

MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE
UNIVERSITÉ MOULOUD MAMMERI DE TIZI-OUZOU

FACULTÉ DES SCIENCES
DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE

MÉMOIRE DE MASTER

SPÉCIALITÉ : Physique de la Matière de Basse Dimensionnalité

Présenté par
Louiza BENAMROUCHE

Sujet :

**Étude théorique de la réponse d'une structure nanométrique
défectueuse de nickel à une contrainte uni-axiale**

Travail dirigé par :
El Hocine MEGCHICHE

Soutenu le/09/2014

Résumé

L'objet de ce mémoire est l'étude théorique de la réponse d'une structure nanométrique défectueuse du nickel à une contrainte uni-axiale. Le choix de cette thématique est élaboré pour apporter des éléments d'information sur les évènements physiques initiant le processus plastique de la structure en question.

Nos calculs ont été effectués avec la dynamique moléculaire et l'approche EAM (chapitre 1). La méthode est validée après l'étude des différentes propriétés physiques de nickel en volume et en surface (chapitre 2).

Dans le troisième chapitre nous avons déterminé l'influence de la température, de la vitesse de déformation et de la présence de lacunes sur le comportement mécanique de la structure nanométrique.

Nous avons montré que la limite élastique et le module d'Young diminuent avec l'augmentation de la température.

Concernant l'effet de la vitesse de déformation, nous avons montré que la limite élastique augmente avec la vitesse de déformation.

Notre travail nous a montré que la présence de lacunes dans le nanofil, provoque une diminution de la limite élastique par rapport au nanofil parfait.

Remerciements

Ce présent travail a été réalisé au laboratoire de physique et chimie quantique sous la direction de monsieur Bouzar Hamid.

Je tiens à lui exprimer sa profonde gratitude pour sa disponibilité et ses conseils avisés.

Je remercie monsieur Lamrous Omar d'avoir accepté de présider mon jury de soutenance et d'avoir examiné mon travail.

Je remercie également monsieur Belhkir Abderahmane d'avoir accepté d'être membre de mon jury de soutenance et pour sa lecture soigneuse de présent travail.

Je remercie monsieur Megchiche El Hocine, d'avoir dirigé mes travaux de mémoire, et qui m'a aidé et soutenu tout au long de mon travail.

Un grand merci aux personnes du laboratoire que je ne peux pas tous nommer, pour leurs amitiés et les aides diverses.

Je ne peux pas oublier mes amis (Safia, Katia, Lamia, Boussad, Aomar, Malik, Khaled, Yacine), pour tous leurs amitiés et le partage des moments heureux tout au long de ce travail.

Enfin, je remercie toute ma famille, mes frères et mes sœurs, en particulier mon frère Saïd et ma sœur Fatiha, qui ont été toujours à mes côtés et qui m'ont soutenu pendant mes études.

Table des matières

Introduction générale	1
1 La dynamique moléculaire	3
1.1 Introduction	3
1.2 Méthode de la dynamique moléculaire	3
1.3 Principe de la dynamique moléculaire	4
1.4 Algorithme d'intégration des équations de mouvement	4
1.5 Les ensembles thermodynamiques	6
1.5.1 Ensemble NVE	6
1.5.2 Ensemble NVT	6
1.5.3 Ensemble NPT	7
1.6 Les conditions aux limites périodiques	7
1.7 Pas de temps	7
1.8 Modélisation des interactions	7
1.9 Les potentiels d'interaction	8
1.9.1 Potentiel de Lennard-Jones	8
1.9.2 Potentiel EAM	8
1.10 Code de simulation : LAMMPS	9
1.10.1 Structure du script d'entrée de LAMMPS	10
1.10.2 Les fichiers de sortie dans le code LAMMPS	10
1.10.3 Exemple d'un script LAMMPS	10
1.11 Conclusion	12
Bibliographie	13
2 Validation du potentiel EAM pour le nickel	15
2.1 Introduction	15
2.2 Étude du nickel en volume	16
2.2.1 Paramètre de maille d'équilibre	16
2.2.1.1 Phase stable : cubique à faces centrées	16

2.2.1.2	Phase cubique centrée (CC)	16
2.2.2	Stabilité de phase, CFC et CC	17
2.2.3	Énergie de cohésion	17
2.2.4	Tenseur de constantes élastiques	17
2.2.5	Module de compressibilité	19
2.3	Étude du nickel en surface	20
2.3.1	Description des surfaces étudiées	20
2.3.2	Calcul d'énergie de formation des surfaces	21
2.4	Conclusion	23
Bibliographie		25
3	Étude de la réponse d'une structure nanofil à base de nickel à une	
	contrainte uni-axiale	27
3.1	Introduction	27
3.2	Travaux théoriques	28
3.3	Techniques d'élaboration des nanofils	28
3.4	Démarche de calcul	29
3.5	Résultats et discussions	30
3.5.1	Influence de la température sur la contrainte limite de la zone élastique	30
3.5.2	Influence de la vitesse de déformation	32
3.5.3	Effet de la présence de lacunes	34
3.5.4	Effet de l'emplacement du défaut dans la structure nanofil	35
3.6	Conclusion	37
Bibliographie		39
Conclusion générale		41

Introduction générale

De part de leurs potentiels d'applications technologiques important, les structures nanométriques ont attiré l'attention de la communauté scientifique durant ces dernières décennies. Ces objets nanométriques présentent des intérêts dans de nombreux champs technologiques comme la microélectronique, nanotechnologie et énergie photovoltaïque. Les nanofils peuvent essentiellement se répartir en trois catégories suivant la matière de base qui les constitue, à savoir des nanofils de type :

- Métalliques à base de nickel, platine, l'or, ...etc ;
- Semi conducteur à base de silicium et/ou de germanium ;
- Diélectrique $\text{SiO}_2, \text{TiO}_2$.

On s'intéresse dans notre travail aux nanofils métalliques et plus exactement aux nanofils à base de nickel. Ces structures ont été prévus pour jouer un rôle important dans les futurs dispositifs électroniques et optiques.

De point de vue comportement mécanique, des études expérimentales récentes réalisées sur des nanofils de nickel ont mis en évidence des limites élastiques plusieurs fois supérieures en ordre de grandeur à celles constatées dans le cas du massif. Ceci a été mis en relation avec la proportion des défauts que présentent les deux structures (nanofil, le massif). Néanmoins le pouvoir de résolution des techniques expérimentales actuelles ne permet pas d'explorer les premiers événements responsables de l'avènement du processus plastique lors des essais ou durant l'usage de la structure nanofil. Par conséquent, des simulations seront un atout certain pour une interprétation plus rigoureuse des événements physiques initiant le processus plastique de la structure en question.

C'est à quoi nous proposons dans ce travail de mémoire, d'effectuer des simulations numériques sur des nanofils en tenant compte plus ou moins des conditions réelles d'usage de la structure. Nous avons particulièrement effectué des calculs pour voir principalement l'effet de la température, de la vitesse de déformation (fréquence de sollicitation) ainsi que l'effet de la présence de défauts.

Étant donné les échelles de l'espace à explorer et les ressources de calcul actuellement disponibles au niveau de notre laboratoire, la simulation d'un tel processus avec une approche *ab initio* est innenvisageable. Par conséquent nous avons opté pour une méthode de la dynamique

moléculaire moins gourmande en terme de ressources de calculs tout en assurant des résultats satisfaisants comparativement aux méthodes ab initio.

Ce mémoire est structuré comme suit :

Le premier chapitre est consacré à la présentation de la méthodologie employée dans notre travail, telle que les principes de la dynamique moléculaire ainsi que sa mise en œuvre dans le code de calcul LAMMPS. Par ailleurs un bref rappel sur le formalisme des potentiels EAM a été donné.

Nous présentons dans le deuxième chapitre, les résultats des différents tests que nous avons effectué pour valider le potentiel EAM utilisé pour les interactions dans le système.

Le potentiel validé nous servira dans le troisième chapitre à l'étude de la réponse d'une structure nanofil en tenant compte de différents paramètres tels que : la température, vitesse de déformation et la présence des défauts.

En fin, dans la conclusion générale, nous résumerons les principaux résultats obtenus dans ce travail.

La dynamique moléculaire

1.1 Introduction

Malgré les progrès récents réalisés dans le domaine de recherche, l'échelle atomique reste encore difficilement accessible expérimentalement dans des nombreux domaines par exemple l'optique, l'électronique et la plasticité des matériaux. Cependant les simulations à l'échelle atomique et notamment, la dynamique moléculaire constituent alors un outil d'investigation très précieux.

Dans ce mémoire, nous étudions théoriquement la réponse d'une structure nanométrique défectueuse de nickel à une contrainte uni-axiale. Dans ce cadre, la méthode de la dynamique moléculaire nous a semblé l'approche la plus adaptée car elle donne accès à une portion significative de la trajectoire de phase de laquelle il est possible d'extraire les propriétés structurales et dynamiques souhaitées.

Ce chapitre est consacré d'une part à la présentation de base de la méthode de la dynamique moléculaire ainsi qu'à sa mise en œuvre dans le cadre du code parallèle LAMMPS et d'autre part à l'exposé du formalisme du potentiels de type "Embedded Atom Method"(EAM) employé dans ce travail.

1.2 Méthode de la dynamique moléculaire

La dynamique moléculaire (DM) est une technique de simulation sur ordinateur qui constitue, au coté de l'expérience, un outil de compréhension de la matière et des matériaux fondés sur la mise en œuvre des forces inter-atomiques. Elle permet de suivre l'évolution temporelle d'un système de N atomes par l'intégration des équations du mouvement classique, en utilisant les lois Newtoniennes de la mécanique classique.

1.3 Principe de la dynamique moléculaire

La dynamique moléculaire consiste à simuler les mouvements des particules (atomes ou molécules) en calculant leurs déplacements au cours du temps à l'aide des lois de la mécanique classique Newtonienne. Cette technique est très utilisée pour simuler un certain nombre des propriétés des métaux, solides, liquides et gaz à savoir les propriétés thermodynamiques (pression, température et énergie) et les caractéristiques physiques (structures, propriétés élastiques,...).

Soit un système de N particules (atomes), ce système est défini par la position dans l'espace de chacun de ses atomes. Chaque atome est considéré comme une masse ponctuelle. A un instant t , on considère un atome i quelconque à la position r_t . Le but de la dynamique moléculaire est de calculer la position $r_{t+\Delta t}$ à l'instant $t + \Delta t$ de l'atome i à partir d'une position initiale préalablement connue. Les équations de la mécanique classique permettent d'établir des relations aux deux instants t et $t + \Delta t$, le calcul de base est simple et s'appuie sur l'intégration numérique de la seconde loi de Newton pour décrire les trajectoires atomiques au cours du temps :

$$\vec{F}_i = m_i \vec{a}_i \quad (1.1)$$

avec m_i la masse de l'atome i , \vec{a}_i son accélération et \vec{F}_i la force totale agissant sur l'atome i .

Nous décrivons ci-dessous les principales étapes de la méthode de la dynamique moléculaire :

- Les positions et les vitesses initiales des atomes doivent être spécifiées à l'instant t_0 pour initier l'algorithme d'intégration de l'équation de Newton.
- La première étape consiste à calculer la force totale \vec{F}_i qui agit sur chaque atome du système. Cette force peut résulter de différentes contributions (force externe, force d'interaction atomique, etc...). Dans le cas d'un système atomique, en absence des forces extérieures, la force totale est obtenue en dérivant la fonction énergie potentielle U qui dépend uniquement de la position des atomes \vec{r}_i avec ($i = 1, \dots, N$).

$$\vec{F}_i = -\vec{grad}U(\vec{r}_i)$$

- Il convient ensuite de résoudre les équations de mouvements équation (1.1) pour chaque atome en utilisant un algorithme d'intégration adapté par exemple l'algorithme de Verlet [1] ou l'algorithme de Leap-Frop [2]. Il faut pour cela considérer la conservation de l'énergie aussi bien à des temps courtes qu'à des temps longs.
- Les nouvelles positions sont alors obtenues pour chaque pas de temps.
- Les propriétés du système sont alors calculées et sauvegardées (pression, température, énergie, etc...).

1.4 Algorithme d'intégration des équations de mouvement

La résolution des équations classiques du mouvement pour un système de N particules (en interaction) ne peut se faire que numériquement en utilisant une méthode de différence finie

temporelle. Ainsi la position r_i de chacune des particules du système à l'instant $t + \Delta t$ est définie à partir de la position et de ses dérivées successives à l'instant t au moyen de développement de Taylor à partir de l'équation suivante :

$$r_i(t + \Delta t) = r_i(t) + \frac{dr_i(t)}{dt} \Delta t + \frac{1}{2!} \frac{d^2 r_i(t)}{dt^2} \Delta t^2 + \dots + \frac{1}{n!} \frac{d^n r_i(t)}{dt^n} \Delta t^n \quad (1.2)$$

Généralement, la contribution des termes d'ordres élevés est négligeable, ce qui permet de tronquer le développement après quelques termes pour simplifier l'algorithme. La façon de tronquer et de recombinaison des termes du développement donne lieu à des méthodes spécifiques. Parmi ces méthodes les plus utilisées en dynamique moléculaire, on peut citer les algorithmes de types Verlet [1] qui ont été développés par Swope et al [3] à partir de l'algorithme de Verlet origine [4]. Il se présente sous la forme suivante :

$$r_n(t + \Delta t) = r_n(t) + v_n(t) \Delta t + \frac{F_n}{2m} (\Delta t)^2 + \frac{d^3 r_n}{dt^3} (\Delta t)^3 + \varepsilon ((\Delta t)^4) \quad (1.3)$$

Et de manière similaire

$$r_n(t - \Delta t) = r_n(t) - v_n(t) \Delta t + \frac{F_n}{2m} (\Delta t)^2 - \frac{d^3 r_n}{dt^3} (\Delta t)^3 + \varepsilon ((\Delta t)^4) \quad (1.4)$$

En sommant ces deux équations, on obtient :

$$r_n(t + \Delta t) + r_n(t - \Delta t) = 2r_n(t) + \frac{F_n}{m} (\Delta t)^2 + \varepsilon ((\Delta t)^4) \quad (1.5)$$

Le calcul de la nouvelle position est effectué avec une précision de l'ordre de $(\Delta t)^4$. Les vitesses sont déterminées de la manière suivante :

$$v_n(t) = \frac{r_n(t + \Delta t) - r_n(t - \Delta t)}{2\Delta t} + \varepsilon ((\Delta t)^2) \quad (1.6)$$

La qualité d'une simulation de dynamique moléculaire est liée à la qualité de l'algorithme utilisée. Il faut signaler qu'il existe d'autres algorithmes. Citons par exemple l'algorithme "Leap-frog" [2] (algorithme saute-mouton) qui consiste à calculer les vitesses pour des intervalles du temps demi-entiers et les positions sont obtenues pour des intervalles du temps entiers. On définit les vitesses pour les temps $t + \frac{\Delta t}{2}$ et $t - \frac{\Delta t}{2}$ par les équations (1.7) et (1.8) suivantes :

$$v(t + \frac{\Delta t}{2}) = \frac{r(t + \Delta t) - r(t)}{\Delta t} \quad (1.7)$$

$$v(t - \frac{\Delta t}{2}) = \frac{r(t) - r(t - \Delta t)}{\Delta t} \quad (1.8)$$

On obtient :

$$r(t + \Delta t) = r(t) + v(t + \frac{\Delta t}{2})\Delta t \quad (1.9)$$

Et de manière similaire :

$$r(t - \Delta t) = r(t) - v(t + \frac{\Delta t}{2})\Delta t \quad (1.10)$$

En utilisant l'équation (1.4), on obtient la relation suivante :

$$v(t + \frac{\Delta t}{2}) = v(t - \frac{\Delta t}{2}) + \frac{f(t)}{m}\Delta t + \varepsilon((\Delta t)^3) \quad (1.11)$$

Cet algorithme est identique à l'algorithme de Verlet [1] en ce qui concerne le calcul des trajectoires (les valeurs des vitesses aux temps demi-entiers n'apparaissent que comme les intermédiaires de calcul). Il peut être différents pour le calcul des grandeurs thermodynamiques car la moyenne de l'énergie potentielle peut être calculée aux temps entiers (elle fait intervenir les positions).

1.5 Les ensembles thermodynamiques

Un système peut être isolé ou peut échanger de l'énergie avec un autre système. Nous décrivons par la suite le cas d'un système isolé et celui en contact avec un thermostat.

1.5.1 Ensemble NVE

Dans une simulation de type dynamique moléculaire, l'énergie totale E est conservée : l'ensemble décrit par les simulations est l'ensemble micro-canonique (N, V, E). Ce système est isolé : pas d'échange de matière et de chaleur avec l'environnement extérieur.

1.5.2 Ensemble NVT

Le système décrit dans l'ensemble canonique (N, V, T) peut échanger de l'énergie sous forme de chaleur avec un thermostat. Notons que le système (N, V, T + thermostat) est décrit dans un ensemble (N, V, E).

Pour travailler dans cet ensemble (N, V, T) trois grandes méthodes sont utilisées à savoir le scaling des vitesses, le thermostat d'Andersen et le thermostat de Nosé-Hoover.

Dans le scaling des vitesses, on calcule l'énergie cinétique du système E_c .

Pour le thermostat d'Andersen [5], le système est lié avec un thermostat qui laisse la température inchangée durant la simulation.

La troisième méthode est celle du thermostat de Nosé-Hoover [6].

Dans notre travail, nous avons travaillé avec l'ensemble (N, V, T) et pour réaliser cet ensemble nous avons utilisé la méthode de thermostat de [Nosé-Hoover](#).

1.5.3 Ensemble NPT

Dans l'ensemble isotherme-isobare(N, P, T) et en utilisant la méthode de Nosé-Hoover on peut rajouté le volume de la boite comme un autre degrés de liberté [7].

1.6 Les conditions aux limites périodiques

Afin de modéliser un système physique réaliste, il est important de bien préciser les conditions aux limites, c'est a dire préciser la nature des interactions entre les particules aux bords de la boite de simulation. Selon la nature de système physique que l'on veut modéliser, on peut décider que les atomes au bord sont fixes, ou qu'ils réfléchissent parfaitement sur les parois. Mais pour des solides ou des métaux aussi petits, ces effets de surfaces sont importants.

Et afin d'éliminer ces effets de surfaces, on utilise des conditions aux limites périodiques. Celles-ci consistent à imaginer que la boite de simulation est entourée de copies d'elles même. Lorsqu'un atome sort de la boite origine par une des faces, l'image de cet atome entre dans la boite par la face opposée. Cela permet de garder le nombre de particules constants dans la boite, la masse et l'énergie sont conservées au cours de la simulation [8].

1.7 Pas de temps

C'est un facteur très important dans une simulation de type dynamique moléculaire. Lorsque le pas de temps est trop petit, bien que l'on se rapproche de la solution exacte des équations différentielles, mais au même temps, les ressources de calculs nécessaires à la simulation deviennent importantes. Dans notre travail nous avons utilisé des pas du temps de l'ordre de $\Delta t = 10^{-15}s$.

1.8 Modélisation des interactions

La cohésion de la matière résulte des liaisons physiques qui agissent au sein du système. Ces liaisons proviennent des forces interatomiques où intermoléculaire qui agissent sur des atomes distinctes. Suivant la nature des éléments présent dans le système, ces liaisons physiques peuvent s'étendre sur plusieurs distances interatomiques. Pour prendre en compte toutes ces particularités ainsi que l'effet d'un champ externe éventuel, la modélisation des interactions passe en générale par une écriture de la fonction énergie potentielle sous la forme suivante :

$$U(r^N) = u_0(\rho) + \sum_{i_1}^N u(r_{i_1}) + \frac{1}{2!} \sum_{i_1 \neq i_2}^N u_2(r_{i_1}, r_{i_2}) + \frac{1}{3!} \sum_{i_1 \neq i_2 \neq i_3}^N u_3(r_{i_1 i_2}, r_{i_2 i_3}, r_{i_1 i_3}) + \dots \quad (1.12)$$

Le terme $u_0(\rho)$ décrit le comportement du gaz d'électrons dans les systèmes métalliques, il ne dépend que de la densité. Le deuxième terme représente le champ de force externe. Les autres

termes représentent les interactions à trois corps ou plus. Mais souvent un potentiel à deux corps suffit pour représenter la cohésion dans la matière.

1.9 Les potentiels d'interaction

Le choix de type du potentiel d'interaction entre les atomes qui constituent le système est difficile dans une simulation de type dynamique moléculaire. Pour connaître la position et l'évolution de chaque particule, il est nécessaire de connaître la forme de ce potentiel. On cherche à modéliser l'interaction entre les atomes constituant le système. Nous décrivons deux types de potentiels : le potentiel modèle de Lennard -Jones [9] et le potentiel EAM [10].

1.9.1 Potentiel de Lennard-Jones

Le potentiel de Lennard-Jones [9] est un simple potentiel à deux corps qui peut modéliser avec exactitude les gaz rares [11]. Il a été largement utilisé pour les systèmes covalents et métalliques. Cependant, les résultats sont mal définis car le potentiel de Lennard-Jones [9] ne tient pas compte de l'environnement des liaisons. En effet il ne différencie pas entre les liaisons simples, doubles et triples. Sa formulation est donnée dans l'équation (1.13).

$$\phi_{ij}(r) = \sum_i \sum_{j \neq i} 4\varepsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^6 \right] \quad (1.13)$$

avec ε la profondeur du puits du potentiel, σ est la distance pour laquelle l'énergie d'interaction est nulle, et r_{ij} la distance entre les atomes i et j . Le choix des paramètres ε et σ peut permettre de simuler un type de matériau en particulier. Dans le cas d'une étude qualitative d'un phénomène, le choix des paramètres ε et σ n'a pas de justification physique, mais leur flexibilité permet de simuler l'interaction de différents matériaux. La Figure 1.1 montre l'allure du potentiel de Lennard-Jones.

L'attraction à grande distance est due aux forces de Van der Waals et la répulsion à courte distance résulte du chevauchement des nuages électroniques.

1.9.2 Potentiel EAM

Au début, les systèmes métalliques ont été modélisés avec les potentiels simples à deux corps. Toutefois, ces potentiels sont limités pour reproduire la liaison métallique où existe une forte dépendance du potentiel avec l'environnement.

Divers approches ont été suggérées pour décrire les interactions atomiques dans les métaux ; deux catégories de potentiel peuvent alors être employées. La première utilise la théorie des liaisons fortes [12] pour décrire les propriétés des métaux de transition qui dépend essentiellement de la largeur moyenne de la densité d'états des électrons d de valence. La deuxième catégorie, est dérivée de la méthode de l'atome entouré (Embedded Atom Method) [10].

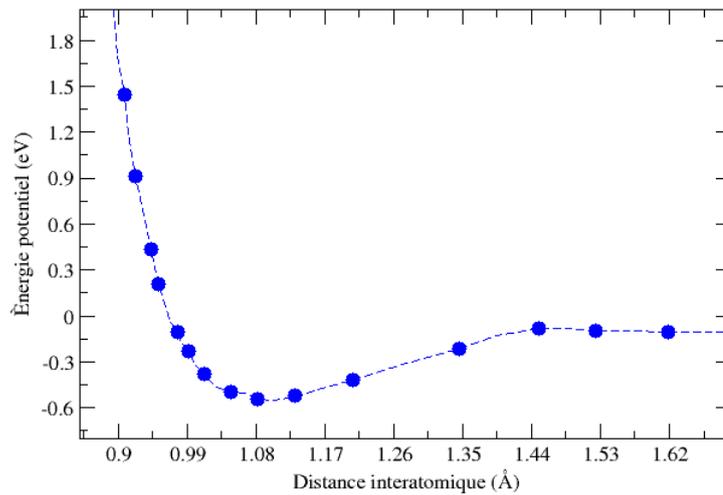


Figure 1.1: L'allure du potentiel de Lennard-Jones

Le potentiel interatomique employé dans notre travail [13] est issu de la méthode de l'atome entouré (EAM, Embedded AtomMethod) [10]. depuis son introduction par Daw et Baskes [14], Voter [15], il a été développé pour modéliser les systèmes métalliques. L'avantage d'une telle approche est que ce potentiel reste analytique et qu'il permet en plus de reproduire les propriétés en volume et en surface des métaux (CFC)(Ni, Al, Cu, Ag) [16].

Cette méthode a été largement utilisée dans différents domaines, par exemple l'étude des problèmes incluant les phénomènes de relaxation de surface, pour décrire les liaisons métalliques à travers les électrons de conduction délocalisés et aussi pour simuler les propriétés thermodynamiques des métaux de transition de structure cubique centrée (CC) Mishin et al [17].

EAM est une méthode semi-empirique basée sur la théorie de la densité fonctionnelle (EMT : Effective Medium Theory où EAM : Embedded Atom Methode). Dans ce modèle, l'énergie totale E_{tot} d'un système est donnée par :

$$E_{tot} = \sum_i E_i = \sum_i F_i(\rho_{h,i}) + \frac{1}{2} \sum_i \sum_j \phi_{ij}(r_{ij}) \quad (1.14)$$

Avec $F_i(\rho_{h,i})$ est une fonction qui permet de prendre en compte l'environnement de l'atome i . $\rho_{h,i} = \sum_{i \neq j} \rho_j(r_{ij})$ est la contribution à la densité électronique de l'atome i dans le site totale h , et ϕ_{ij} est un potentiel d'interaction de paires entre les atomes i et j séparés par une distance r_{ij} .

1.10 Code de simulation : LAMMPS

Le code LAMMPS (Large-squale Atomic / Molecular Massively Parallel Simulator) a été développé depuis les années 1990. Il est distribué gratuitement et actuellement largement utilisé pour les systèmes atomiques, et métalliques. En générale, le code LAMMPS est fondé sur une intégration des équations Newtoniennes du mouvement pour l'ensemble des atomes et des

molécules. La version actuelle du code LAMMPS est écrite en langage *C++* et est "open source". Les programmeurs peuvent utiliser les commandes déjà intégrées dans la bibliothèque où développer les caractéristiques selon leurs objectifs. Plusieurs informations peuvent être trouvées sur le site de LAMMPS¹.

1.10.1 Structure du script d'entrée de LAMMPS

Un script d'entrée pour un calcul avec le code LAMMPS se compose d'une succession de commandes qui peuvent inclure des boucles. Ce script se décompose essentiellement en quatre parties :

- **Partie initialisation**

Dans cette partie, on déclare tous les paramètres initiaux de la simulation comme le type d'atome ainsi que sa masse, la taille de la boîte de la simulation, les unités à adopter et beaucoup d'autres paramètres qui seront utiles et nécessaires pour l'obtention des résultats désirés.

- **Définition de la boîte de simulation**

Dans cette partie on génère des atomes dans la boîte de simulation soit par les commandes `create_box`, `create_atome`, soit à partir d'un fichier de positions initiales créé extérieurement.

- **Procédure de réalisation de la simulation**

Cette étape est réservée pour certains paramètres comme le choix des ensembles thermodynamiques (NVE, NVT), le pas du temps, les propriétés physiques à calculer durant la simulation, etc...

- **Réalisation**

La simulation de dynamique moléculaire est réalisée par la commande `run`. La minimisation d'énergie est effectuée par la commande `minimize`.

1.10.2 Les fichiers de sortie dans le code LAMMPS

Les sorties d'une simulation de type dynamique moléculaire utilisant le code LAMMPS, sont données dans des fichiers de sorties. Il existe quatre types de fichiers de sortie en LAMMPS : le fichier `dump` (contient les configurations du système par intervalle du temps), les données thermodynamiques (température, la pression, le volume, l'énergie totale,...), les quantités spécifiées par l'utilisateur et le fichier de redémarrage.

1.10.3 Exemple d'un script LAMMPS

- **Optimisation du paramètre de maille de nickel avec le potentiel Ni_Lu3.eam**

1. <http://lammps.sandia.gov>

```
****Initialisation****
units metal
atom_style atomic
boundary p p p
atom_modify map array
atom_modify sort 0 0.0
variable m equal 58.6934
variable a0 equal 3.52
print "a0 = ${a0}"
print "mass = ${m}"
lattice fcc ${a0}
****Définition de la boîte de simulation****
region BOX block 0 1 0 1 0 1
create_box 2 BOX
create_atoms 1 box
**** Réglage et procédure de réalisation de la simulation ****
mass 1 58.6934
pair_style eam
pair_coeff * * Ni_u3.eam
thermo_style custom step temp pe enthalpy etotal press vol
dump 4a all custom 1 dump.myforce.* id type x y z vx vy vz fx fy fz
#variable i loop 100
#label loop
#change_box all x scale 1.01
#change_box all y scale 1.01
#change_box all z scale 1.01
variable latt equal lx/4
variable EPOT equal pe
variable NP equal 256
variable ELAT equal pe/${NP}
variable VOL equal vol
variable rho equal ${NP}/${VOL}
variable AtomVol equal ${VOL}/${NP}
****Realisation****
min_style cg
minimize 0.0 1e-25 1000 1000
shell echo ${latt} ${rho} ${AtomVol} ${EPOT} ${ELAT} >> out.dat
run 10
```

1.11 Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre la méthodologie qui nous servira tout au long de ce travail. Il s'agit d'une simulation par dynamique moléculaire ainsi qu'à sa mise en œuvre dans le cadre du code LAMMPS utilisé dans notre travail et d'autre part à l'exposé du formalisme de potentiels de type "Embedded Atom Method"(EAM). La description de chaque paramètre était essentielle à la justification des choix effectués.

Bibliographie

- [1] L. Verlet, Phys. Rev.159,98(1968).
- [2] D. Brawn and J.H. R. Clarke, Mol. Phys.51,1243(1984).
- [3] W.C. Swope, H. C. Andersen, P. H. Berens and K.R. Wilson. pp.637,649(1982).
- [4] L. Verlet, Phys. Rev.201, 201(1967).
- [5] H. C. Andersen, J. Chem. Phys. 72 , 2384 (1980).
- [6] S. Nosé, Mol. Phys., 52 , 255 (1984).
- [7] M. Parrinello, A. Rahman, Phys. Rev. Lett. 45 , 1196 (1980).
- [8] J.M. Haile. New York, (1997).
- [9] J.E. Lennard-Jones. Proc. R. Soc. London,106, 463(1924).
- [10] S.M. Daw and M.I. Baskes. Phys. Rev.1285, 1288(1983).
- [11] J.E. Jones. Proc. R. Soc. London, 463, 477(1924).
- [12] C. Mottel, thèse de doctorat, université de méditerranée, Marseille(1997).
- [13] Ni fonction(universal), SM Foiles et al, PRB,33,7983 (1986).
- [14] M. S. Daw and M.I. Baskes, Rev.B29, 6443(1984).
- [15] A.F. Voter, Intermetallic Compounds, Vol.1, Chap.4,p.77(1994).
- [16] S.M. Foiles, M.I. Baskes,M.S. Daw,phys.Rev,B33,798, 3(1986).
- [17] Y. Mishin and D.A. Papaconstantopoulos.Phys. Rev.B65, 224,114(2002).

Validation du potentiel EAM pour le nickel

2.1 Introduction

Une étude des propriétés physiques et mécaniques nous a semblé nécessaire pour valider le potentiel EAM. Nous présentons dans ce chapitre les résultats des différents tests que nous avons effectués. Nous avons d'abord mené des calculs sur le nickel massif dans la phase cubique à faces centrées (CFC) schématisée dans la Figure 2.1 puis dans la phase cubique centrée. Pour chaque phase, différentes propriétés physiques ont été calculées à savoir le paramètre de maille et l'énergie de cohésion. Nous présenterons aussi les résultats de nos calculs effectués sur le nickel en surface dans la phase cubique à faces centrées. Il s'agit principalement des calculs visant à déterminer les énergies de surfaces de différentes orientations cristallographiques.

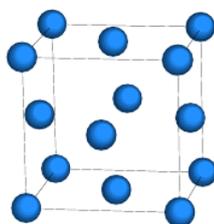


Figure 2.1: Vue de la structure cristalline de nickel (structure CFC).

2.2 Étude du nickel en volume

2.2.1 Paramètre de maille d'équilibre

2.2.1.1 Phase stable : cubique à faces centrées

Nous avons calculé l'énergie totale par atome du nickel en fonction du paramètre de maille, la courbe sur la Figure 2.2 montre l'évolution de l'énergie totale en fonction de paramètre de maille. L'énergie est minimale pour un paramètre de l'ordre de 3.524 Å. Par rapport à l'expérience 3.52 Å [1], l'erreur commise est de l'ordre de 0.1 %. Notre résultat est aussi en bon accord avec la théorie 3.522 Å [2].

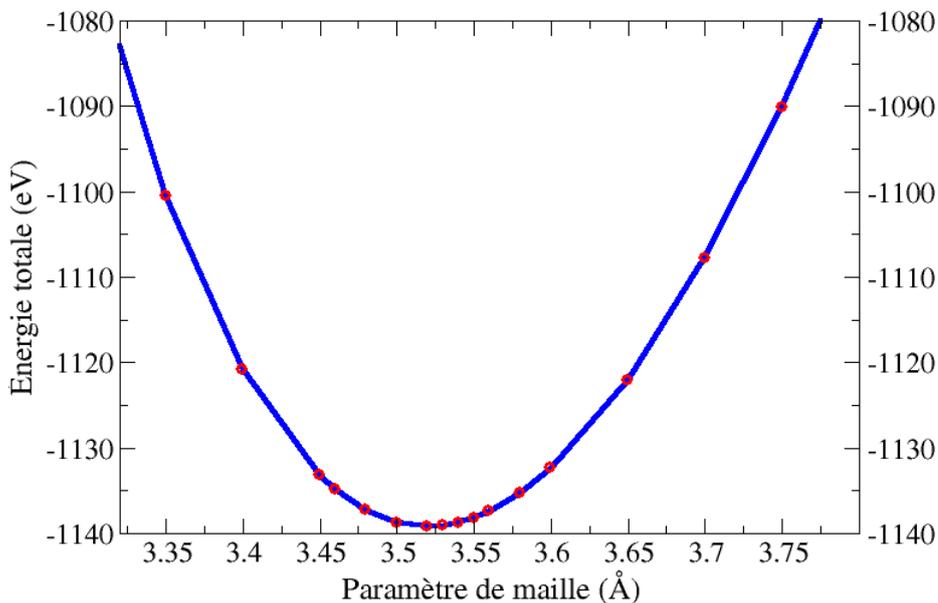


Figure 2.2: L'évolution de l'énergie totale de Ni volumique dans la phase CFC en fonction de paramètre de maille.

2.2.1.2 Phase cubique centrée (CC)

Dans ce cas, la procédure suivie est la même que celle suivie dans le cas d'un cubique centré. On a calculé l'énergie totale en fonction du paramètre de maille. Le paramètre de maille calculé est de l'ordre de 2.8 Å, ce résultat est en bon accord avec les résultats théoriques de Moruzzi et al (2.80 Å) [3], et expérimentaux de Tang et al (2.827 Å) [4]. On a une erreur de l'ordre de moins de 1% avec l'expérience [4].

2.2.2 Stabilité de phase, CFC et CC

Afin de déterminer la phase la plus stable des deux phases citées ci-haut (cfc et cc), une comparaison entre les courbes représentatives de l'évolution de l'énergie totale en fonction du paramètre de maille nous a parue nécessaire. La variation de l'énergie totale du système en fonction du paramètre de maille dans les deux phases est représentée dans la Figure 2.3. Nous pouvons tout de suite remarquer que le système possédant la plus basse énergie correspond à la phase cfc, est celui le plus stable.

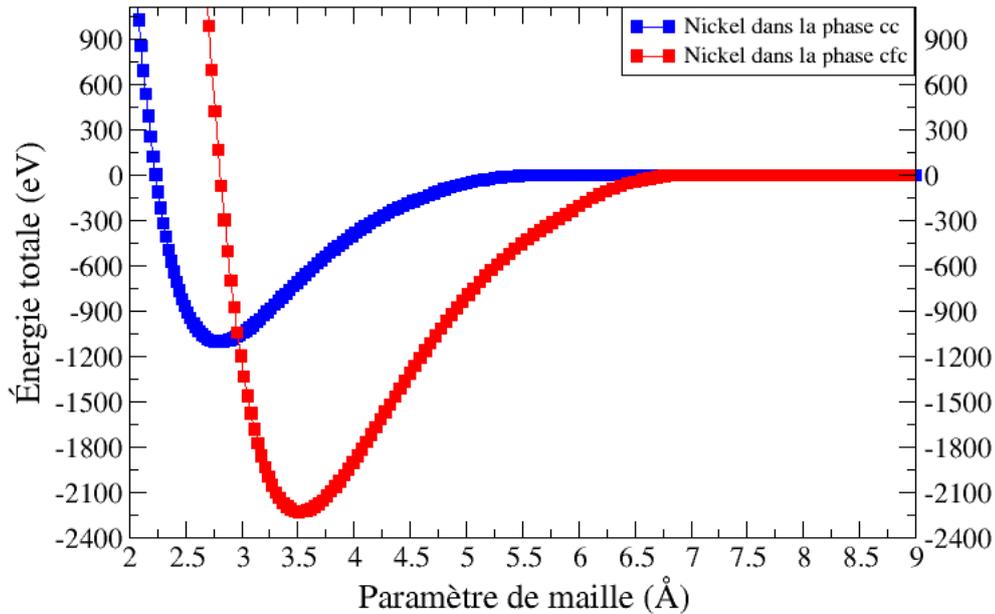


Figure 2.3: Stabilité des phases CFC et CC.

2.2.3 Énergie de cohésion

L'énergie de cohésion est définie comme étant l'énergie nécessaire pour dissocier un solide comportant N atomes, en N atomes libres. Son expression est donnée dans l'équation suivante :

$$E_{coh}(Ni) = \frac{E_{tot}(Ni)}{N} \quad (2.1)$$

avec $E_{tot}(Ni)$ est l'énergie totale du système en volume contenant N atomes du nickel. L'énergie de cohésion calculée est de l'ordre de -4.45 eV . Par rapport à l'expérience (-4.44 eV) [1], l'erreur commise est de l'ordre de 0.22%.

2.2.4 Tenseur de constantes élastiques

Un autre type de propriétés tel que, les propriétés élastiques (constantes élastiques) nous a semblé nécessaire pour la validation du potentiel EAM. A cet objectif nous avons évalué les constantes élastiques de volume à $0K$.

Dans un solide la contrainte s'exprime en fonction de la déformation selon la loi de Hooke qui est donnée dans l'équation suivante :

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl}\varepsilon_{ij} \text{ avec } (i, j, k, l = 1, 2, 3) \quad (2.2)$$

avec σ_{ij} est le tenseur de contraintes, C_{ijkl} est le tenseur de constantes élastiques caractérisant le matériaux et ε_{ij} est le tenseur de déformations. En raison des symétries du système, ces tenseurs de rang 2 (3×3) peuvent être réduit en tenseur de rang 1 (6×1), de même le tenseur de constantes élastiques de rang 4 ($3 \times 3 \times 3 \times 3$) se réduit en un tenseur de rang 2 (6×6). L'équation (2.3) décrit la loi de Hooke sous forme de tenseur.

$$\begin{bmatrix} \sigma_{11} \\ \sigma_{22} \\ \sigma_{33} \\ \sigma_{44} \\ \sigma_{55} \\ \sigma_{66} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} C_{1111} & C_{1122} & C_{1133} & C_{1123} & C_{1131} & C_{1112} \\ C_{2211} & C_{2222} & C_{2233} & C_{2223} & C_{2231} & C_{2212} \\ C_{3311} & C_{3322} & C_{3333} & C_{3323} & C_{3331} & C_{3312} \\ C_{2311} & C_{2322} & C_{2333} & C_{2323} & C_{2331} & C_{2312} \\ C_{3111} & C_{3122} & C_{3133} & C_{3123} & C_{3131} & C_{3112} \\ C_{1211} & C_{1222} & C_{1233} & C_{1223} & C_{1231} & C_{1212} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} \\ \varepsilon_{22} \\ \varepsilon_{33} \\ \varepsilon_{44} \\ \varepsilon_{55} \\ \varepsilon_{66} \end{bmatrix} \quad (2.3)$$

avec la notation de Voigt qui autorise la conversation suivante :

$$11 = 1, 22 = 2, 33 = 3, 23 = 4, 31 = 5, 12 = 6.$$

Avec cette notation l'équation (2.2) se réécrit sous la nouvelle forme suivante :

$$\sigma_i = C_{ij}\varepsilon_j \quad (2.4)$$

Soit :

$$\begin{bmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & C_{14} & C_{15} & C_{16} \\ C_{21} & C_{22} & C_{23} & C_{24} & C_{25} & C_{26} \\ C_{31} & C_{32} & C_{33} & C_{34} & C_{35} & C_{36} \\ C_{41} & C_{42} & C_{43} & C_{44} & C_{45} & C_{46} \\ C_{51} & C_{52} & C_{53} & C_{54} & C_{55} & C_{56} \\ C_{61} & C_{62} & C_{63} & C_{64} & C_{65} & C_{66} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \\ \varepsilon_3 \\ \varepsilon_4 \\ \varepsilon_5 \\ \varepsilon_6 \end{bmatrix} \quad (2.5)$$

Dans la pratique, à cause de la symétrie des cristaux, un grand nombre des coefficients C_{ij} sont nuls ou égaux entre eux, ce qui simplifie les calculs pratiques. D'autre part, on peut montrer que $C_{ij} = C_{ji}$, en raison de cela, il n'existe au maximum que 21 coefficients indépendants.

On peut encore réduire ce nombre par un choix des axes qui définissent les composantes des contraintes et des déformations, en tenant compte des axes de symétrie du cristal. Dans notre cas, nous travaillons sur le nickel sous la phase stable cubique à faces centrées. Dans ce cas précis le nombre minimale de coefficients non nuls qu'on peut obtenir est trois à savoir (C_{11} , C_{12} , C_{44}), ce qui nous conduit à écrire l'expression suivante :

$$C_{ij} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{bmatrix} \quad (2.6)$$

Dans le but de calculer les constantes élastiques du nickel, nous avons utilisé la théorie de l'élasticité reliant la densité d'énergie de déformation au tenseur de contraintes. Pour cela l'énergie totale E_{bulk}^{tot} peut s'écrire comme la somme de l'énergie potentielle E_{bulk}^0 du système sans déformation et l'énergie élastique du solide lorsqu'il est soumis à une déformation :

$$E_{bulk}^{tot} = E_{bulk}^0 + V_{bulk} \int \sigma_i d\varepsilon_i \quad (2.7)$$

avec V_{bulk} est le volume du système.

Nous utilisons la loi de Hooke, et en tenant compte de toutes les simplifications considérées au paravent, l'équation (2.7) peut se mettre sous la forme suivante :

$$E_{bulk}^{tot} = E_{bulk}^0 + \frac{V_{bulk}}{2} \varepsilon_i C_{ij} \varepsilon_j \quad (2.8)$$

soit :

$$E_{bulk}^{tot} = E_{bulk}^0 + \frac{V_{bulk}}{2} \left[C_{11} (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2 + \varepsilon_3^2) + 2C_{12} (\varepsilon_1 \varepsilon_2 + \varepsilon_2 \varepsilon_3 + \varepsilon_1 \varepsilon_3) \right] \quad (2.9)$$

Les constantes élastiques sont calculées, en imposant une déformation au nickel. Les valeurs des constantes élastiques sont obtenues en considérons la dérivée seconde de l'énergie par rapport à la déformation [5] à partir de l'équation ci-dessous :

$$C_{ij} = \frac{1}{V_{bulk}} \frac{\partial^2 E_{bulk}^{tot}}{\partial \varepsilon_i \partial \varepsilon_j} \quad (2.10)$$

Nous obtenons avec le potentiel EAM, 233.273 Gpa pour C_{11} , 154.287 Gpa pour C_{12} et 127.636 Gpa pour C_{44} . Nos résultats sont en bon accord avec les résultats de la littérature $C_{11} = 232$ Gpa, $C_{12} = 135$ Gpa [6] et $C_{44} = 124.8$ Gpa [10].

2.2.5 Module de compressibilité

Le module de compressibilité est donné par :

$$B = -V \frac{dP}{dV} = -V \frac{d^2 E_{tot}}{dV^2} \quad (2.11)$$

Cette grandeur exprime le taux de variation de la pression P dans le système en fonction du volume. L'équation (2.11) peut s'écrire en fonction des constantes élastiques C_{11} et C_{12} sous une nouvelle forme :

$$B = \frac{1}{3}(C_{11} + 2C_{12}) \quad (2.12)$$

A partir des valeurs trouvées pour les termes C_{11} et C_{12} et en utilisant l'équation (2.12), nous obtenons pour B une valeur de 180.61 *Gpa*. Comparativement à l'expérience (186 *Gpa*) [7], on a une erreur relative de moins de 2.9%.

Nous donnons dans le Tableau 2.1 les résultats calculés pour les différentes propriétés physiques et élastiques, nous avons également comparé nos résultats avec d'autres travaux expérimentaux et théoriques.

Grandeur physique	Ce travail	Autres travaux	Références
densité volumique (g/mole.m ³)	8.823		
densité volumique expérimentale (g/mole.m ³)		8.96	[1]
Énergie de formation de lacune (eV)	1.63	2.28	[6]
Énergie de formation de lacune expérimentale (eV)		1.60	[8]
Constante élastique C_{11} (Gpa)	233.27	232	[6]
Constante élastique expérimentale C_{11} (Gpa)		246.5	[9]
Constante élastique C_{12} (Gpa)	154.287	135	[6]
Constante élastique expérimentale C_{12} (Gpa)		147.3	[9]
Constante élastique C_{44} (Gpa)	127.636	124.8	[10]
Constante élastique expérimentale C_{44} (Gpa)		124.7	[9]
Module de compressibilité (Gpa)	180.615	167.3	[6]
Module de compressibilité expérimental (Gpa)		186	[7]

Tableau 2.1 : Propriétés structurales et énergétiques optimisées du nickel massif dans la phase cubique à faces centrées

2.3 Étude du nickel en surface

Dans cette partie nous nous sommes intéressés à l'étude du nickel en surface. Nous avons calculé l'énergie des surfaces d'orientations cristallographiques (100), (110) et (111).

2.3.1 Description des surfaces étudiées

Dans la plupart des études expérimentales ou théoriques, les surfaces étudiées sont celles de faible indice de Miller, c'est à dire celles de plus basse énergie, à savoir les surfaces d'orientations

crystallographiques (100), (110) et (111). Chaque surface est très différente du point de vue géométrique. Nous présentons dans la Figure 2.4 les surfaces d'orientations crystallographiques (100), (110), (111).

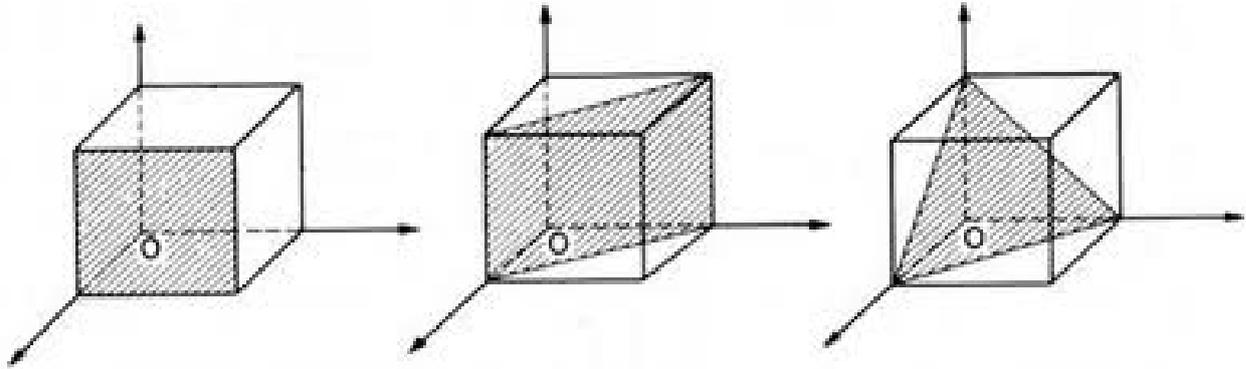


Figure 2.4: Position des différents plans formant les surfaces (100), (110) et (111) respectivement dans une maille CFC.

Nous avons calculé les énergies de formation de surface pour ces trois orientations crystallographiques dans le nickel. Nous regarderons également la variation de l'énergie de surface en fonction du nombre de plans atomiques contenus dans le substrat.

2.3.2 Calcul d'énergie de formation des surfaces

Dans nos simulations, nous avons tout d'abord créé un monocristal parfait de nickel à 0 K, avec des conditions périodiques dans les trois directions. L'énergie de formation de surface est définie comme étant l'énergie d'excès par rapport à l'énergie de volume pour créer une surface. Une méthode classique pour l'obtenir est d'évaluer l'énergie libre d'un système possédant des surfaces et de lui soustraire l'énergie libre d'un système équivalent sans surfaces. Le calcul de ces énergies de surface est donné par la relation de Gibbs [11] :

$$E_{surf} = \frac{E_{slab} - E_{bulk}}{2A} \quad (2.13)$$

où E_{slab} est l'énergie du système avec surface, E_{bulk} est celle du système massif et A l'aire de la surface de la cellule de calcul. Le facteur $\frac{1}{2}$ provient du fait que le système présente deux surfaces. Dans un premier temps, nous avons évalué la variation de l'énergie de formation de surface en fonction du nombre de plans atomiques contenus dans chaque Slab avec EAM. Pour éviter toute interaction fictive entre les surfaces, nous avons créé un vide d d'une distance de 20 Å correspondant à plus de cinq fois le paramètre de maille (voir Figure 2.5). Les courbes présentées dans la (Figure 2.6) montrent l'évolution de l'énergie de surface en fonction du nombre de plans atomiques pour les orientations crystallographiques (100), (110) et (111).

Pour les trois orientations crystallographiques nous observons une convergence de l'énergie de surface vers une valeur stable. Cette convergence est obtenue à partir de 8 plans atomiques

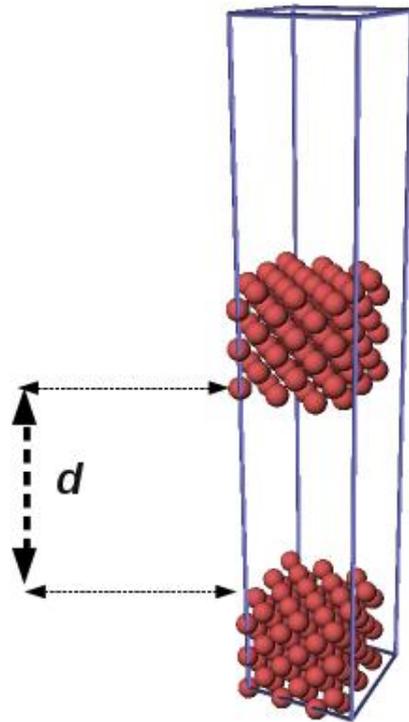


Figure 2.5: Vide entre deux slabs dans la surface (100) .

pour l'orientation (100), 06 plans atomiques pour l'orientation (110) et 9 plans atomiques pour l'orientation (111). Les énergies de formation de surface convergées sont 1.588 J/m^2 , 1.716 J/m^2 et 1.43 J/m^2 pour les orientations (100), (110) et (111), respectivement. Le Tableau 2.2 nous montre les énergies de surface calculées et comparées avec d'autres énergies issues des travaux théoriques et expérimentaux.

Types de surface	Nos résultats	Autres travaux		Expérience	Référence
		VASP	ReaxFF		
Surface [100](J/m ²)	1.59	1.62 [6]	1.97 [6]	1.88	[9]
Surface [110](J/m ²)	1.72	1.92 [6]	2.14 [6]	2.05	[9]
Surface [111](J/m ²)	1.43	1.60 [6]	1.84 [6]	1.63	[9]

Tableau 2.2 : Énergie de surface calculée avec EAM comparée avec d'autres travaux

Nous constatons que les résultats obtenus avec EAM sont en bon accord avec les résultats théoriques effectués par Y. Mishin et al [9]. Nous remarquons également que l'orientation (110) a la plus grande énergie de surface.

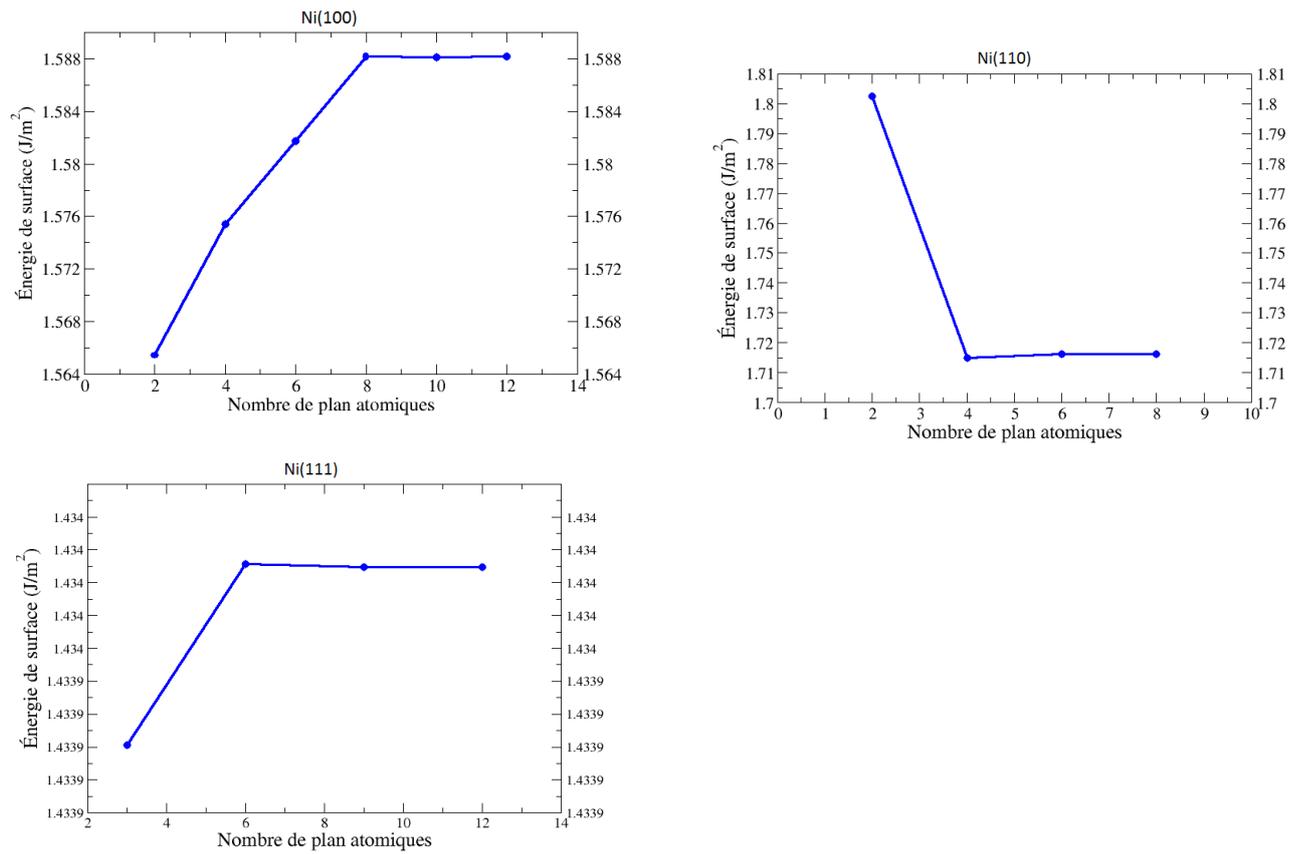


Figure 2.6: L'évolution de l'énergie de surface en fonction du nombre de plans atomiques pour les orientations (100), (110) et (111) respectivement.

2.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les différentes études que nous avons mené pour valider l'utilisation du potentiel EAM choisi dans le cadre de ce travail. A cet effet, nous avons calculé le paramètre de maille d'équilibre, l'énergie de cohésion, l'énergie de formation de lacune, les constantes élastiques ainsi que le module de compressibilité. Nous avons remarqué que toutes ces grandeurs physiques calculées avec le potentiel EAM sont en bon accord avec les résultats expérimentaux et avec d'autres calculs ab initio. Tous ces résultats nous ont permis de valider ce potentiel pour la suite de notre étude.

Bibliographie

- [1] C. Kittel, Introduction to Solid State Physics, 7th ed. (Wiley- New York, (1996)).
- [2] E. H. Megchiche, thèse de doctorat, Université de Toulouse, France, (2007).
- [3] V. L. Moruzzi, P. M. Marcus, K. Schwarz, and P. Mohn, Phys. Rev., B 34, 1784 (1986).
- [4] W. X. Tang et al., J. Magn. Magn. Mater. 240, 404 (2002).
- [5] S. Garruchet, O. Politano, P. Arnoux, V. Vignal, Appl. Surf. Sci. 256 , 5968(2010).
- [6] O. Assowe Dabar, thèse de doctorat , université de Bourgogne. 2012.
- [7] Handbook of Chemistry and Physics, (D.R. Lide (CRC Press, Boca Raton), 1995).
- [8] Y. Mishin, Act. Mat. 58,1471(2004).
- [9] Y. Mishin, D. Farkas, Phys. Rev. B, 59, 5(1999) .
- [10] N.Q.Lam, and L.Dagens.J.Phys.F :Met.Phys.,16,1373(1986).
- [11] J. W. Gibbs, Collected Works, Longmans Green, London, Vol I (1961).
- [12] A. F. Voter, S. P. Chen, Mat. Res. Soc. 175 (1987).

Étude de la réponse d'une structure nanofil à base de nickel à une contrainte uni-axiale

3.1 Introduction

Cette étude entreprise dans ce mémoire est à notre connaissance, la première à être réalisée sur une structure nanofil défectueuse. Elle a fait suite à des travaux expérimentaux assez récents réalisés sur une structure nanofil de nickel de section de 250 nm et soumise à une déformation de fréquence de $10^{-3}s^{-1}$ [1]. Il a été montré que ces nanostructures présentaient des limites élastiques supérieures à celles trouvées pour le volume (voir Figure 3.1). Cette constatation a été mise en relation avec les concentrations des défauts dans les deux structures. Pour se rapprocher au mieux des conditions expérimentales nous avons décidé de simuler une telle structure en tenant compte de la température, de la fréquence de la contrainte appliquée et enfin de la présence des défauts dans la structure nanofil. C'est à quoi dans cette partie de notre travail, nous avons menés des calculs :

1. Dans différentes conditions de températures ;
2. En appliquant différentes vitesses de déformation ;
3. En présence de défauts à savoir des multi-lacunes dans la structure nanofil.

Dans ce qui suit, nous allons présenter les résultats des études concernant ces trois paramètres.

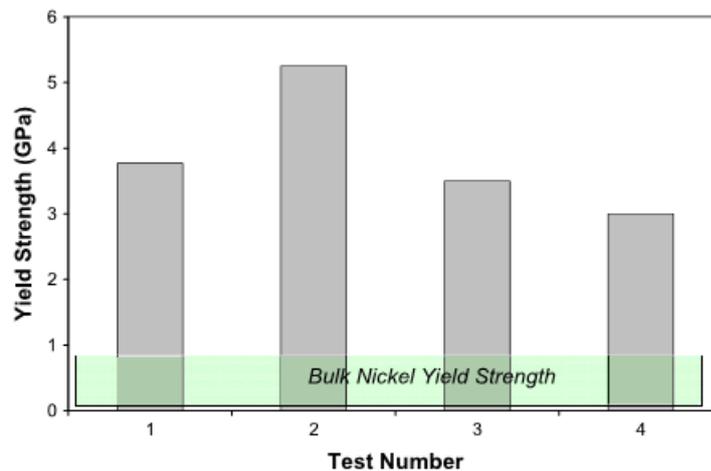


Figure 3.1: La limite élastique de la structure nanofil comparée à celle du massif

3.2 Travaux théoriques

Beaucoup de travaux théoriques ont été faits concernant l'effet de la température et de la vitesse de déformation sur le comportement mécanique des structures nanométriques lors d'application de contrainte. Ces travaux ont été basés sur des simulations de types dynamique moléculaire. Parmi eux, on peut citer les travaux de H.A. Wu [2], qui a étudié l'effet de la température sur le comportement mécanique d'une structure nanométrique de nickel soumis à une contrainte uni-axiale. Ces travaux ont montré que la limite élastique diminue quant la température augmente.

Des travaux également ont été effectués pour voir l'effet de la vitesse de déformation sur le nanofil de nickel lors d'application d'une contrainte. Parmi eux on peut citer Ram Mohand and Yu Liang [3]. Ils ont montré que la limite élastique augmente en augmentant la vitesse de déformation et que le module d'Young est indépendant de la vitesse de déformation.

Par des simulations de dynamiques moléculaire, Yu-Hua Wen et al [4], ont montré que la limite élastique peut atteindre 11%, et la structure atomique reste essentiellement inchangée. Ces travaux ont montraient aussi que pour des vitesses de déformation inférieures à $5 \cdot 10^9 s^{-1}$, le nanofil conserve sa structure cristalline et pour des vitesses de déformation comprises entre $5 \cdot 10^{10}$ et $8 \cdot 10^{10} s^{-1}$, une partie de nanofil se transforme d'un cristal CFC à un état amorphe et l'autre partie conserve sa forme initiale. Pour des vitesses supérieures à $8 \cdot 10^{10} s^{-1}$, le nanofil transforme complètement à un état amorphe au delà de la limite élastique.

3.3 Techniques d'élaboration des nanofils

Les nanofils sont des structures qui ont un diamètre de l'ordre de quelques nanomètres, mais d'une longueur quelconque. Ces structures nanométriques présentent des propriétés électro-niques, optiques, chimiques, mécaniques et thermiques différentes de celles en volume.

Il existe deux techniques de fabrication des nanofils. Nous présentons les deux grandes approches utilisées pour leurs réalisation que sont les méthodes Top-down et Botton-up.

1. L'approche Top-down, consiste à prendre un objet de grande taille, à le tailler pour obtenir un objet de plus petite taille, c'est la voie descendante. Retenue par l'industrie de micro-électronique, procédée par cycles de dépôt et de gravure pour fabriquer des composants électroniques.
2. L'approche "Bottom-up", utilise un précurseur moléculaire, c'est la voie ascendante. Partant de briques de base atomiques, les approches "Bottom-up" peuvent permettre de fabriquer des composants de taille nanométrique plus petits que l'approche "Top-down" et à moindre cout.

3.4 Démarche de calcul

Les calculs menés au cours de notre travail ont été réalisés dans le cadre de la dynamique moléculaire telle qu'elle est implémentée dans le code Lammmps¹. L'intégration des équations de mouvement est réalisée avec le schéma de Verlet-vitesse (voir [Chapitre 1](#)). Pour ajuster la température de notre système dans différentes températures, nous avons imposé un thermostat de type Nose-Hoover (voir [Chapitre 1](#)). Pour chaque température considérée et avant le début du processus de la déformation, nous avons procédé à une relaxation du système pendant un temps de simulation (T_s) égal à 50 ps avec un pas d'intégration des équations de mouvement $\Delta t = 1 fs$. La section du nanofil prise en compte dans ce travail est de forme carrée de cotés $11 a_0$. La hauteur (l) du nanofil est fixé à $30 a_0$, a_0 étant le paramètre de maille. La structure nanofil est uniquement périodique suivant la direction de la déformation (010). Nous donnons un exemple de la représentation schématique d'une structure nanofil de section $11 a_0$ et de longueur $30 a_0$ Figure 3.2. L'analyse de la réponse de la structure nanofil dans les différentes conditions de simulation est réalisée en considérant la loi de Hooke (voir [Chapitre 2](#)). Dans le domaine élastique celle-ci est linéaire :

$$\sigma = E.\varepsilon \quad (3.1)$$

Où σ , E et ε font référence à la contrainte, au module d'élasticité et à la déformation respectivement. Ce dernier paramètre est définis comme suit :

$$\varepsilon = \frac{l_y - l_{y0}}{l_{y0}} \quad (3.2)$$

Ici, l_y est la longueur instantanée et l_{y0} la longueur initiale du nanofil. La déformation de la structure nanofil est réalisée avec différentes vitesses ($\dot{\varepsilon}$). Celle-ci est définie comme étant :

$$\dot{\varepsilon} = \frac{\varepsilon}{T_s.\Delta t}$$

Pour mieux visualiser le développement des défauts au niveau de notre système durant nos simulations, nous avons utilisé le critère de centrosymétrie implémenté dans le logiciel graphique Ovito [5] ainsi que Paraview [6] qui est un logiciel d'analyse des défauts étendus tels que les

1. <http://lammmps.sandia.gov>

fautes d'empilements et les dislocations.

Les interactions inter-atomiques dans la structure nanofil sont prises en compte en considérant le potentiel EAM mis au point par Foiles et al. Comme nous venons de le voir dans le chapitre précédent, comparativement à l'expérience, ce potentiel d'interaction donne de bons résultats concernant l'énergie de cohésion, paramètre de maille, énergie de formation d'une lacune, énergie de formation des fautes d'empilements et les énergies des surfaces (100, 110 et 111) du nickel massif.

3.5 Résultats et discussions

3.5.1 Influence de la température sur la contrainte limite de la zone élastique

Pour étudier l'influence de la température, nous avons mené des calculs sur des structures nanofils dans des conditions de températures allant de 300 K à 900 K. La Figure 3.3 montre l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation pour un nanofil de section $11 a_0$ avec une vitesse de déformation de $1.67 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$. Nos résultats sont en accord avec des travaux théoriques antérieurs à cette étude [2]. Ils montrent une décroissance de la déformation ε_l et de la contrainte $\sigma_l(yy)$ limite dans la zone élastique de la structure avec la croissance de la température. En effet, en passant de 300 K à 900 K, la déformation correspondante à la limite élastique passe de 0.098 à 0.074, soit des contraintes appliquées d'environ 9.47 Gpa et 4.09 Gpa, respectivement. Comme nous pouvons aussi remarquer sur la Figure 3.3, dans la zone élastique la pente de la droite décrivant l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation n'est pas la même : elle diminue avec l'augmentation de la température. En d'autre terme, ceci nous renseigne sur la diminution du module d'élasticité E en fonction de l'augmentation de la température. La variation du module E et de la contrainte limite $\sigma_l(yy)$ en fonction de la température est reproduite dans la Figure 3.4.

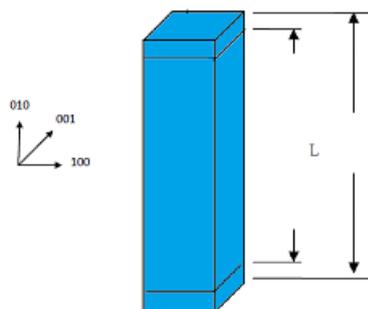


Figure 3.2: Configuration schématique d'une structure nanofil

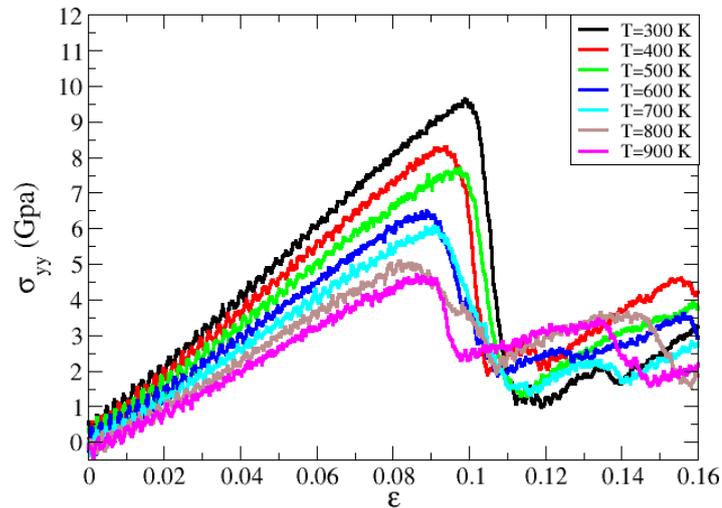


Figure 3.3: Contrainte-déformation pour différentes températures

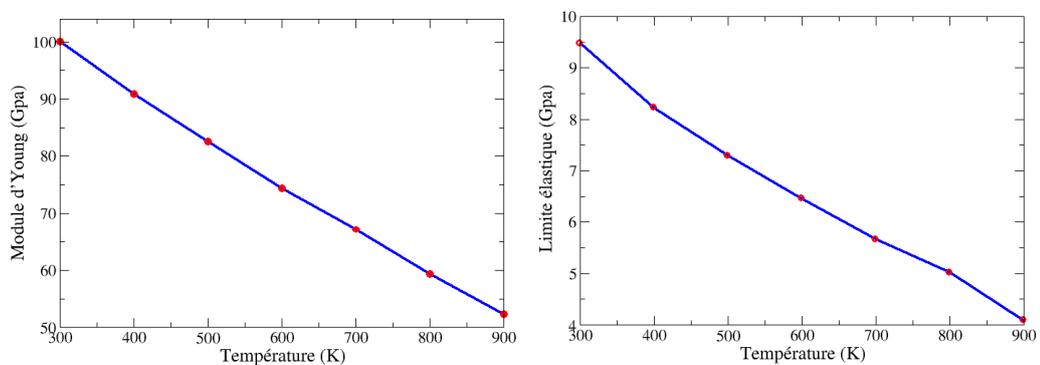


Figure 3.4: Variation du module d'Young et de la limite élastique en fonction de la température

En utilisant le critère de centrosymétrie, nous avons représenté dans la Figure 3.5, la population des défauts dans la structure nanofil pour deux températures 300 K et 900 K, et pour une déformation $\varepsilon = 0.12$. Par soucis de clarté dans la visualisation de ces défauts, nous avons reproduit dans la Figure 3.6 cette même population des défauts en utilisant cette fois ci le logiciel de visualisation Paraview [6]. Comme nous pouvons le constater sur la Figure 3.6, l'étendu des défauts tels que les fautes d'empilements et les dislocations dans la structure augmente avec la croissance de la température de simulation. En effet, on trouve 17 dislocations primaires et 42 fautes d'empilements pour $T=900\text{K}$ et 6 dislocations, 9 fautes d'empilements pour $T=300\text{K}$. Ceci peut être expliqué par le fait que l'augmentation de la température induit un accroissement des longueurs de liaison Ni-Ni et en retour une diminution de la barrière énergétique relative à la nucléation de ce type de défauts. Celles-ci se trouvent alors dépassées par les fortes agitations thermiques du système et donc à l'avènement du processus plastique.

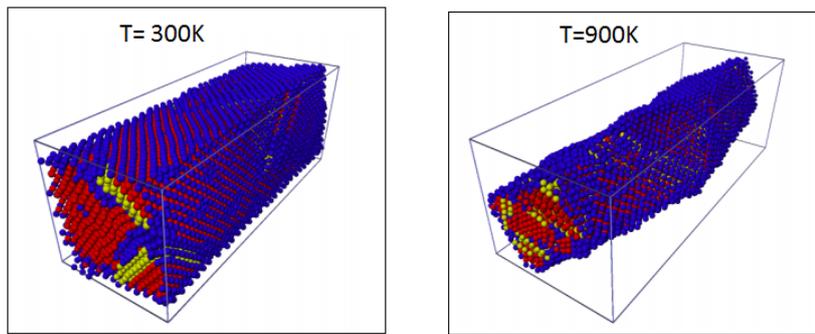


Figure 3.5: Populations des défauts dans le nanofil pour $T=300K$ et $T=900K$

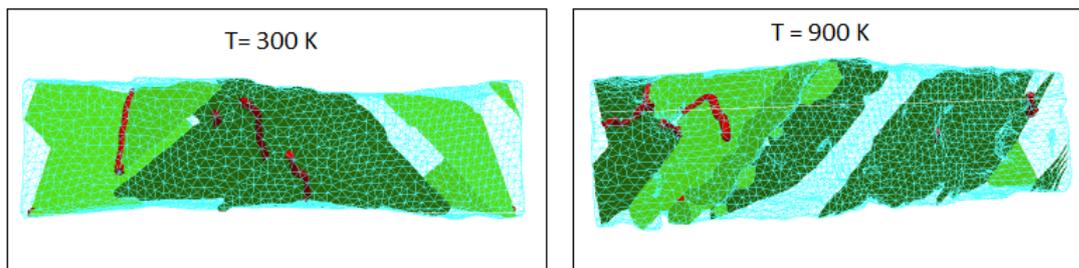


Figure 3.6: Les défauts d'empilements dans la structure nanofil pour $T=300K$ et pour $T=900K$

Nous présentons dans le Tableau 3.1 les résultats calculés concernant la contrainte limite (limite élastique), la déformation limite et le module d'Young pour différentes conditions de températures.

Température(K)	Contrainte limite(σ_{yyi})	Déformation limite(ϵ_l)	Module d'Young E(Gpa)
300K	9.47	0.098	100.11
400K	8.22	0.093	90.87
500K	7.29	0.090	82.54
600K	6.46	0.089	74.39
700K	5.67	0.082	67.11
800K	5.02	0.079	59.34
900K	4.09	0.074	52.28

Tableau 3.1 : Limite élastique, déformation limite et module d'Young pour différentes températures

3.5.2 Influence de la vitesse de déformation

Les vitesses typiques de déformation utilisées dans les expériences sont très faibles, de l'ordre $10^{-3} s^{-1}$. La simulation avec une telle vitesse de déformation de l'ordre de 10% de la longueur

initiale du nanofil avec un pas d'intégration $\Delta t = 1 \text{ fs}$, nous demanderait alors un temps de simulation T_s équivalent à 10^{17} s largement supérieur à des échelles de temps accessibles aux simulations. Néanmoins, nous avons étudié l'influence de la vitesse de déformation sur la réponse de la structure nanofil en faisant varier celle-ci de quelques ordres de grandeurs, à savoir des vitesses de déformation allant de $1.6710^{10} \text{ s}^{-1}$ à 210^8 s^{-1} . Dans la Figure 3.7, nous donnons l'évolution de la contrainte (σ_{yy}) suivant l'axe de déformation (yy) en fonction de la déformation ε pour une structure nanofil de côté $11 a_0$ thérmalisée à 300 K. Comme nous pouvons remarquer sur la Figure 3.7, dans la zone élastique et pour des vitesses de déformation allant de $1.6710^{10} \text{ s}^{-1}$ à $16.6 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$, les variations de la contrainte en fonction de la déformation se coïncident, ce qui suggère que le module d'Young E est pratiquement indépendant de la vitesse de déformation à cette échelle de vitesse. Néanmoins en descendant à une vitesse de l'ordre $2.6 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$ le module de Young E chute brutalement. Il passe de 106.31 Gpa pour $V = 1.67 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$ à 74.22 Gpa pour $V = 2.6 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$. Cet effet peut être mise en relation par la section de la structure nanofil. En effet nous pensons qu'avec la section du nanofil choisie dans cette étude ($11 a_0$), une multiplication de l'ordre 10 de la vitesse de déformation ne provoquera pas des changements notables dans la réponse de la structure nanofil dans la zone élastique. Par contre l'augmentation importante de la vitesse de déformation (un facteur multiplicatif de l'ordre de 100) induit un changement appréciable dans la réponse de la structure (voir Tableau 3.2).

Par ailleurs, nous observons une diminution de la contrainte limite de 11.82 Gpa pour une vitesse de déformation de $1.67 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$ et à 6.24 Gpa pour une vitesse de déformation de $2.6 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$. Cette diminution peut être expliquée par le fait qu'une forte vitesse de déformation ne laissera pas suffisamment de temps au système pour la nucléation des défauts étendus (dislocations et défauts d'empilements) responsables de l'avènement de la rupture.

A titre de visualisation, nous représentons dans la Figure 3.8 uniquement l'émergence des défauts dans la structure nanofil déformée avec des vitesses de déformation de l'ordre de $V = 1.67 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$ et $V = 2.6 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$. Comme nous pouvons remarquer, la population des défauts est très importante pour une faible vitesse de déformation.

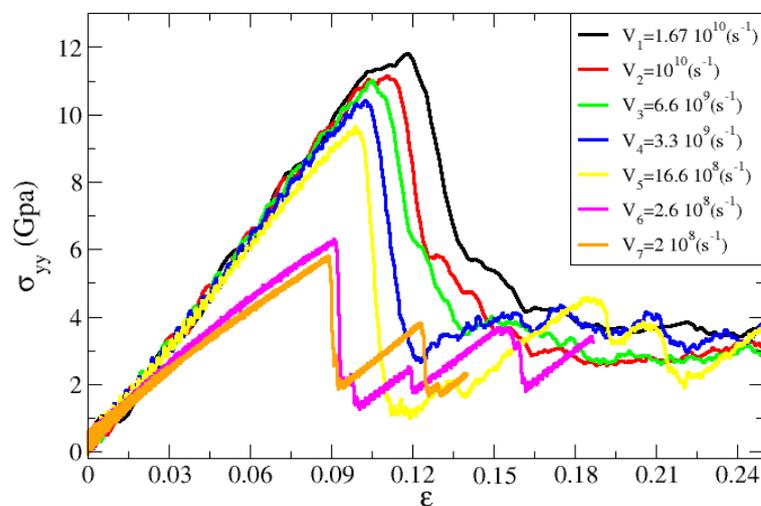


Figure 3.7: Contrainte-déformation pour différentes vitesses de déformation

Nous présentons dans le Tableau 3.2 les résultats calculés concernant la contrainte limite (limite élastique), la déformation limite et le module d'Young pour différentes vitesses de déformations.

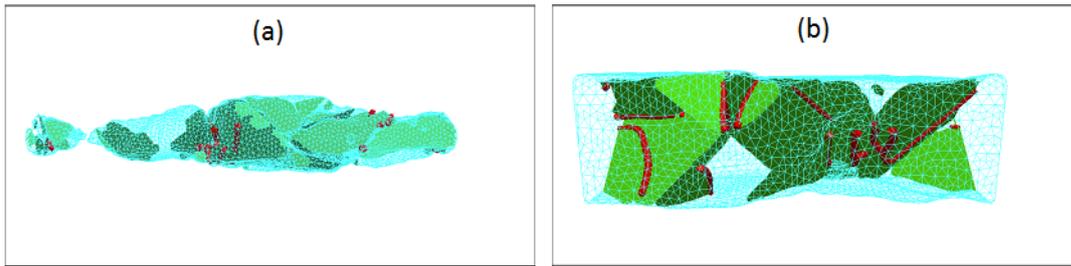


Figure 3.8: L'émergence des défauts pour $V = 1.67 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$ (a) et pour $V = 2.6 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$ (b) .

3.5.3 Effet de la présence de lacunes

Peu de travaux théoriques ont été effectués concernant l'effet de la présence de lacunes sur le comportement mécaniques des structures nanométriques. Pour cela, une étude théorique nous a paru nécessaire afin de bien caractériser et de quantifier l'influence de présence de lacunes dans le nanofil sur le comportement et les propriétés mécaniques de ces derniers. Pour mieux reproduire les conditions expérimentales [1], nous avons pris en compte dans le cadre de nos simulations la présence de ces défauts. Nous avons donc menés des calculs sur la structure nanofil de côté $11 a_0$ en introduisant des amas de lacunes de taille 19 lacunes distribués sur un plan situés dans différents emplacements Figure 3.9 . Nous avons particulièrement considéré dans cette étude les emplacements suivants (voir Figure 3.9) :

- Une orientation parallèle du défaut à l'axe de la déformation (Verticale) ;
- Une orientation perpendiculaire du défaut avec l'axe de la déformation (Horizontale) ;
- Dans les coins de la structure nanofil avec une orientation parallèle à l'axe de la déformation (Eged1), et avec une orientation perpendiculaire à l'axe de la déformation (Edge2).
- Sur la surface du nanofil en formant un angle de 45° avec l'axe de la déformation (45°).

Vitesse de déformation(s^{-1})	Contrainte limite(σ_{yy_l})	Déformation limite(ε_l)	Module d'Young
$V_1 = 1.67 \cdot 10^{10}$	11.82	0.12	106.31
$V_2 = 1 \cdot 10^{10}$	11.14	0.11	106.23
$V_3 = 6.6 \cdot 10^9$	11.01	0.11	106.51
$V_4 = 3.3 \cdot 10^9$	10.41	0.10	104.45
$V_5 = 1.66 \cdot 10^9$	9.65	0.10	100.21
$V_6 = 2.6 \cdot 10^8$	6.24	0.0914	74.22
$V_7 = 2 \cdot 10^8$	5.81	0.08	69.55

Tableau 3.2 : Limite élastique, déformation limite et module de Young pour différentes vitesses de déformation

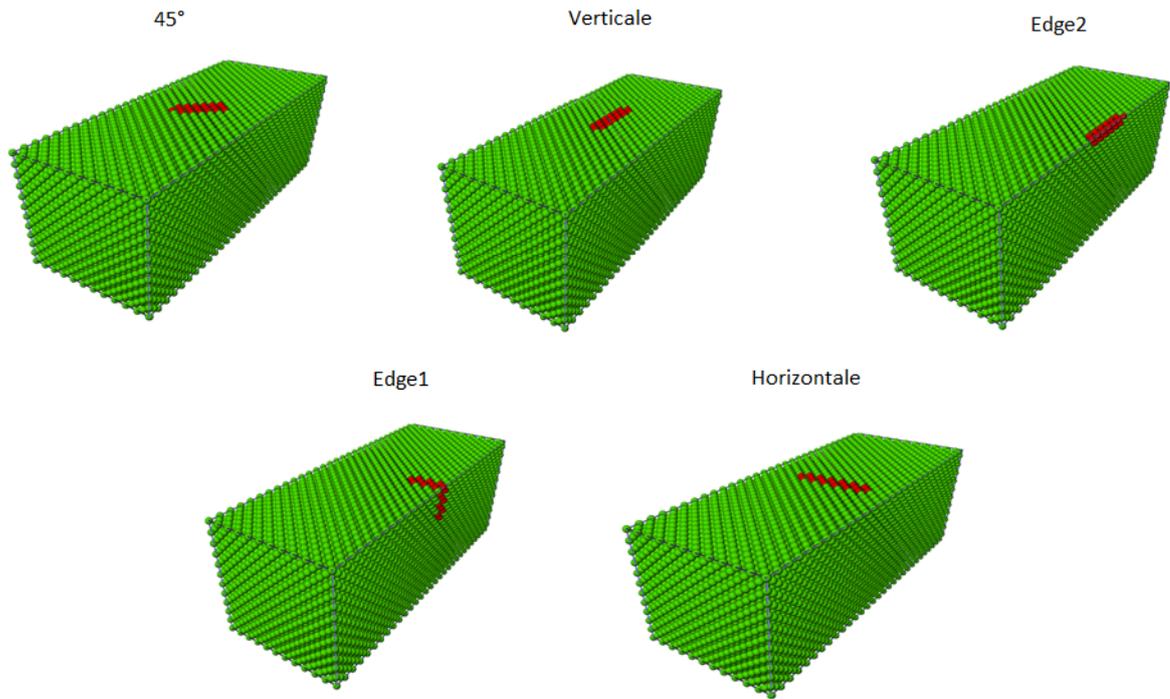


Figure 3.9: Les différents emplacements de lacunes

Les résultats obtenus pour une structure parfaite et celle contenant un défaut ayant une orientation perpendiculaire avec l'axe de déformation (Horizontale) sont représentés dans Figure 3.10. Comparativement à la structure parfaite, l'introduction du défaut dans la structure induit une diminution importante de la contrainte $\sigma_l(yy)$ et de la déformation limite ε_l . En effet la contrainte limite décroît d'environ 1.37 Gpa soit moins de 0.14 % de la valeur initiale. Cet effet peut être expliqué en regardant de plus près la structure défectueuse au niveau du point de rupture. Dans la Figure 3.11, nous représentons à l'aide du logiciel Paraview [6], l'émergence des défauts étendus à savoir les fautes d'empilements et les dislocations. A partir de la Figure 3.11, on note que l'avènement du processus plastique dans la structure défectueuse est dû principalement à la germination prématuré des fautes d'empilements à partir de l'emplacement du défaut introduit dans la structure nanofil.

Par ailleurs, nous constatons sur la Figure 3.10, que dans la zone élastique, les comportements des deux structures parfaite et défectueuse sont identiques. Ceci nous renseigne sur le fait que le module élastique E est insensible à la présence de ce type de défaut.

3.5.4 Effet de l'emplacement du défaut dans la structure nanofil

Pour s'assurer de la pertinence de ce type de comportement avec d'autres emplacements du défaut, nous avons effectué des calculs sur des structures nanofils avec des amas de 19 lacunes situés dans différents endroits sur la surface du nanofil. Les résultats obtenus sont regroupés dans le Tableau 3.3 et aussi indiqués sur la Figure 3.12. Nous pouvons remarquer que quelque soit la structure défectueuse considérée, les variations Contrainte-déformation dans la zone élastique

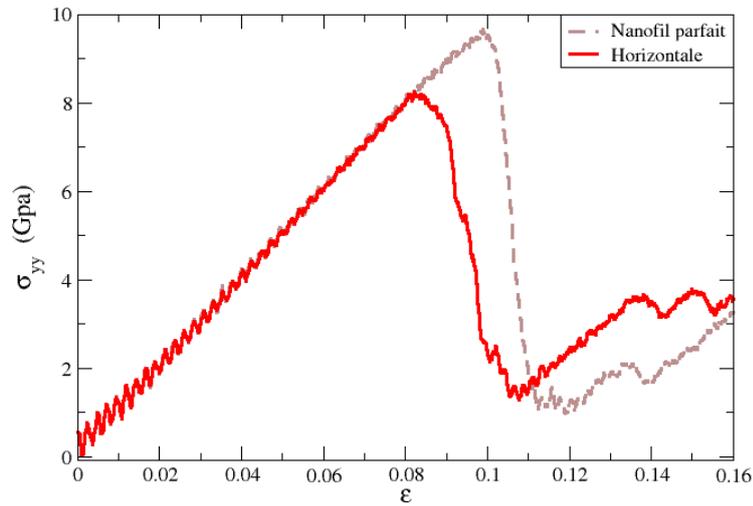


Figure 3.10: Contrainte-déformation pour une structure nanofil parfaite et pour une structure contenant un défaut ayant une orientation perpendiculaire avec l'axe de déformation

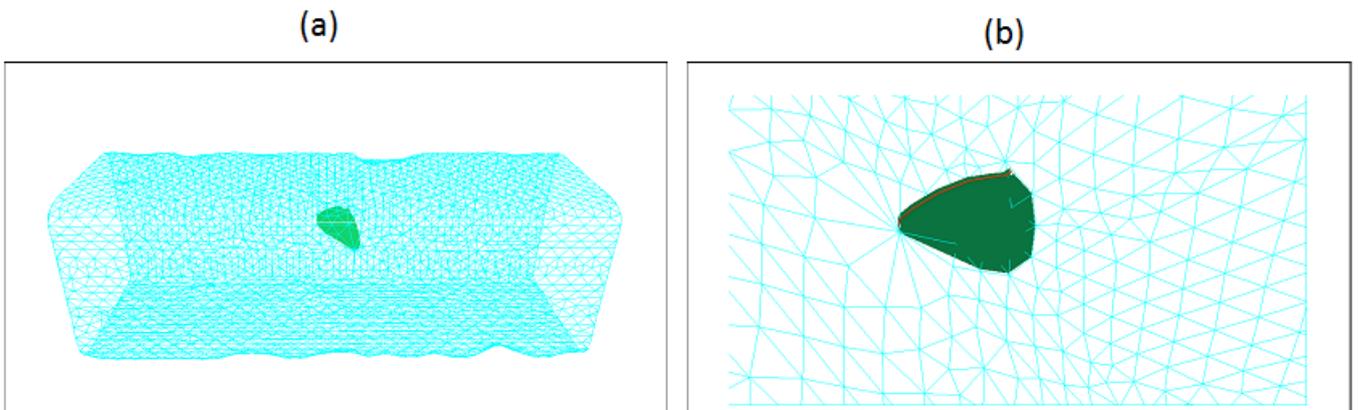


Figure 3.11: L'émergence des dislocations et des défauts d'empilements

se chevauchent. Ceci nous montre que le module d'Young est indépendant de l'emplacement initial du défaut introduit. Cependant l'effet de cet emplacement est essentiellement perceptible dans la zone plastique .

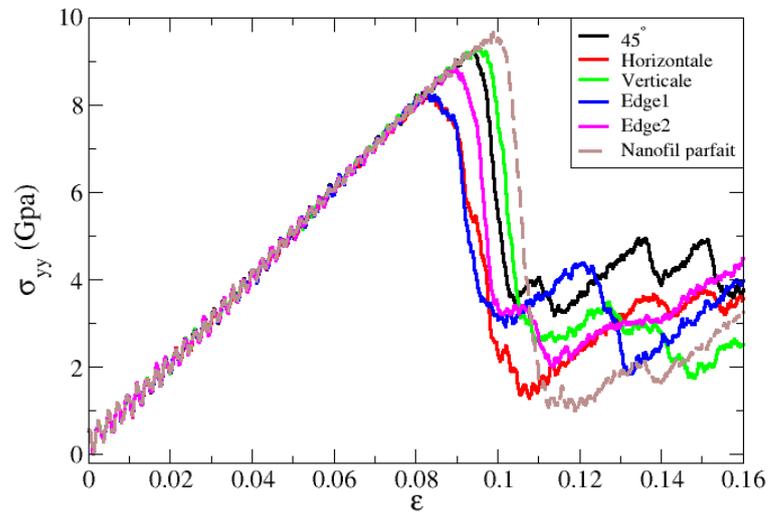


Figure 3.12: Contrainte-déformation pour différents emplacements de lacunes

Nous donnons dans le Tableau 3.3 les résultats concernant la limite élastique, la déformation limite et le module d'Young pour différents emplacements de lacunes.

Position des lacunes	limite élastique(σ_{yy_l})	déformation limite(ε_l)	Module d'Young (Gpa)
45°	9.226	0.094	100.772
Horizontale	8.182	0.081	100.999
Verticale	9.231	0.097	100.437
Edge1	8.219	0.084	100.985
Edge2	8.706	0.091	100.576
Nanofil parfait	9.474	0.098	100.108

Tableau 3.3 : Limite élastique, déformation limite et module d'Young pour différents emplacements des lacunes

3.6 Conclusion

Ces brèves analyses des résultats des études de dynamique moléculaire de nanofil de nickel montrent que la vitesse de déformation, la température et la présence de lacunes dans le nanofil changent la limite élastique, et les propriétés mécaniques du nanofil considéré.

En effet, la contrainte limite diminue avec l'augmentation de la température à vitesse de déformation constante. Le module d'Young diminue avec l'augmentation de la température.

La contrainte limite augmente avec l'augmentation de la vitesse de déformation à température constante.

La présence de défauts (lacunes) dans le nanofil de nickel change son comportement mécanique. En effet la limite élastique ne peut être estimée correctement qu'en tenant compte du défaut dans la structure des métaux.

Bibliographie

- [1] E. Celik, I. Guven and E. Madenci. *Nanotechnology* 22, 155702 (2011).
- [2] H. A. Wu, *Mechanics Research Communication*. 33, 9-16 (2006).
- [3] M. Ram. and Yu Liang. *Tensile and Flexural Deformation of nickel Nanowires via Molecular Dynamics Simulation*, (2010).
- [4] Yu-Hua Wen et al. *Comput, Mater Scien*. 41, 553-560 (2008).
- [5] A. Stukowski. *Mater. Sci. Eng.* 18, 015012 (2010).
- [6] *The ParaView Guide*, by Amy Henderson, Jim Ahrens, and Charles Law. Published by Kitware Inc. i, Clifton Park, NY.(2004).

Conclusion générale

Les travaux menés au cours de ce mémoire ont porté essentiellement sur l'étude théorique de la réponse d'une structure nanométrique défectueuse de nickel soumis à une contrainte uni-axiale. Nous nous sommes intéressés en particulier aux effets de la température, de la vitesse de déformation et notamment à l'effet de présence de lacunes dans le nanofil. Ces simulations ont été réalisées par dynamique moléculaire avec l'approche EAM.

Dans le premier chapitre, nous avons exposé les fondements et les principes de la dynamique moléculaire, ainsi qu'à sa mise en œuvre dans le code parallèle LAMMPS. Le formalisme de potentiel de type "Embedded Atom Méthode" EAM employé dans notre travail a été détaillé.

Des tests de validation de potentiel EAM ont été réalisés dans le deuxième chapitre. Différentes propriétés physiques de nickel en volume (le paramètre de maille, l'énergie de cohésion, constantes élastiques, le modules de compressibilité) ont été calculées. Ces résultats sont en parfait accord avec l'expérience et avec d'autres travaux théoriques. L'étude de nickel en surface (l'énergie de formation de surface) a également montré des résultats en bon accord avec la littérature. Ces résultats montrent que l'approche EAM donne des valeurs assez proches des valeurs trouvées dans d'autres travaux théorique. Ceci nous a permet de valider le potentiel EAM utilisé pour le système Ni.

Dans le troisième chapitre, qui est l'objet principal de notre travail, nous avons en premier temps donné un aperçu sur les structures nanométriques. Par la suite, nous avons exposé les résultats obtenus concernant l'effet de la température, l'effet de la vitesse de déformation ainsi que l'effet de la présence de lacunes sur la réponse du nanofil à une contrainte uni-axiale.

Pour l'effet de la température, nos résultats montrent que la limite élastique diminue avec l'augmentation de la température, ces résultats s'accordaient parfaitement avec d'autres travaux théoriques effectués dans le cadre de la dynamique moléculaire.

Concernant l'effet de la vitesse de déformation, nous avons montré que la limite élastique augmente avec la vitesse de déformation. Ces résultats sont en accord avec d'autres résultats théoriques.

Notre travail nous a confirmé que la présence de lacunes dans le nanofil de nickel change son comportement mécanique. En effet la limite élastique ne peut être estimée correctement qu'en

tenant compte du défaut dans la structure des métaux. Ceci peut expliquer l'écart entre les contraintes limites trouvées pour le massif et celles de la structure nanofil.