il est pris trop grand, il mènera à une divergence du calcul (les déplacements atomiques calculés deviendront supérieurs à la distance entre atomes). S'il est choisi trop petit devant les temps caractéristiques du processus à simuler, les temps de calcul seront très grands. Ensuite, il faut employer des algorithmes efficaces et stables afin d'optimiser le temps de calcul. Nous présentons ici deux algorithmes d'intégration, implémentés dans les codes de dynamique moléculaire dont nous nous sommes servis dans cette thèse.

B.3.1 L'algorithme de Verlet

L'algorithme de Verlet [Verlet 1967a, Verlet 1967b] est implémenté dans de nombreux codes de dynamique moléculaire, dont XMD que nous avons utilisé ici [Rifkin 2004]. L'idée est d'écrire les positions atomiques \vec{r} aux instants $(t - \delta t)$ et $(t + \delta t)$ comme des développements de Taylor d'ordre 3 :

$$\vec{r}(t - \delta t) = \vec{r}(t) - \dot{\vec{r}}(t)\delta t + \frac{1}{2}\ddot{\vec{r}}(t)\delta t^2 - \frac{1}{6}\dddot{\vec{r}}(t)\delta t^3 + O(\delta t^4) \quad (\text{B.5})$$

$$\vec{r}(t + \delta t) = \vec{r}(t) + \dot{\vec{r}}(t)\delta t + \frac{1}{2}\ddot{\vec{r}}(t)\delta t^2 + \frac{1}{6}\dddot{\vec{r}}(t)\delta t^3 + O(\delta t^4) \quad (\text{B.6})$$

où $\dot{\vec{r}}$ est la vitesse, $\ddot{\vec{r}}$ l'accélération, et $\dddot{\vec{r}}$ la dérivée troisième de la position par rapport au temps. En ajoutant les deux expressions, les positions atomiques à l'instant $(t + \delta t)$ s'écrivent :

$$\vec{r}(t + \delta t) = 2\vec{r}(t) - \vec{r}(t - \delta t) + \delta t^2\ddot{\vec{r}}(t) + O(\delta t^4) \quad (\text{B.7})$$

Annexe B. Méthodes de simulations atomistiques

L'accélération sur chaque atome s'obtient simplement d'après la seconde loi de Newton, en divisant la force agissant sur l'atome par sa masse :

$$\ddot{\vec{r}}(t) = -\frac{1}{m}\nabla V(\vec{r}(t)) \quad (\text{B.8})$$

V étant le potentiel de l'atome. Ainsi cet algorithme est relativement simple à comprendre et à implémenter, et il se révèle efficace à l'usage, ce qui explique sa popularité. Un de ses inconvénients est que les vitesses atomiques ne sont pas calculées directement. Au besoin elles peuvent être déduites des positions successives des atomes :

$$\dot{\vec{r}}(t) = \frac{\vec{r}(t + \delta t) - \vec{r}(t - \delta t)}{2\delta t} \quad (\text{B.9})$$

B.3.2 L'algorithme prédicteur-correcteur de Gear

En 1971, C. W. Gear proposa un autre algorithme d'intégration, dit prédicteur-correcteur [Gear 1971]. Cet algorithme développé au cinquième ordre est implémenté dans le code de dynamique moléculaire massivement parallèle LAMMPS [LAMMPS 2006], que nous avons employé au cours de cette thèse. Cet algorithme se déroule en trois étapes :

1. Calcul du prédicteur : à partir des positions atomiques $\vec{r} = \vec{r}_0$ à l'instant t , et de leurs dérivées temporelles, $\vec{r}_1 = \delta t(d\vec{r}_0/dt)$, $\vec{r}_2 = \frac{1}{2}\delta t^2(d^2\vec{r}_0/dt^2)$, $\vec{r}_3 = \frac{1}{6}\delta t^3(d^3\vec{r}_0/dt^3)$ et ainsi de suite jusqu'à l'ordre q , les mêmes quantités sont prédites pour le pas de temps suivant, $t + \delta t$, par simple développement de Taylor. Nous prendrons ici l'exemple de l'algorithme de Gear au quatrième ordre pour des raisons de simplicité

B.3 Dynamique moléculaire et algorithmes d'intégration

et de clarté ; le prédicteur d'ordre 4 s'écrit alors sous forme matricielle :

$$\begin{pmatrix} \vec{r}_0^p(t + \delta t) \\ \vec{r}_1^p(t + \delta t) \\ \vec{r}_2^p(t + \delta t) \\ \vec{r}_3^p(t + \delta t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 1 & 1 & 1 \\ 0 & 1 & 2 & 3 \\ 0 & 0 & 1 & 3 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \vec{r}_0(t) \\ \vec{r}_1(t) \\ \vec{r}_2(t) \\ \vec{r}_3(t) \end{pmatrix} \quad (\text{B.10})$$

La matrice est un triangle de Pascal, facilement généralisable à des ordres plus élevés.

- Calcul des forces : la force exercée sur chaque atome est calculée d'après le gradient de potentiel aux positions prédites ($F = -\nabla V(\vec{r}_0^p)$). L'accélération qui en découle ($\vec{r}_2^c = F/m$) sera probablement différente de celle donnée par le prédicteur ; la différence entre les deux constitue un "signal d'erreur", appelée correcteur. Au quatrième ordre :

$$\Delta \vec{r}_2 = \vec{r}_2^c(t + \delta t) - \vec{r}_2^p(t + \delta t) \quad (\text{B.11})$$

- Application du correcteur : la valeur du correcteur est utilisée pour corriger les positions et leurs dérivées. Les positions "correctes" au temps $t + \delta t$ s'écrivent alors :

$$\begin{pmatrix} \vec{r}_0^c(t + \delta t) \\ \vec{r}_1^c(t + \delta t) \\ \vec{r}_2^c(t + \delta t) \\ \vec{r}_3^c(t + \delta t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \vec{r}_0^p(t + \delta t) \\ \vec{r}_1^p(t + \delta t) \\ \vec{r}_2^p(t + \delta t) \\ \vec{r}_3^p(t + \delta t) \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} c_0 \\ c_1 \\ c_2 \\ c_3 \end{pmatrix} \Delta \vec{r}_2 \quad (\text{B.12})$$

Ces corrections sont proportionnelles à des coefficients c_i , déterminés pour maximiser la stabilité de l'algorithme.

Annexe B. Méthodes de simulations atomistiques

Cette méthode a des avantages par rapport à l'algorithme de Verlet uniquement pour des pas de temps très petits; cependant le fait d'avoir accès aux vitesses directement dans le calcul peut se révéler utile, si d'autres algorithmes utilisent cette quantité durant la simulation, pour contrôler la température ou la pression par exemple.

B.4 Maintien de la température en dynamique moléculaire

Les simulations en dynamique moléculaire sont effectuées suivant l'ensemble canonique ou NVT . En effet le système est porté à une déformation donnée, ce qui revient à fixer les dimensions de la boîte de simulation, avant de lancer l'intégration des équations de Newton; la simulation se fait donc à volume V constant. Le nombre de particules N est également constant (pas d'apport ni de perte de matière), et la température T est maintenue à peu près constante par un algorithme, qui consiste essentiellement à contrôler la vitesse moyenne des particules⁴.

Nous détaillons ici les algorithmes permettant de maintenir la température dans les codes de dynamique moléculaire que nous avons employé au cours de cette thèse.

B.4.1 Renormalisation des vitesses

Dans le code XMD, le maintien de la température se fait par une renormalisation des vitesses selon un facteur qui dépend uniquement de la température du système T et de celle du thermostat T_0 . À chaque pas de dynamique moléculaire les vitesses des atomes

⁴Dans les simulations, l'énergie cinétique est donc renormalisée de façon arbitraire pour conserver la température; l'énergie mécanique du système, somme des énergies cinétique et potentielle, n'est donc pas conservée.

B.4 Maintien de la température en dynamique moléculaire

sont multipliées par le facteur :

$$\sqrt{\left(\frac{T_0}{T}\right)^{dt/L}} \quad (\text{B.13})$$

où L est le "temps de montée" (temps que le système a mis pour passer de T_0 à T), et dt est le pas de temps utilisé pour intégrer les équations de Newton dans la simulation.

Cet algorithme est similaire à celui proposé par Berendsen *et al.* [Berendsen et al. 1984], dans lequel les vitesses sont multipliées par un facteur :

$$\sqrt{1 + \frac{dt}{L} \left(\frac{T_0}{T} - 1\right)} \quad (\text{B.14})$$

Ces deux algorithmes permettent de maintenir la température en permettant des fluctuations. En revanche, elles produisent des distributions de vitesses qui sont celles d'un ensemble microcanonique (NVE); elles ne reproduisent donc pas les fluctuations d'un véritable ensemble canonique (NVT).

B.4.2 Thermostat de Nosé-Hoover

Le code massivement parallèle LAMMPS permet l'utilisation d'un algorithme appelé thermostat de Nosé-Hoover pour contrôler la température; ce dernier a été développé pour reproduire correctement le comportement d'un ensemble canonique. C'est cet algorithme que nous avons employé pour les simulations effectuées à partir de ce code.

Le principe du thermostat de Nosé-Hoover est de considérer que le thermostat fait partie intégrante du système. Nosé introduit pour cela une force de couplage artificielle supplémentaire $\vec{f}_i^c = -\eta\vec{p}_i$ (avec \vec{p}_i l'impulsion de la i -ème particule) qui joue le rôle de force de friction si la température du système est supérieure à celle du thermostat ($\eta > 0$),

Annexe B. Méthodes de simulations atomistiques

ou au contraire d'accélération si la température est plus faible ($\eta < 0$). Ce formalisme introduit des variables fictives associées au thermostat ; Hoover a ensuite montré que les équations du mouvement pouvaient s'écrire en terme de variables réelles du système :

$$\ddot{\vec{r}}_i = \frac{-\vec{f}_i}{m_i} - \eta \dot{\vec{r}}_i \quad (\text{B.15})$$

où \vec{f}_i la force totale sur la i -ème particule. Le paramètre η est défini comme :

$$\dot{\eta} = \frac{1}{m_s} \left(\sum_{i=1}^N N \frac{\vec{p}_i^2}{m_i} - G k_B T \right) \quad (\text{B.16})$$

où m_i est la masse de la i -ème particule, G le nombre de degrés de liberté du système, et m_s la "masse" fictive associée au thermostat, déterminant le couplage entre le système et le thermostat. Cette dernière doit être choisie avec soin ; prise trop grande, la température du système ne sera pas maintenue efficacement (couplage faible), et prise trop petite elle conduira à des oscillations très rapides de la température.

B.5 La méthode Nudged Elastic Band

La méthode Nudged Elastic Band (NEB) [Jónsson et al. 1998] est un algorithme permettant la détermination des chemins d'énergie minimum (CEM). Elle emploie pour cela un ensemble de configurations ou images, correspondant à différents états pouvant être empruntés par le système. Ces configurations sont liées entre elles, formant une chaîne d'images. Le principe de la méthode NEB est alors de minimiser l'énergie de cette chaîne d'image, la faisant ainsi tendre vers le CEM.

Si une configuration, correspondant à des positions atomiques données, est notée R_i , alors une chaîne de N images peut être notée $[R_0, R_1, R_2, \dots, R_N]$. Dans la méthode NEB originale, les images initiale R_0 et finale R_N sont fixes, et correspondent à des minima

B.5 La méthode Nudged Elastic Band

d'énergie. Néanmoins différentes adaptations de cette méthode utilisent d'autres types d'images. Par exemple dans la méthode Free-End Nudged Elastic Band (FENEB), l'image finale n'est pas fixe mais peut se déplacer sur la surface d'énergie en conservant son énergie constante. Dans cette thèse, l'image finale ne correspond pas à un minimum d'énergie, comme expliqué au Chap. IV.

B.5.1 L'algorithme NEB original

Dans un premier temps, la direction tangente à la chaîne d'images est calculée :

$$\vec{\tau}_i = \frac{\vec{R}_i - \vec{R}_{i-1}}{|\vec{R}_i - \vec{R}_{i-1}|} + \frac{\vec{R}_{i+1} - \vec{R}_i}{|\vec{R}_{i+1} - \vec{R}_i|} \quad (\text{B.17})$$

La tangente est donc une moyenne des images précédente et suivante. Par la suite la méthode utilise le vecteur normalisé, $\hat{\tau}_i = \tau_i/|\tau_i|$. Ensuite, la force agissant sur chaque image est dérivée du potentiel interatomique V :

$$\vec{F}_i = -\nabla V(\vec{R}_i) \quad (\text{B.18})$$

De cette force, seule la composante orthogonale à la chaîne est utilisée et appliquée aux images :

$$\vec{F}_i|_{\perp} = -\nabla V(\vec{R}_i)|_{\perp} = -\left(\nabla V(\vec{R}_i) - \nabla V(\vec{R}_i) \cdot \hat{\tau}_i\right) \quad (\text{B.19})$$

Le long de la chaîne d'images, c'est une force dite de ressort qui est appliquée, de façon à maintenir les images à peu près équidistantes. Les "ressorts" ont une constante de raideur k , et la force s'écrit :

$$\vec{F}_i^S = k \left(|\vec{R}_{i+1} - \vec{R}_i| - |\vec{R}_i - \vec{R}_{i-1}| \right) \cdot \hat{\tau}_i \quad (\text{B.20})$$

Annexe B. Méthodes de simulations atomistiques

La force totale utilisée par le calcul NEB et agissant sur une image s'écrit ainsi :

$$\vec{F}_i = \vec{F}_i^S - \nabla V(\vec{R}_i)|_{\perp} \quad (\text{B.21})$$

Lorsque cette force s'annule sur l'ensemble des images, alors la chaîne correspond au chemin d'énergie minimum.

B.5.2 L'*improved tangent*

Le calcul de la tangente tel que donné par l'Eq. B.17 utilise les images précédente et suivante pour faire une "moyenne" ; cette définition peut parfois poser problème. En effet elle peut mener à la formation de "décrochements" le long de la chaîne d'images : si la force le long de la chaîne devient grande devant la force perpendiculaire à la chaîne (c'est-à-dire si $F_i^S \gg \nabla V(\vec{R}_i)|_{\perp}$), alors les images précédente et suivante vont "compresser" l'image centrale, et faire fortement varier son énergie de façon artificielle.

L'*improved tangent* propose une autre définition [Henkelman et Jónsson 2000] : la tangente à une image donnée est calculée d'après cette image et l'image voisine la plus basse en énergie. La nouvelle tangente est alors définie comme :

$$\vec{\tau}_i = \begin{cases} \vec{\tau}_i^+ \Delta V_i^{max} + \vec{\tau}_i^- \Delta V_i^{min} & \text{si } V_{i+1} > V_{i-1} \\ \vec{\tau}_i^+ \Delta V_i^{min} + \vec{\tau}_i^- \Delta V_i^{max} & \text{si } V_{i+1} < V_{i-1} \end{cases} \quad (\text{B.22})$$

où :

$$\begin{aligned} \vec{\tau}_i^+ &= \vec{R}_{i+1} - \vec{R}_i \\ \vec{\tau}_i^- &= \vec{R}_i - \vec{R}_{i-1} \\ \Delta V_i^{max} &= \max(|V_{i+1} - V_i|, |V_{i-1} - V_i|) \\ \Delta V_i^{min} &= \min(|V_{i+1} - V_i|, |V_{i-1} - V_i|) \end{aligned} \quad (\text{B.23})$$

B.5.3 Le *climbing image*

Lorsque la convergence de la chaîne d'images est achevée, les images sont alignées le long du chemin d'énergie minimum; cependant rien ne garantit qu'une image se trouve bien au *sommet* de ce CEM, ce qui est nécessaire pour obtenir la configuration et l'énergie du point col. Le *climbing image* [Henkelman et al. 2000] consiste à retirer la force de ressort sur l'image la plus haute en énergie, et de lui appliquer le long de la chaîne l'opposée de la force dérivée du potentiel. De cette façon, cette image maximise son énergie le long de la chaîne en la minimisant dans les autres directions, ce qui lui fait atteindre le point de transition.

Annexe B. Méthodes de simulations atomistiques

Annexe C

Analyse des défauts

Dans le cadre de ce travail de thèse, un programme permettant l'analyse quantitative des défauts a été développé. Nous détaillons ici comment sont calculés le vecteur de Burgers, la position du cœur de la dislocation, ainsi que son extension. Ce code est entièrement développé sous la licence GNU General Public Licence [GPL 2007].

C.1 Principe du programme

C.1.1 Calcul des déplacements atomiques relatifs

Le calcul des déplacements relatifs se fait par comparaison entre un système cfc parfait de référence, et un système déformé, qui peut contenir une dislocation. On s'intéresse à une bande du cristal d'épaisseur dZ (Fig. C.1), ne contenant qu'un seul vecteur de translation élémentaire suivant la direction Z . Dans cette "tranche" d'épaisseur dZ , on cherche à déterminer si deux plans atomiques $\{111\}$ subissent un glissement l'un par rapport à l'autre.

Annexe C. Analyse des défauts

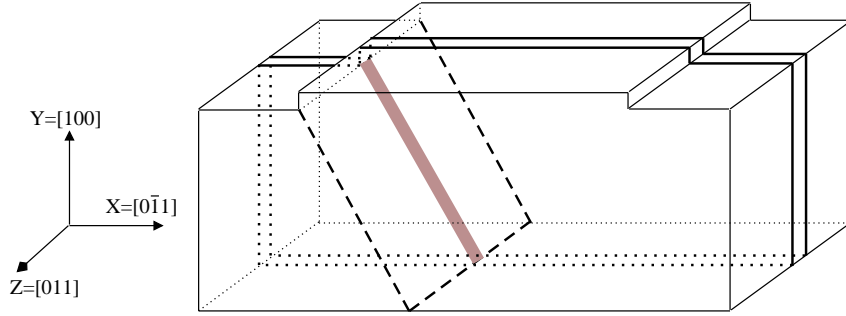


FIG. C.1 – La bande (marron) analysée par le programme correspond à l'intersection d'un plan $\{111\}$ (tirets gras) et d'une tranche de cristal d'épaisseur az (lignes continues grasses).

Pour cela, on compare les positions atomiques deux à deux dans cette "tranche" dZ (Fig. C.2). Dans le système parfait, on calcule leurs positions relatives \vec{r}_{ij}^0 ; dans le système déformé, on calcule les positions relatives \vec{r}_{ij}^1 pour les mêmes paires d'atomes. Les déplacements relatifs sont alors définis comme la différence des deux :

$$\vec{d}_{ij} = \vec{r}_{ij}^1 - \vec{r}_{ij}^0 \quad (\text{C.1})$$

S'il ne s'est rien produit dans le système, alors les \vec{d}_{ij} seront quasi-nuls (l'agitation thermique en dynamique moléculaire peut induire de très faibles déplacements); il est à noter que ces vecteurs \vec{d} ont des normes négligeables en cas de déformation élastique, ou de translation uniforme du système. Si en revanche une dislocation s'est formée, alors le vecteur de déplacement relatif prendra une valeur particulière.

Ce vecteur déplacement \vec{d} est alors projeté dans le plan de glissement $\{111\}$ le long des directions vis et coin, donnant les composantes d_v et d_c , respectivement. Puis chacune de ces composantes est normalisée par rapport à la composante correspondante d'une dislocation parfaite 60° , autrement dit on s'intéresse aux valeurs $d_v/b_v(60^\circ)$ et $d_c/b_c(60^\circ)$ (Fig. C.3).

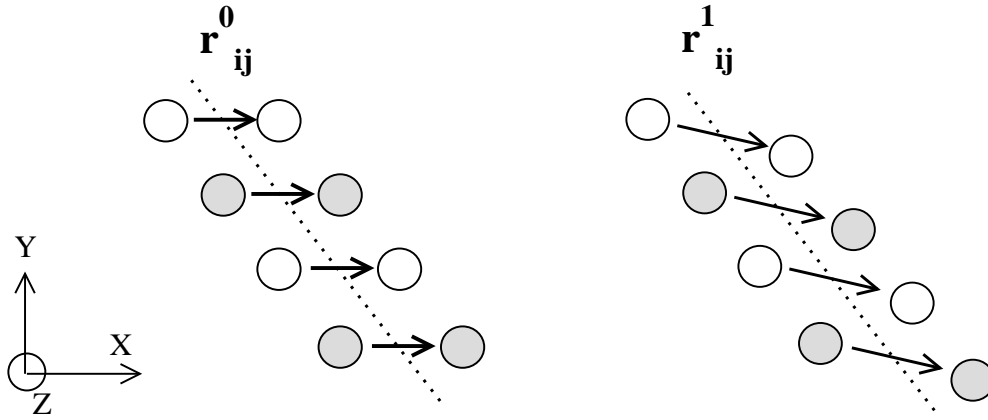


FIG. C.2 – Calcul des déplacements relatifs dans une tranche dZ d'un plan $\{111\}$. Les atomes en blanc sont dans le plan de la feuille, ceux en gris sont au-dessus ou en-dessous.
 À gauche : le système de référence, de structure cfc. Les positions relatives des atomes situés de part et d'autres d'un plan de glissement donné (pointillés) sont définies par des vecteurs \vec{r}_{ij}^0 .
 À droite : un système dans lequel les plans ont subi un glissement. Les nouveaux vecteurs de positions relatives sont les \vec{r}_{ij}^1 . La différence entre les deux vecteurs définit les déplacements relatifs des atomes : $\vec{d}_{ij} = \vec{r}_{ij}^1 - \vec{r}_{ij}^0$.

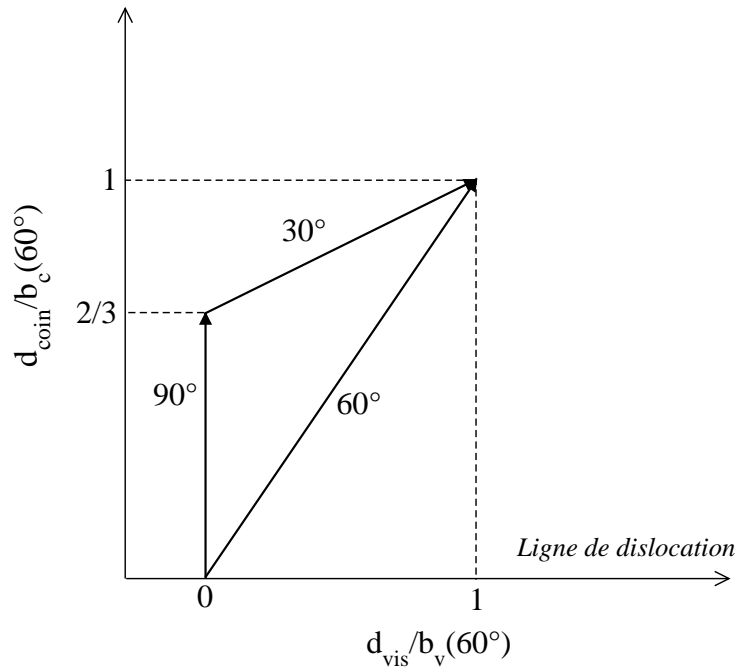


FIG. C.3 – Valeurs des déplacements atomiques relatifs vis et coin, normalisés aux composantes correspondantes d'une dislocation parfaite. Une partielle 90° aura ainsi une composante coin égale à $2/3$ et une vis nulle, tandis qu'une partielle 30° aura ces mêmes composantes égales à $1/3$ et 1 , respectivement.

Annexe C. Analyse des défauts

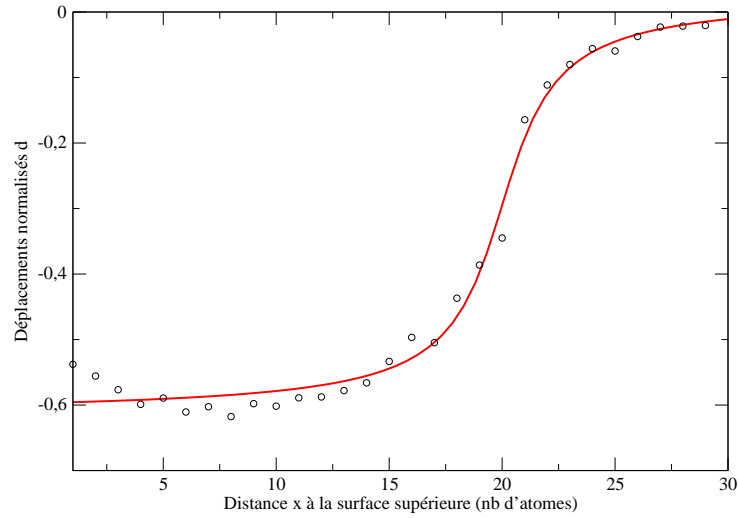


FIG. C.4 – Exemple d’ajustement des déplacements relatifs normalisés : les déplacements atomiques calculés par le programme (cercles) sont ajustés avec une fonction arctangente (courbe continue).

C.1.2 Ajustement analytique

En accord avec la théorie de l’élasticité, lorsque cela est possible les déplacements calculés le long de la direction coin sont ajustés avec une fonction arctangente de la forme :

$$d_c^{\text{fit}}(x) = a \arctan(bx + c) + d \quad (\text{C.2})$$

où x est la profondeur par rapport à la surface supérieure (Fig. C.4). Cet ajustement est réalisé par la méthode de moindres carrés. Un exemple d’ajustement, fait sur les déplacements relatifs dans un système réel à des temps différents, est montré Fig. III.7 (Chap. III).

La dérivée de la fonction d’ajustement est calculée :

$$\frac{\partial d_c^{\text{fit}}}{\partial x} = \frac{ab}{1 + (bx + c)^2} \quad (\text{C.3})$$

La position du cœur de la dislocation est définie comme le maximum de cette dérivée. L’extension de la dislocation, telle que discutée dans le Chap. V, est définie comme la

largeur à mi-hauteur de cette dérivée.

C.2 Application à l'analyse d'un plan $\{111\}$

Le calcul des déplacements relatifs tel que présenté plus haut est appliqué à toutes les tranches dZ d'un plan $\{111\}$. Un exemple de déplacements relatifs, calculés dans toutes les tranches dZ d'un plan de glissement, est donné Fig. III.3 (Chap. III); on reconnaît une dislocation partielle rectiligne 90° , la composante coin valant $2/3$ et la composante vis étant quasi-nulle.

Puisque la position du cœur de la dislocation est calculée pour chaque tranche dZ , les mettre bout à bout permet de tracer l'allure de la ligne de dislocation dans son plan de glissement $\{111\}$. Un exemple d'évolution de la ligne de dislocation à différents intervalles de temps est donné sur la Fig. III.8 (Chap. III).

Lors d'une simulation en dynamique moléculaire, les positions atomiques peuvent être sauvegardées à intervalles de temps réguliers. Les configurations ainsi obtenues peuvent être analysées de façon systématique par le programme, de sorte à obtenir l'évolution des déplacements relatifs dans le temps. Il est alors possible d'extraire la vitesse de la dislocation en fonction du temps, ou en fonction de la position de la dislocation dans le matériau.

Cette analyse récursive permet également de déterminer de façon relativement précise l'instant de nucléation. Dans le cas d'une partielle de Shockley, il est défini comme l'instant où le déplacement coin relatif des atomes de surface est égal à au moins la moitié de la norme du vecteur de Burgers d'une partielle 90° , autrement dit $1/3$ de la composante coin d'une parfaite 60° ; de plus la dislocation doit être stable, c'est-à-dire se propager dans la suite de la simulation, ceci afin de ne pas considérer les embryons de dislocation qui se forment et se rétractent en surface.

Annexe C. Analyse des défauts

Bibliographie

- [Albrecht et al. 1995] M. Albrecht, S. Christiansen, J. Michler, W. Dorsch, H. P. Strunk, P. O. Hansson, et E. Bauser, *App. Phys. Lett.* **67** (1995), 1232. [6](#)
- [Aslanides et Pontikis 1998a] A. Aslanides et V. Pontikis, *Philos. Mag. Lett.* **78** (1998), 377–383. [32](#), [89](#)
- [Aslanides et Pontikis 1998b] A. Aslanides et V. Pontikis, *Comp. Mat. Sc.* **10** (1998), 401–405. [32](#), [126](#)
- [Bei et al. 2008] H. Bei, Y. F. Gao, S. Shim, E. P. George, et G. M. Pharr, *Phys. Rev. B* **77** (2008), 060103. [11](#)
- [Beltz et Freund 1993] G. E. Beltz et L. B. Freund, *Phys. St. Sol.* **180** (1993), 303–313. [11](#), [12](#)
- [Beltz et Freund 1995] G. E. Beltz et L. B. Freund, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **356** (1995), 93–98. [11](#)
- [Berendsen et al. 1984] H. J. C. Berendsen, J. P. M. Postma, W. F. van Gunsteren, A. DiNola, et J. R. Haak, *J. Chem. Phys.* **81** (1984), 3684. [133](#)

Bibliographie

- [Bitzek et Gumbsch 2005] E. Bitzek et P. Gumbsch, *Mat. Sc. Eng. A* **400** (2005), 40–44. [16](#), [17](#)
- [Brochard et al. 1998] S. Brochard, P. Beauchamp, et J. Grilhé, *Philos. Mag. Lett.* **77** (1998), 125–134. [83](#)
- [Brochard et al. 2000a] S. Brochard, P. Beauchamp, et J. Grilhé, *Philos. Mag. A* **80** (2000), 503–524. [7](#), [13](#)
- [Brochard et al. 2000b] S. Brochard, P. Beauchamp, et J. Grilhé, *Phys. Rev. B* **61** (2000), 8707–8713. [7](#), [13](#), [58](#)
- [Brochard 1998] S. Brochard, Thèse, Université de Poitiers, 1998. [24](#), [25](#), [36](#), [58](#), [83](#)
- [Buehler et al. 2005] M. J. Buehler, A. Hartmaier, M. A. Duchaineai, F. F. Abraham, et H. Gao, *Acta Mech. Sin.* **21** (2005), 103–111. [2](#)
- [Bulatov et al. 1998] V. Bulatov, F. F. Abraham, L. Kubin, B. Devincre, et S. Yip, *Nature* **39** (1998), 669–672. [2](#)
- [Carrasco et al. 2004] E. Carrasco, O. Rodriguez de la Fuente, M. A. Gonzales, et J. M. Rojo, *Eur. Phys. J. B* **40** (2004), 421–426. [2](#)
- [Chen et al. 2003] M. Chen, E. Ma, K. J. Hemker, H. Sheng, Y. Wang, et X. Cheng, *Science* **300** (2003), 1275–1277. [19](#), [20](#), [114](#)
- [Cleri et al. 1997] F. Cleri, S. Yip, D. Wolf, et S. R. Phillpot, *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997), 1309–1312. [2](#)
- [Coulomb 1978] P. Coulomb, *J. Microsc. Spectrosc. Electron.* **3** (1978), 295–306. [32](#)
- [Dalla Torre et al. 1998] J. Dalla Torre, M. Djafari Rouhani, G. Landa, A. M. Rocher, R. Malek, et D. Esteve, *Thin Sol. Films* **336** (1998), 277–280. [7](#)
- [Edirisinghe et al. 1997] S. P. Edirisinghe, A. E. Staton-Bevan, et R. Grey, *J. Appl. Phys.* **82** (1997), 4870. [7](#), [60](#)

-
- [Ercolessi et Adams 1994] F. Ercolessi et J. B. Adams, *Europhys. Lett.* **26** (1994), 583–588. [56](#)
- [Ernst 1997] F. Ernst, *Mat. Sc. Eng. A* **233** (1997), 126–138. [2](#)
- [Frank 1950] F. G. Frank, dans *Symposium on Plastic Deformation of Crystalline Solids*, Carnegie Institute of Technology, Pittsburgh, 1950, p. 89. [11](#)
- [Gaillard et al. 2003] Y. Gaillard, C. Tromas, et J. Woïrgard, *Philos. Mag.* **83** (2003), 553–561. [2](#)
- [Gally et A. S. Argon 2001] B. J. Gally et A. S. A. S. Argon, *Philos. Mag. A* **81** (2001), 699–740. [2](#)
- [Gear 1971] C. W. Gear, *Numerical Initial Value Problems in Ordinary Differential Equations*, Prentice-Hall Inc., Englewood Cliffs, N.J., 1971. [37](#), [130](#)
- [GPL 2007] GPL, *GNU General Public Licence v.3*, <http://www.gnu.org/copyleft/gpl.html>, 2007. [139](#)
- [Grigorenko et al. 2005] A. N. Grigorenko, A. K. Geim, H. F. Gleeson, Y. Zhang, A. A. Firsov, I. Y. Khrushchev, et J. Petrovic, *Nature* **438** (2005), 335–338. [121](#), [124](#)
- [Henkelman et al. 2000] G. Henkelman, B. P. Uberuaga, et H. Jónsson, *J. Chem. Phys.* **113** (2000), 9901. [38](#), [137](#)
- [Henkelman et Jónsson 2000] G. Henkelman et H. Jónsson, *J. Chem. Phys.* **113** (2000), 9978. [38](#), [136](#)
- [Hirth et Evans 1986] J. P. Hirth et A. G. Evans, *J. appl. Phys.* **60** (1986), 2372–2376. [11](#)
- [Hirth et Lothe 1982] J. P. Hirth et J. Lothe, *Theory of dislocations (Second Edition)*, Krieger Publishing Company, 1982. [xi](#), [16](#), [17](#), [24](#), [84](#), [102](#), [105](#), [111](#)

Bibliographie

- [Hirth 2000] J. P. Hirth, *Acta Mater.* **48** (2000), 93–104. [11](#)
- [Jónsson et al. 1998] H. Jónsson, G. Mills, et K.W. Jacobsen, *Classical and Quantum Dynamics in Condensed Phase Simulations*, World Scientific, Singapore, 1998. [38](#), [134](#)
- [Kamat et Hirth 1990] S. V. Kamat et J. P. Hirth, *J. Appl. Phys.* **67** (1990), 6844–6850. [11](#)
- [Kelchner et al. 1998] C. L. Kelchner, S. J. Plimpton, et J. C. Hamilton, *Phys. Rev. B* **58** (1998), 11085. [42](#)
- [LAMMPS 2006] LAMMPS, *Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator*, <http://lammeps.sandia.gov/index.html>, 2006. [130](#)
- [Largeau et al. 2002] L. Largeau, G. Patriarche, et E. Le Bourhis, *J. Mater. Sci. Lett.* **21** (2002), 401–404. [2](#), [6](#)
- [Le Bourhis et al. 2001] E. Le Bourhis, L. Largeau, G. Patriarche, et J. P. Rivière, *J. Mater. Sci. Lett.* **20** (2001), 1361–1364. [2](#), [6](#)
- [Legros et al. 2008] M. Legros, G. Dehm, E. Arzt, et T. J. Balk, *Science* **319** (2008), 1646–1649. [123](#), [124](#)
- [Leibfried 1950] G. Leibfried, *Z. Phys.* **127** (1950), 344–356. [16](#)
- [Li et Xu 2006] C. Li et G. Xu, *Philos. Mag.* **86** (2006), 2957–2970. [8](#), [65](#), [69](#)
- [Li et Xu 2007] C. Li et G. Xu, *Eng. Anal. Bound. Elem.* **31** (2007), 443–450. [8](#)
- [Li 2003] J. Li, *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.* **11** (2003), 173–177. [42](#), [43](#)
- [Li 2007] J. Li, *MRS Bulletin* **32** (2007), 151–159. [2](#)
- [Liao et al. 2004] X. Z. Liao, S. G. Srinivasan, Y. H. Zhao, M. I. Baskes, Y. T. Zhu, F. Zhou, E. J. Lavernia, et H. F. Xu, *App. Phys. Lett.* **84** (2004), 3564–3566. [71](#)

-
- [Liu et al. 2002] W. C. Liu, S. Q. Shi, H. Huang, et C. H. Woo, *Comp. Mat. Sc.* **23** (2002), 155–165. [2](#)
- [Michler et al. 2007] J. Michler, K. Wasmer, S. Meier, F. Östlund, et K. Leifer, *App. Phys. Lett.* **90** (2007), 043123. [2](#), [3](#)
- [Mills et Stadelmann 1989] M. J. Mills et P. Stadelmann, *Philos. Mag. A* **60** (1989), 355–384. [32](#)
- [Ngan et Wen 2001] A. H. W. Ngan et M. Wen, *Phys. Rev. B* **87** (2001), 075505. [41](#)
- [Olmsted et al. 2005] D. L. Olmsted, L. G. Hector Jr., W. A. Curtin, et R. J. Clifton, *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.* **13** (2005), 371–388. [17](#), [103](#), [106](#), [108](#)
- [Patriarche et al. 2001] G. Patriarche, L. Largeau, et E. Le Bourhis, *Philos. Mag. Lett.* **81** (2001), 527–535. [2](#), [6](#), [7](#)
- [Pirouz et Ning 1995] P. Pirouz et X. J. Ning, *Inst. Phys. conf. ser.* **146** (1995), 69. [7](#), [20](#), [60](#), [110](#)
- [Pizzagalli et al. 2008] L. Pizzagalli, A. Pedersen, A. Arnaldsson, H. Jónsson, et P. Beauchamp, *Phys. Rev. B* **77** (2008), 064106. [41](#)
- [Plimpton 1995] S. J. Plimpton, *J. Comp. Phys.* **117** (1995), 1–19. [31](#)
- [Rasmussen et al. 1997] T. Rasmussen, K. W. Jacobsen, T. Leffers, O. B. Pedersen, S. G. Srinivasan, et H. Jónsson, *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997), 3676–3679. [41](#)
- [Rifkin 2004] J. Rifkin (éd.), *XMD Molecular Dynamics Program v.2.5.34*, *University of Connecticut*, <http://xmd.sourceforge.net/>, 2004. [31](#), [129](#)
- [Scandian et al. 1999] C. Scandian, H. Azzouzi, N. Maloufi, G. Michot, et A. George, *Phys. St. Sol.* **171** (1999), 67–82. [2](#)
- [Segall et al. 2006a] D. E. Segall, C. Li, et G. Xu, *Philos. Mag.* **86** (2006), 5083–5101. [8](#), [65](#), [69](#)

Bibliographie

- [Segall et al. 2006b] D. E. Segall, C. Li, et G. Xu, *Philos. Mag.* (2006). [7](#)
- [Spearot et al. 2005] D. E. Spearot, K. I. Jacob, et D. L. McDowell, *Acta Mater.* **53** (2005), 3579–3589. [2](#), [14](#)
- [Tadmor et Hai 2003] E. B. Tadmor et S. Hai, *J. Mech. Phys. Solids* **51** (2003), 765–793. [18](#), [19](#)
- [Tanguy et al. 2003] D. Tanguy, M. Mareschal, P. S. Lomdahl, T. C. Germann, B. L. Holian, et R. Ravelo, *Phys. Rev. B* **68** (2003), 144111. [15](#), [55](#)
- [Thomas 1968] J. F. Thomas, *Phys. Rev.* **175** (1968), 955–962. [34](#)
- [Tromas et al. 1999] C. Tromas, J. C. Girard, V. Audurier, et J. Woiregard, *J. Mater. Sci.* **34** (1999), 5337–5342. [2](#), [3](#)
- [Tromas et al. 2006] C. Tromas, Y. Gaillard, et J. Woiregard, *Philos. Mag.* **86** (2006), 5595–5606. [2](#)
- [Trushin et al. 2002] O. Trushin, E. Granato, S. C. Ying, J. M. Kosterlitz, T. Ala-Nissila, et P. Salo, *Braz. J. Phys.* **32** (2002), 369. [2](#)
- [Van Swygenhoven et al. 2002] H. Van Swygenhoven, P.M. Derlet, et A. Hasnaoui, *Phys. Rev. B* **66** (2002), 024101. [2](#)
- [Vegge et al. 2000] T. Vegge, T. Rasmussen, T. Leffers, O.B. Pedersen, et K.W. Jacobsen, *Phys. Rev. Lett.* **85** (2000), 3866–3869. [14](#), [41](#), [87](#)
- [Vegge et al. 2001] T. Vegge, T. Rasmussen, T. Leffers, O. B. Pedersen, et K. W. Jacobsen, *Philos. Mag. Lett.* **81** (2001), 137–144. [41](#)
- [Verlet 1967a] L. Verlet, *Phys. Rev.* **159** (1967). [37](#), [129](#)
- [Verlet 1967b] L. Verlet, *Phys. Rev.* **165** (1967). [37](#), [129](#)
- [Vítek 1968] V. Víték, *Philos. Mag.* **18** (1968), 773. [24](#)

- [Wu et Weatherly 2001] X. Wu et G. Weatherly, *Philos. Mag. A* **81** (2001), 1489–1506. [2](#), [6](#), [7](#), [19](#)
- [Yamakov et al. 2001] V. Yamakov, D. Wolf, M. Salazar, S. R. Phillpot, et H. Gleiter, *Acta Mater.* **49** (2001), 2713–2722. [2](#)
- [Yamakov et al. 2002] V. Yamakov, D. Wolf, S. R. Phillpot, A. K. Mukherjee, et H. Gleiter, *Nature Materials* **1** (2002), 45–49. [2](#)
- [Zener 1948] C. Zener, *Elasticity and Anelasticity of Metals*, University of Chicago Press, 1948. [34](#)
- [Zhou et al. 1997] S. J. Zhou, D. M. Beazley, P. S. Lombdahl, et B. L. Holian, *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997), 479–482. [2](#), [14](#)
- [Zhu et al. 2004] T. Zhu, J. Li, et S. Yip, *Phys. Rev. Lett.* **93** (2004), 025503. [2](#), [14](#), [15](#), [96](#)
- [Zhu et al. 2008] T. Zhu, J. Li, A. Samanta, A. Leach, et K. Gall, *Phys. Rev. Lett.* **100** (2008), 025502. [2](#), [6](#), [14](#), [57](#), [73](#), [75](#), [96](#), [97](#)
- [Zimmerman et al. 2001] J. A. Zimmerman, C. L. Kelchner, P. A. Klein, J. C. Hamilton, et S. M. Foiles, *Phys. Rev. Lett.* **87** (2001), 165507. [7](#)
- [Zou et Cockayne 1996] J. Zou et D. J. H. Cockayne, *J. Appl. Phys.* **79** (1996), 7632–7635. [11](#)