
Mécanismes responsables d'une transition ductile-fragile dans les métaux : simulation par Dynamique Moléculaire

Résumé : Lorsque un métal est mis en contact avec de l'hydrogène, il peut subir une transition d'un mode de rupture ductile vers un mode de rupture fragile. Ce rapport traite de la modélisation de cette transition ductile-fragile à l'aide de simulations atomistiques.

Le stage a abouti à la détermination d'un endommagement critique du joint de grains $\Sigma 33(554)[\bar{1}\bar{1}0]$ par des cavités nanométriques conduisant à la propagation fragile d'une fissure interne le long de ce joint de grains. Une étude détaillée de la Fracture Process Zone a été menée en Dynamique Moléculaire. Des événements thermiquement activés ont été observés. La rupture fragile a lieu à un niveau de contrainte inférieure au chargement critique observé en régime athermalique (en Statique Moléculaire). L'apparition de dislocations thermiquement activées a aussi été obtenue.

Mots clefs : *Transition ductile-fragile, Fragilisation par l'hydrogène, Cohésion, Fracture Process Zone, Dynamique Moléculaire.*

Stage encadré par :

Dôme TANGUY

dome.tanguy@univ-lyon1.fr / tél. (+33) 4 72 43 29 87

Institut Lumière matière

Institut Lumière Matière - UMR CNRS 5306

Université Claude Bernard Lyon 1 - CNRS

Bâtiment Léon Brillouin - étage 2

6 rue Ada Byron

69622 Villeurbanne cedex

<http://ilm.univ-lyon1.fr/>



Introduction

L'hydrogène est omniprésent dans notre environnement, sous forme d'eau ou de gaz. Pour les matériaux métalliques, ces sources d'hydrogène constituent un risque car ils peuvent être sensibles à la fragilisation par l'hydrogène. De nombreux secteurs industriels sont concernés : le nucléaire (les cuves du circuit primaire), l'aéronautique (corrosion atmosphérique), les énergies propres (les éléments métalliques des piles à combustibles)...

Ce phénomène est lourd de conséquence, puisqu'il conduit à une transition du système d'un mode de rupture "ductile", connu et maîtrisé du point de vue des applications, vers une rupture "fragile" imprévisible et dangereuse ayant des vitesses de propagation de l'ordre du millimètre par jour. Un modèle physique pouvant prédire l'apparition du phénomène permettrait de mettre au point des alliages optimisés, et de prévoir avec une plus grande fiabilité la durée de vie des pièces de structure.

Même si l'enjeu économique est important, des décennies de recherche n'ont pas permis d'établir un tel modèle. En effet, le phénomène est à la fois "multi-physique" et "multi-échelle", et nous verrons dans la première partie de ce rapport qu'il est nécessaire de prendre en compte divers phénomènes, à l'échelle atomique, mais également macroscopique.

De par leur procédé de fabrication, les matériaux métalliques utilisés pour fabriquer des pièces mécaniques sont sous forme de solides polycristallins, or il a été constaté que l'endommagement du matériau se faisait en priorité le long des joints de grains. Le projet auquel j'ai pris part vise à comprendre la transition entre le mode de rupture ductile et fragile en étudiant la propagation d'une fissure le long d'un joint de grains dans l'aluminium, à l'aide de simulations numériques, et à terme d'enrichir les modèles continus en leur fournissant des lois de rupture physique.

La ségrégation interfaciale de soluté à l'origine de la transition a été modélisée par l'ajout de cavités nanométriques sur un joint de grains. Ce stage a eu pour objet l'étude de la fragilisation engendrée par ces cavités par simulation atomistique, et comme objectif final l'observation d'effets de température pour ce problème. Pour cela, après l'étude partielle du code de Dynamique Moléculaire utilisé (C++), j'ai dû concevoir et mener plusieurs "campagnes" de simulations, traiter les données avec des programmes existants ou conçus pour l'occasion (scripts Bash, Gnuplot, Python) et modifier une partie du code existant pour y ajouter différents éléments relatifs à l'étude du système en température (barostat).

Ce rapport présente dans un premier temps les éléments théoriques et pratiques essentiels à la compréhension des modèles utilisés au cours de ce stage, principalement issus de l'élasticité linéaire et des principes de la Dynamique Moléculaire. Ensuite, sera présenté la première partie du projet, durant laquelle l'étude d'une fissure fragilisée par une population de cavités nanométriques a été menée. Enfin, l'analyse des mécanismes de rupture dans des systèmes de plus petite taille, qui a occupée la majeure partie du stage sera exposée.

Remerciements

Avant de commencer la présentation du travail que j'ai effectué durant ce stage, je tiens à remercier l'ensemble des personnes avec qui j'ai échangé, partagé et appris.

Tout d'abord je remercie l'ensemble de l'équipe pédagogique de la Licence Sciences de la Matière pour les connaissances théoriques et pratiques qu'ils m'ont transmis au cours de l'année. J'aimerais également remercier le personnel de l'Institut Lumière Matière pour son accueil pendant ces deux mois. En particulier, mes remerciements s'adressent à mon encadrant, M. Dôme Tanguy, pour sa pédagogie, sa patience, et ses nombreux conseils pour la rédaction de ce rapport.

Table des matières

| | |
|---|-----------|
| 1 Concepts théoriques et méthodes | 4 |
| 1.1 Description théorique du phénomène de rupture dans les métaux | 4 |
| 1.2 Propriétés des systèmes étudiés | 6 |
| 1.3 Approche atomistique | 6 |
| 2 Rupture athermique, Statique Moléculaire sur un grand système comportant une fissure interne | 8 |
| 2.1 Simulations | 8 |
| 2.2 Resultats | 10 |
| 3 Simulations sur un petit système, mécanismes à l'oeuvre dans la Fracture Process Zone | 12 |
| 3.1 Description des systèmes simulés | 12 |
| 3.2 Mesure de la loi cohésive | 13 |
| 3.3 Etude en Statique Moléculaire du système avec une cavité isolée | 14 |
| 3.4 Activation thermique | 15 |
| 3.5 Simulations sur le petit système en Dynamique Moléculaire | 15 |
| A Annexe : Scaling, mesure du temps d'exécution du programme de simulation | 20 |

1 Concepts théoriques et méthodes

Les différents éléments théoriques et méthodologiques nécessaires à la compréhension des modèles utilisés et des simulations réalisées pour étudier la transition ductile-fragile sont introduits dans cette partie.

Dans un premier temps, le phénomène de rupture dans les métaux est présenté. Les notions de facteur d'intensité de contrainte k et de Fracture Process Zone seront définies. Des détails sur le système que nous avons étudié seront ensuite précisés. Enfin l'approche atomistique sera détaillée.

1.1 Description théorique du phénomène de rupture dans les métaux

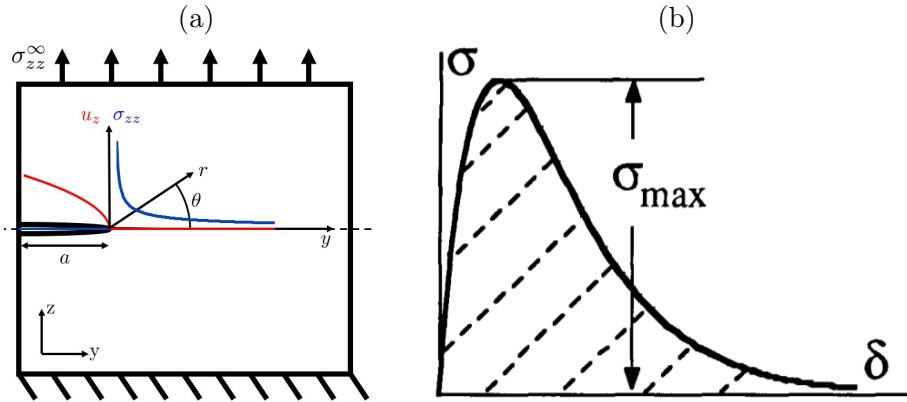


FIGURE 1 – (a) Situation décrite par l'élasticité, en bleu l'évolution théorique de la contrainte σ_{zz} et en rouge du déplacement au bord de la fissure u_z (b) Loi cohésive.

Nous allons ici introduire quelques concepts nécessaires à la modélisation de la transition ductile-fragile par un effet de ségrégation interfaciale de soluté (hydrogène par exemple).

On se place dans la situation de la figure 1a : une fissure de longueur a située sur un joint de grains, dans un milieu infini. Une contrainte σ_{zz}^∞ est appliquée à l'infini perpendiculairement à la fissure. En coordonnées polaires dans le plan (y, z), la solution donnée par l'élasticité linéaire au voisinage de la pointe de la fissure ($r \ll a$) est :

$$\sigma_{zz} \sim \frac{k}{2\pi\sqrt{r}} f(\theta) \quad (1)$$

où le scalaire k est le *facteur d'intensité de contrainte*. Le champ de contrainte limite a toujours cette forme, seul la valeur de k dépend de la géométrie du système. Pour le cas présenté sur la figure 1a :

$$k = \sigma_{zz}^\infty \sqrt{\pi a} \quad (2)$$

On définit également le taux de restitution de l'énergie élastique G en J/m^2 , qui s'exprime comme $G = \frac{k^2}{E}$ où E est le module d'Young du matériau [4].

En faisant un bilan d'énergie (critère de Griffith), on peut voir que la propagation de la fissure dans un milieu parfaitement fragile, s'effectue lorsque $G = 2\gamma_s - \gamma_{GB}$ où γ_s est l'énergie d'excès de la surface (libérée par la fissure) et γ_{GB} est l'énergie d'excès du joint de grains. De ce fait, on peut définir un facteur d'intensité de contrainte k_{Grif} , qui correspond au seuil théorique à partir duquel la fissure devrait se propager dans un milieu fragile.

En pointe de fissure, on appelle *Fracture Process Zone* (FPZ), la zone où a lieu le processus physique de rupture. A cet endroit, la théorie élastique prédit une divergence de la contrainte (cf figure 1a). Il faut donc compléter l'élasticité pour pouvoir décrire le comportement physique du matériau. Pour

cela, on définit une loi cohésive non linéaire $\sigma(\delta)$ (représentée sur la figure 1b). δ est une variable, la longeur d'excès, qui est définie en fonction du problème. Elle traduit l'écart entre le système et un système décrit par l'élasticité linéaire. Dans le cas d'une fissure dans un milieu homogène, en première approximation δ correspond à l'ouverture de la fissure, $\delta = 2.u_z$, où u_z est le déplacement au bord de la fissure (cf figure 1a). Nous verrons dans la suite du rapport plus précisément comment déterminer cette loi à partir de simulations atomistiques.

Grâce à cette relation, la contrainte maximale à partir de laquelle le matériau rompt, σ_{max} a une valeur finie[6].

Considérons maintenant le cas modèle de l'aluminium. Grâce au bilan d'énergie de Griffith, on a $\frac{k_{Grif}^2}{E} = 2\gamma_s - \gamma_{GB}$. Pour ce matériau, on peut calculer k_{Grif} à partir de valeurs de $2\gamma_s$ et γ_{GB} obtenues par des calculs quantiques de type Density Density Functional Theory (DFT) [3] : $k_{Grif} \simeq 0.4 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$. Expérimentalement, en effectuant un essai de traction sur ce type de matériau, celui-ci rompt à partir d'un k beaucoup plus grand, $K_{tearing} \simeq 20 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$, où la rupture intervient par arrachement ductile ("tearing"). Le facteur 50 entre la valeur théorique pour le clivage (k_{Grif}) et la valeur expérimentale ($K_{tearing}$) correspond à un facteur 2500 sur l'énergie à apporter au système pour faire avancer la fissure. Le phénomène physique est ainsi complètement différent : le système se déforme plastiquement de manière importante, localement jusqu'à plusieurs dizaines de pourcent de déformation, avant que les contraintes locales et la densité de dislocations soient telles que des cavités apparaissent. Elles croissent et coalescent avec la fissure principale.

Dans le cadre de ce stage, nous nous sommes intéressés à un système exposé à la fragilisation par l'hydrogène. Dans ce contexte, un nouveau facteur d'intensité de contrainte typique apparaît, K_{seuil} , avec $k_{Grif} \ll K_{seuil} \ll K_{tearing}$. Dans le cas d'une fissure sur un joint de grains fragilisé par l'hydrogène, lorsque le matériau atteint ce seuil, la fissure commence à se propager.

Ce phénomène implique deux événements : La décohésion de l'interface (au niveau du joint de grains), et la déformation plastique de la matrice. Ce dernier phénomène est multi-échelle. Il comprend la ductilité de la pointe (i.e la capacité de la pointe à émettre une dislocation), mais également celle issue des sources de dislocations qui peuvent apparaître dans le matériau. Ici, nous nous sommes seulement intéressés au comportement de la FPZ de la fissure, et n'avons donc pas considéré les déformations plastiques à grande échelle.

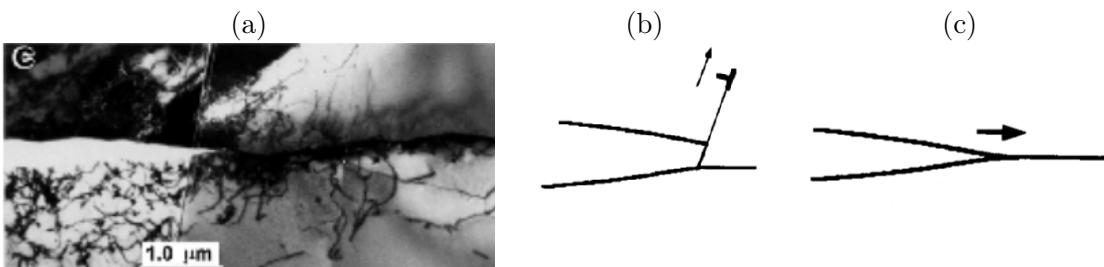


FIGURE 2 – Compétition entre k_{disl} et k_{Ic} . (a) Image MET d'une fissure semi-fragile sur un joint de grains dans Ni-H (Ian Robertson, university of Illinois, Urbana-Champain). (b) Emission de dislocation à la pointe. (c) Propagation de la fissure.

Dans ce cadre plus restreint, nous allons donc chercher à étudier et quantifier le comportement de la FPZ en cherchant les valeurs seuils pour la propagation d'une fissure intergranulaire (k_{Ic}) et pour l'émission d'une dislocation directement depuis la pointe de la fissure (k_{disl}).

Si on applique \dot{k} sur un échantillon, il y a alors une compétition entre k_{disl} et k_{Ic} , et on distingue deux cas :

1. Si $k_{disl} < k_{Ic}$, $k(t)$ va d'abord atteindre k_{disl} : une dislocation sera émise, va émousser la pointe de fissure (figure 2b) et écraser le chargement mécanique extérieur. On est dans le cas d'un

matériau dit "intrinsèquement ductile" qui ne casse jamais.

2. Dans le cas de la fragilisation par ségrégation d'un soluté, ces facteurs peuvent changer, et on peut avoir $k_{\text{disl}} > k_{\text{Ic}}$. Il y a alors transition ductile-fragile et propagation de la fissure avec une plasticité réduite et peu d'émoussement (cf figure 2a et 2c).

1.2 Propriétés des systèmes étudiés

Des informations plus précises quant aux propriétés du système étudié au cours de ce stage sont présentées ci-dessous.

Nous avons étudié cette transition dans l'aluminium (module d'Young $E = 81.73 \text{ GPa}$). Ce matériau a une structure cubique face centrée, de paramètre de maille $a_0 = 4.0412 \text{ \AA}$. Le joint de grains étudié est de type $\Sigma 33(554)[1\bar{1}0]$. On appelle z l'axe normal au joint de grains, y la direction longitudinale à la fissure, et x l'axe qui complète le trièdre direct. La maille CSL qui est le motif structural élémentaire du joint (figure 3a) a pour dimension : $L_x = 2.85 \text{ \AA}$, $L_y = 23.21 \text{ \AA}$ et $L_z = 16.42 \text{ \AA}$. Des conditions périodiques sont appliquées dans les directions x et y.

Afin de modéliser la fragilisation par l'hydrogène, des cavités nanométriques sont placées sur le joint de grains. Le motif élémentaire de cavité a été calculé à l'aide d'un calcul de type Monte-Carlo[7]. Le mécanisme physique de rupture que l'on étudie est donc la croissance des cavités dans la FPZ.

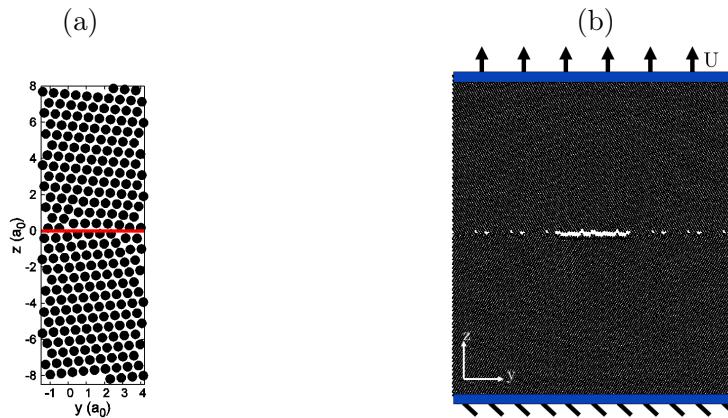


FIGURE 3 – (a) Une maille CSL et motif du joint de grains, plan cristallographique (110), en rouge est indiqué le plan du joint de grains. (b) Système étudié en Statique Moléculaire dans la partie 2 (coupe), les bords rigides sont représentés en bleu : celui du bas est fixe, un déplacement U est imposé sur celui du haut. Une fissure interne et le motif de cavité sont présents sur le plan du joint de grains.

1.3 Approche atomistique

Pour étudier ce problème, nous avons utilisé un code de Dynamique Moléculaire (en C++) dont nous décrivons brièvement le principe. On note N le nombre total de particules. On définit le modèle énergétique qui décrit les interactions entre atomes. Nous avons utilisé un "potentiel EAM" (Embedded-Atom Method [2]) :

$$E_{\text{pot}} = \sum_{i=0}^N E_i = \sum_{i=0}^N \left(F_i(\rho_i) + \sum_{j=0, j \neq i}^N V(r_{ij}) \right) \quad (3)$$

où $F(\rho_i)$ est la fonction "immersion" qui donne l'énergie pour immerger un atome dans un gaz d'électrons de densité ρ . ρ_i est la densité électronique locale (en \vec{r}_i) et est approximée par $\rho_i = \sum_j \rho_{\text{at}}(r_{ij})$ où $\rho_{\text{at}}(r_{ij})$ est la densité créée par l'atome j à la distance r_{ij} . La somme est sur les voisins j de l'atome i. La fonction F , non linéaire, décrit la partie cohésive des interactions. $V(r_{ij})$ est une fonction d'interaction de paire, qui donne essentiellement la répulsion entre atomes à courte distance. Les fonctions F , ρ_{at}

et V_{ij} sont paramétrées. Les paramètres sont ajustés pour reproduire : la structure cristalline stable à basse température, avec le paramètre de maille et l'énergie de cohésion correspondante ; les constantes élastiques ; et certaines énergies de défauts simples (lacune, faute d'empilement instable...). Les valeurs choisies sont issues d'expériences ou de calculs ab initio.

Afin de connaître la position et la vitesse des particules à chaque instant, on utilise les lois de Newton (description classique). Le temps est discrétisé avec un pas Δt . Si on fait un développement limité au second ordre de la position d'une particule indéxée par i , on a :

$$\begin{cases} \vec{r}_i(t + \Delta t) = \vec{r}_i(t) + \Delta t \cdot \vec{v}_i(t) + \Delta t^2 \frac{\vec{f}_i}{2 \cdot m_i} + o(\Delta t^2) \\ \vec{v}_i(t + \Delta t) = \vec{r}_i(t + \Delta t) - \vec{r}_i(t) \end{cases} \quad (4)$$

où la force dérive du potentiel, et donc $(f_i)_k = \frac{\partial E_{pot}}{\partial k_i}$ avec $k_i = x_i, y_i, z_i$.

En connaissant l'énergie potentielle, fonction des $3N$ degrés de liberté de position du problème (équation (3)) et la position et la vitesse initiale de chaque particules à $t = 0$, les $3N$ équations du mouvement peuvent être intégrées numériquement (équation (4)) et donner l'évolution temporelle du système $\{\vec{r}_i(t)\}^N$. Le programme de Dynamique Moléculaire peut être modifié pour minimiser l'énergie potentielle d'une configuration, on parle de "Statique Moléculaire".

Statique Moléculaire La version statique a été utilisée pour étudier la rupture athermique (i.e. trouver le chargement mécanique critique où le système rompt sans activation thermique). Pour cela, on impose un déplacement uniforme perpendiculaire au joint de grains, de sorte que le bord inférieur ait un déplacement nul, et que le bord supérieur ait un déplacement U . En faisant cela, les atomes ne sont plus à des distances idéales les uns des autres, et l'énergie potentielle augmente.

Ensuite, on minimise l'énergie (en imposant à la boîte des bords fixes) : les atomes du joint se réorganisent. Pour se faire, on impose des conditions dites "de trempe". C'est à dire que les atomes peuvent se déplacer si cela réduit l'énergie potentielle, autrement, leur vitesse est mise à zéro.

Dynamique Moléculaire L'intégration numérique des équations de Newton, telle que présentée ci-dessus (eq. (4)), permet de simuler naturellement l'ensemble micro canonique (N, V, E_{totale}) puisque le volume est fixé (U ne varie pas au cours de la simulation) et que les équations conservent l'énergie totale.

Pour étudier l'activation thermique des mécanismes de rupture, simuler la dynamique de la rupture et mesurer la vitesse d'ouverture d'un joint endommagé sous contrainte (ensemble N, Σ_{zz}, T), nous avons modifié le programme de Dynamique Moléculaire pour imposer une contrainte Σ_{zz} , perpendiculaire au joint de grain. Pour se faire, une force est attribuée aux atomes de la couche supérieure de la boîte ($z > z_{sup}$), selon la relation :

$$f_z^{at} = \frac{A_{sup}}{N_{sup}} \cdot \Sigma_{zz} - C \cdot v_z \quad (5)$$

où N_{sup} et A_{sup} représente respectivement le nombre d'atomes sur la couche supérieure de la boîte et la surface de cette couche[1]. La deuxième partie de l'expression est une force d'amortissement (frottement visqueux) ajoutée afin d'éviter les oscillations de la boîte de simulation suivant z (qui ont été observées) où C a été fixé pour obtenir un amortissement rapide des oscillations. Ce dernier a tendance à faire baisser l'énergie cinétique, les équations du mouvement sont alors modifiées pour contrôler T .

Le bord supérieur n'est plus rigide, les atomes dont $z > z_{max}$ voient leur vitesse et leur position intégrées, mais seulement selon z .

En imposant cette contrainte, on cherche à suivre l'allongement de la boîte de simulation au cours du temps $U(t, \Sigma_{zz}, T)$.

2 Rupture athermique, Statique Moléculaire sur un grand système comportant une fissure interne

Dans cette partie, les résultats de simulations de rupture en Statique Moléculaire sont présentés. Ces simulations s'inscrivent dans la continuité d'un travail concernant la recherche d'un endommagement critique du joint de grains conduisant à une transition ductile-fragile. Cet endommagement est réalisé en plaçant des cavités nanométriques de différentes tailles et à différentes densités sur le joint de grains. Nous avons réalisé des simulations pour deux configurations de cavités. La première est une configuration pour laquelle la densité a déjà été étudiée en amont, dont la taille des cavités a été augmentée (configuration f). La seconde configuration possède des cavités de même taille, mais dont la densité a été divisée par deux (configuration damier).

Les deux configurations sont présentées sur la figure 4. Ces représentations correspondent à la projection des "espaces vides" sur le plan du joint de grains. La fissure est présente au centre, et le motif de cavité répété sur tout le joint de grains. Pour chaque configuration, la pointe de la fissure a été positionnée à différents endroits pour étudier l'influence des différentes cavités sur le comportement de la pointe de la fissure (émission de dislocation ou amorçage de la propagation).

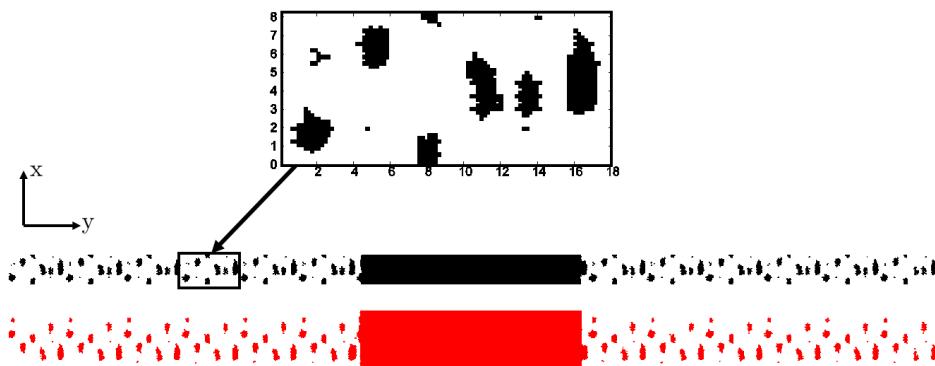


FIGURE 4 – Configurations étudiées. Projection des cavités sur le plan du joint de grains. En noir la configuration f, en rouge la configuration damier dont la densité de cavité a été divisée par deux. Un zoom du motif élémentaire de cavité est également présenté. L'unité de longueur est le paramètre de maille a_0 .

2.1 Simulations

L'idée générale est de réaliser des séries de simulations quasistatiques. Un déplacement U est imposé aux atomes du bord supérieur perpendiculairement au joint de grains (cf fig. 3b), puis l'énergie du système est minimisée. U est ensuite incrémenté avec un pas ΔU (ici $\Delta U=0.1a_0$). Après relaxation, la boîte de simulation est déformée. Sur chaque atome, les forces sont nulles mais pas les contraintes mécaniques. Dans le cas des fortes contraintes les cavités grossissent.

On augmente ainsi U jusqu'à ce qu'un phénomène se produise dans la FPZ. Nous verrons que dans un cas, la fissure se propage (i.e. rupture fragile) alors que dans l'autre des dislocations sont émises.

A travers ces simulations, nous avons accès au tenseur des contraintes mécaniques $\bar{\sigma}$ sur chaque atome. Sur la figure 5a et 5b, les cartes des champs σ_{zz} et σ_{yz} sont présentées. Ces cartes sont issues de simulations sur la configuration "damier". La suite de cette partie sera consacrée à la description des méthodes d'exploitation de ces données en vue de caractériser les deux configurations étudiées. En particulier, le calcul des facteurs d'intensité de contrainte de nos systèmes.

Mesure de k_{disl} Le premier facteur d'intensité de contrainte caractéristique de notre système est k_{disl} , que l'on calcule au moment de l'émission d'une dislocation.

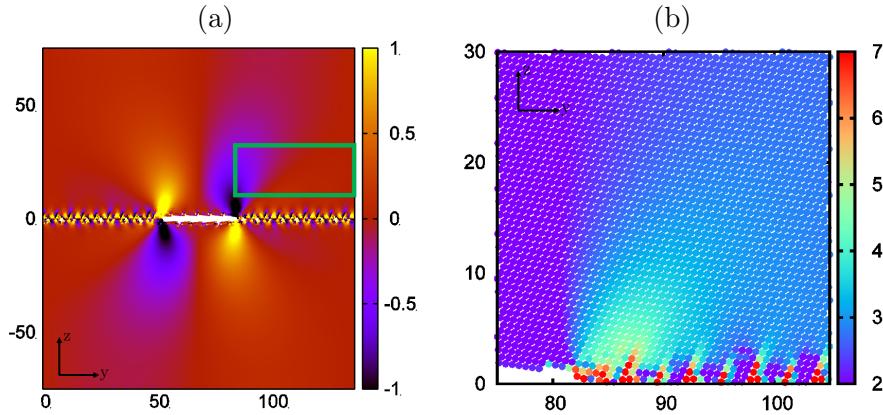


FIGURE 5 – Cartes de contrainte, configuration damier avant émission d'une dislocation, position de la pointe de la fissure 0, $U=8.9a_0$. L'unité de contrainte mécanique est le GPa, et l'unité de longueur a_0 . (a) Résultat de simulation atomistique pour le champ σ_{yz} . En vert est indiqué la zone du fit pour le calcul de k_{disl} (b) Résultat de simulation atomistique pour le champ σ_{zz} .

Sur la figure 5b, on peut voir que σ_{zz} n'est pas compatible avec les contraintes de la mécanique des milieux continus aux abords de la pointe de la fissure. On ne peut donc pas mesurer le facteur d'intensité de contrainte par un ajustement sur l'équation (1) du profil de contrainte pris le long de l'interface. En revanche, la théorie élastique donne une expression de σ_{yz} en fonction de a et σ_{zz}^∞ [9]. En ajustant cette fonction (paramètres σ_{zz}^∞ et a) dans une zone où σ_{yz} est bien décrit (délimitée en vert sur la figure 5a), on peut calculer k_{disl} avec l'équation (2).

Mesure de k_{Ic} Le calcul de k_{Ic} a également été effectué. Ce facteur d'intensité de contrainte est celui atteint lors de la rupture fragile du matériau. Pour le calculer, nous avons mis en place un type particulier de simulation nous permettant de calculer G , le taux de restitution de l'énergie élastique, à partir duquel on peut calculer k_{Ic} (cf paragraphe 1.1).

Ces simulations ont consisté à modéliser des boîtes de simulation ayant une dimension suivant y grande

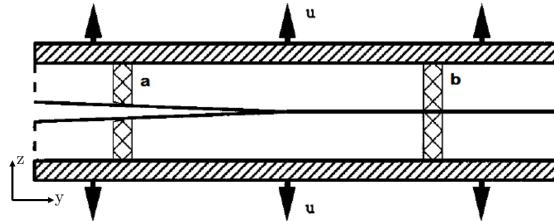


FIGURE 6 – Représentation schématique du système "Thin strip". Un déplacement vertical U est imposé. L'énergie potentielle est mesurée dans la zone hachurée b.

devant celle suivant z, dans laquelle la fissure est placée au bord de la boîte, comme représenté sur la figure 6. Ce système est appellé "thin strip" [5].

Dans ce système, les deux parties hachurées sur la figure 6 représentant respectivement le système fracturé (a), et le système déformé élastiquement (b), n'ont pas d'interactions. On a donc accès à l'énergie potentielle du système (déformé élastiquement, zone b) à l'instant de la propagation, et à G_c calculé avec la formule :

$$G_c = \frac{E_{pot}^b(U = U_{critique}) - E_{pot}^b(U = 0)}{L_x \times y_{prop}} \quad (6)$$

où L_x est la taille du système suivant x, et y_{prop} la distance qu'a parcouru la fissure suivant y.

2.2 Resultats

Configuration f Pour la configuration f, 4 positions de fissures sur 11 ont donné lieu à la propagation de la fissure (les 11 positions initiales de la pointe de la fissure sont uniformément réparties sur le motif élémentaire (fig. 4)). La propagation est illustrée sur la figure 7 où on peut voir les cavités grossir, et coalescer entre elles afin de propager la fissure. Cette configuration de cavité a donc conduit à la



FIGURE 7 – Propagation de la fissure obtenue pour $U=4.8 a_0$. Entre chaque étape, 1000 pas d'intégrations se sont écoulés. (1), (2), (3), (4) représentent 4 instants successifs.

rupture fragile du matériau. Sur la figure 8a les différentes valeurs de k_{disl} sont présentées pour chaque position initiale de pointe de fissure. Pour celles où la rupture fragile a eu lieu, k_{disl} est mesuré au chargement critique où la fissure se propage. De ce fait, on mesure en réalité k_{Ic} , le facteur d'intensité de contrainte amenant à la rupture, ici : $k_{\text{Ic}} \simeq 0.52 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$.

La valeur de k_{Ic} a également été calculé à partir d'une simulation "thin strip" pour cette configuration : $k_{\text{Ic}} = 0.53 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$. Cette mesure semble donc fiable, puisque les deux méthodes donnent la même valeur.

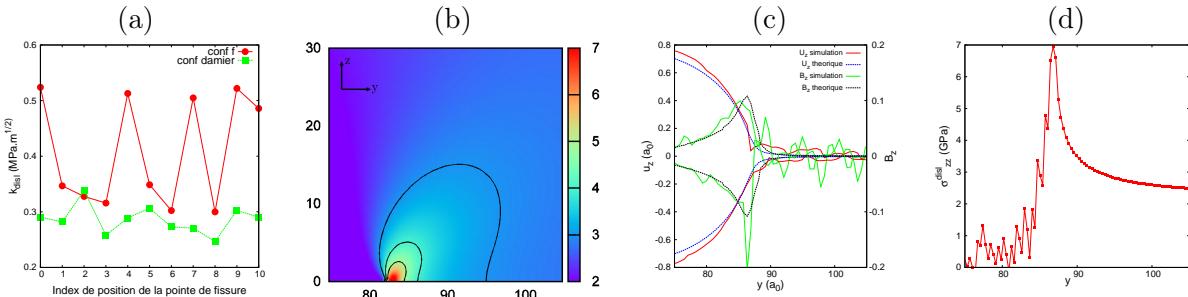


FIGURE 8 – (a) Valeurs de k_{disl} pour les deux configurations, pour toute les positions de pointe de fissure. Les figures (b), (c) et (d) ont été obtenues à partir des résultats de la configuration damier avant émission d'une dislocation, position de la pointe de la fissure 0, $U=8.9 a_0$. (b) Champ $\sigma_{zz}^{\text{disl}}$ extrapolé à partir de la théorie des dislocations, en noir sont tracées les lignes d'iso-contraintes (pas 1GPa). (c) Déplacement au bord de la fissure u_z simulé et théorique et sa dérivé B_z simulée et théorique (élasticité). (d) Profil de contrainte $\sigma_{zz}^{\text{disl}}$ en $z=0$ obtenu en moyennant sur tout le plan du joint de grains.

Pour les positions initiales de pointe de fissure 1, 2, 3, 5, 6 et 8 (fig 8a), on observe l'émission d'une dislocation à un facteur d'intensité de contraintes k_{disl} faible, de l'ordre de $0.35 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$. Ainsi, selon la manière dont est construite la configuration initiale (position du front de fissure par rapport aux cavités les plus grosses), il y a, ou non, croissance des cavités et formation d'une FPZ étendue. La formation d'une telle FPZ donne un profil d'ouverture de fissure plus doux, moins propice à la localisation du cisaillement et donc à l'émission de dislocations. Pour cette configuration de cavités, la réponse du système (fragile ou ductile) dépend donc de la construction de la configuration initiale. Un autre mode de caractérisation de la FPZ a alors été choisi. Nous avons ajouté des forces supplémentaires sur les atomes dont l'environnement présente une tendance au cisaillement, pour contraindre

ce dernier. Avec cette "dynamique contrainte", il est possible de charger une fissure intrinsèquement ductile au delà de k_{disl} , de forcer la formation de la FPZ, puis la propagation fragile. Dans un second temps, une fois la FPZ stationnaire obtenue, les contraintes sont relâchées et le système est libre d'émettre des dislocations.

Pour la configuration f, une fois les contraintes relâchées, la fissure continue de se propager sans émettre de dislocations. Ces simulations complémentaires ont ainsi confirmé que cette configuration est bien fragile, avec $k_{\text{Ic}} \simeq 0.52 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$.

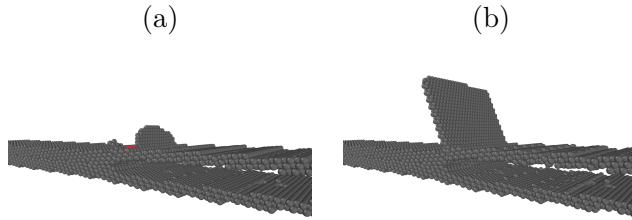


FIGURE 9 – Emission d'une dislocation depuis la pointe de la fissure (position 3) à deux instants. (a) Apparition d'une demi-boucle entre deux cavités. En rouge est indiqué l'emplacement de la cavité la plus proche de la pointe de fissure. (b) Emission de la dislocation.

Configuration "damier" Dans le cas de la configuration damier, aucune configuration initiale n'amène à l'amorçage de la propagation (fig 8a). Cette configuration de cavités ne rend donc pas le système fragile, on est dans le cas d'un matériaux intrinsèquement ductile.

Sur la figure 9a, on voit l'apparition d'une demi-boucle de dislocation. Cela a été interprété de la manière suivante : les cavités étant créées par un calcul Monte Carlo [7], leur énergie est minimisée en amont et il est coûteux au système de cisailler les atomes en leur bord. Ainsi, la dislocation n'est dans un premier temps pas émise à l'emplacement d'une cavité (indiquée en rouge). Dans un second temps, on voit sur la figure 9b que la boucle s'est étendue et a cisaillé la cavité, puisqu'elle s'étend sur toute la largeur de la boîte.

Les valeurs de k_{disl} (figure 8a) sont à peu près constantes, $k_{\text{disl}} \simeq 0.3 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$. Avec le "thin strip" et le cisaillement contraint, on a mesuré $k_{\text{Ic}} = 0.61 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$. On a donc $k_{\text{disl}} < k_{\text{Ic}}$, ce qui explique l'émission de la dislocation avant la rupture fragile.

On peut conclure que les deux configurations étudiées donnent un encadrement de la densité critique de cavité pour obtenir la fragilisation.

Extrapolation de la contrainte Pour avoir une idée de la valeur du champ σ_{zz} en pointe de fissure, les valeurs obtenues en simulations atomistiques sont extrapolées à l'aide de la théorie des dislocations pour avoir le champ de contrainte dans le plan du joint, là où les contraintes issues des simulations atomistiques ne sont pas cohérentes avec la mécanique des milieux continus.

On appelle $u_z(y)$ le déplacement du bord de la fissure (qui dépend de y). La théorie des dislocations indique que l'on peut connaître σ_{zz} à partir de $B_z(y)$ [9], où $B_z(y) = \frac{d}{dy}(u_z(y))$ la densité de dislocation, que l'on obtient en dérivant numériquement $u_z(y)$. Sur la figure 8c est présenté le tracé de u_z et B_z obtenu à partir des simulations. Le profil théorique de u_z et B_z est également tracé sur cette même figure, et on constate que les résultats de la simulation sont proches. En faisant un ajustement sur les résultats de simulations atomistiques (figure 5b) en ajoutant une contrainte constante qui représente le chargement extérieur, on obtient la carte de $\sigma_{zz}^{\text{disl}}$ présentée sur la figure 8b.

En comparant la simulation (σ_{zz}) à l'ajustement ($\sigma_{zz}^{\text{disl}}$), on peut voir que la position de la pointe de la fissure est placée à un endroit cohérent avec la simulation atomistique, en $y \approx 87a_0$.

Il y a un bon accord entre la distribution de dislocations donnée par l'élasticité et celle mesurée à partir des simulations atomistiques (figure 8c). Dans cette configuration (distribution de cavités en "damier", chargé à $k = 0.29 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$, à un niveau juste inférieur à celui qui amène à l'émission d'une dislocation), la fissure peut être considérée comme "élastique" (i.e la Process Zone non-linéaire a une taille très réduite). Le profil de contrainte σ_{zz}^{disl} (figure 8d) renseigne sur le niveau de contrainte que subissent les atomes au voisinage de la pointe de la fissure. On peut voir que sur une zone contenant une maille CSL ($\sim 5a_0$), la contrainte de traction est supérieure à 5GPa.

Dans la suite de ce rapport, des résultats concernant la caractérisation plus précise de la FPZ seront présentés : notamment, nous allons imposer une contrainte au voisinage de 5GPa, sur un petit système représentant la FPZ, puis augmenter la température pour étudier l'influence de la température sur les processus actifs dans la FPZ.

3 Simulations sur un petit système, mécanismes à l'oeuvre dans la Fracture Process Zone

Nous avons pu voir dans la partie 2 (figure 7) que le phénomène physique de rupture se produit dans une zone de petite taille, la FPZ, dont l'étude présentée ici a constitué la majeure partie de ce stage.

Le but final étant l'observation d'événements thermiquement activés (en Dynamique Moléculaire), nous devions avoir accès au temps physique le plus long possible. Pour ce faire, la taille des systèmes simulés a été choisie comme la plus petite possible.

Après une description précise des systèmes étudiés, cette partie présente dans un premier temps les simulations en Statique Moléculaire, puis en Dynamique Moléculaire.

3.1 Description des systèmes simulés

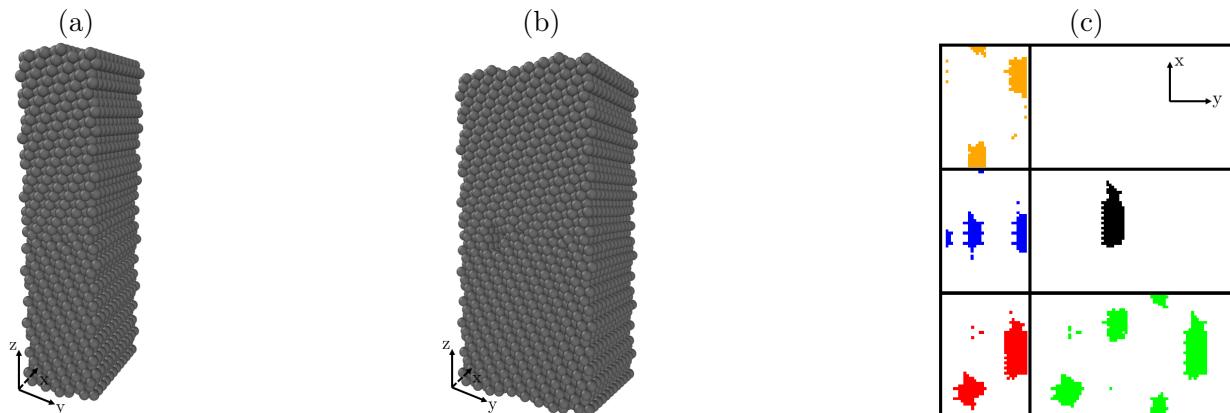


FIGURE 10 – (a) Petit système ayant une maille CSL suivant y.(b) Petit système ayant deux maille CSL suivant y. (c) Configurations de cavités pour les petits systèmes : projection des lacunes sur le joint de grains. A gauche 1 maille CSL avec de bas en haut les configurations 1, 2 et 3. A droite 2 mailles CSL avec de bas en haut la configuration "2 mailles avec cavités" et "2 mailles avec une cavité isolée".

Des systèmes comportant 12 mailles CSL suivant x, et 2 suivant z ont été simulés. Certains comportent une maille CSL suivant y (figure 10a), et d'autres deux (figure 10b). Nous avons ensuite disposé des cavités sur le joint de grains (à partir du motif de cavité de la configuration f, figure 4), qui ont été déplacée suivant y pour obtenir différentes configurations. Un système comportant simplement une grosse cavité isolée a également été créé. Ces différentes configurations sont présentées sur la figure 10c.

Les deux boîtes de simulations sont respectivement de taille $34.25\text{\AA} \times 46.4\text{\AA} \times 64.8\text{\AA}$ (4,624 atomes) et $34.25\text{\AA} \times 23.2\text{\AA} \times 64.8\text{\AA}$ (9,569 atomes).

3.2 Mesure de la loi cohésive

Pour caractériser la FPZ, nous avons dans un premier temps mesuré la loi cohésive (cf figure 1b) pour chacun des petits systèmes étudiés. La méthode de mesure de cette loi est présentée ci-dessous.

Le principe est de comparer le comportement du système avec une référence élastique. Pour ce faire, un système que nous appellerons "référence élastique" est défini. Ce dernier est un monocristal ayant environ les mêmes dimensions que le système étudié.

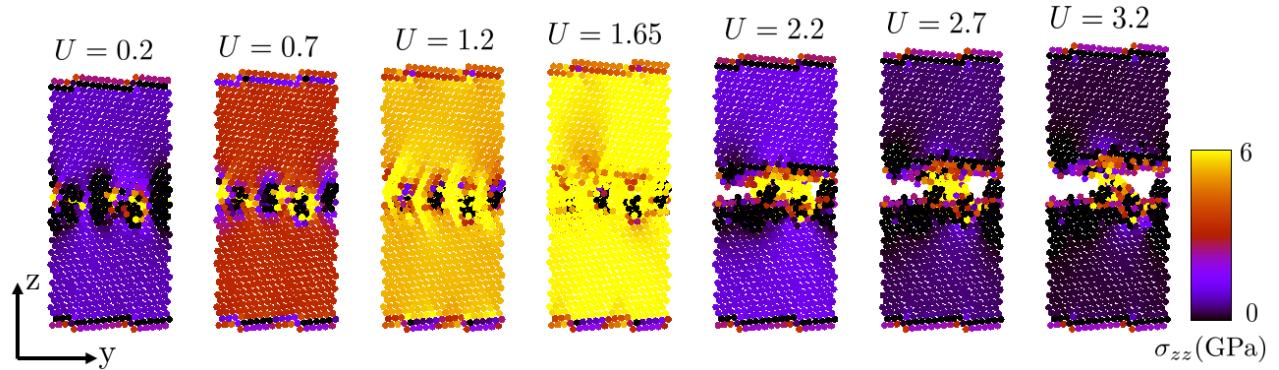


FIGURE 11 – Evolution de la boîte de simulation au cours de la traction pour la configuration 2 mailles avec cavités. En couleur est codé la contrainte mécanique σ_{zz} sur chaque atome. On la mesure loin du joint de grains, où elle est quasi-homogène.

Des essais de traction quasistatique (U augmente) sont réalisés sur ces deux systèmes (figure 11). Une valeur de σ_{zz} est ensuite attribuée à chaque valeur de U (figure 12b). Cette contrainte doit être mesurée assez loin du joint de grains et des bords rigides (zone rouge de la figure 12a). On définit ensuite la longueur d'excès :

$$\delta = l_{GB}(\sigma_{zz}) - l_{ref}(\sigma_{zz}) \quad (7)$$

où $l_{GB} = l_{GB}^0 + U(\sigma_{zz})$ est la longueur du système étudié, et $l_{ref} = \frac{l_{GB}^0}{l_{ref}^0} \cdot (l_{ref}^0 + U(\sigma_{zz}))$ la longueur de la référence élastique, qui est modifiée pour que les deux longueurs soient égales en $U = 0$. Pour chaque valeur de l^0 , les bords rigides ne sont pas pris en compte.

On a donc pour chaque valeur de σ_{zz} une (ou deux) valeurs de U . En extrapolant la valeur de la contrainte entre chaque incrément, le calcul de δ pour $\sigma_{zz} \in [0; 11\text{GPa}]$ est effectué afin d'obtenir la loi cohésive pour le système considéré.

La figure 12c présente le tracé des lois cohésives obtenues pour les petits systèmes étudiés. La forme globale de la courbe est en accord avec nos attentes (figure 1b). On peut également remarquer que la valeur de σ_{zz}^{max} n'est pas la même suivant les cavités présentes le long du joint de grains. Par exemple, dans le cas de la 1ère configuration à 1 maille, les cavités sont plus grosses que celles de la 2ème configuration et de ce fait σ_{zz}^{max} est plus petite pour la 1ère configuration. Malgré ces légères différences, le système est fragile, et rompt sans émettre de dislocations pour toutes ces configurations de cavités testées.

On peut conclure de cela que pour un système fragilisé par la présence de cavités nanométriques, lorsque $\sigma_{zz} \sim 5\text{GPa}$, et que la déformation du système est $\varepsilon \sim 7\%$: le système est proche de la rupture fragile, ce qui est cohérent avec les simulations de fissures pour la configuration de cavité f.

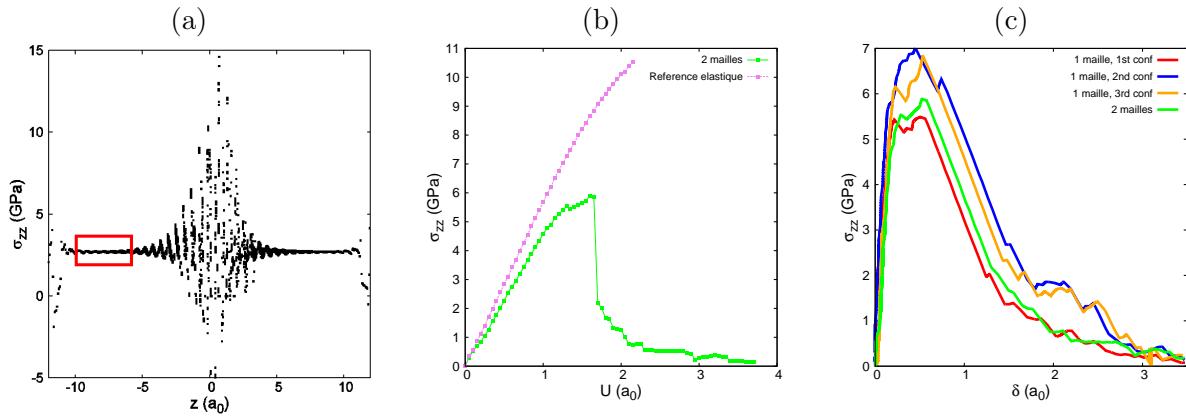


FIGURE 12 – (a) Mesures (pour la configuration "2 mailles avec cavités") de σ_{zz} en fonction de z , à $U=0.7$. En rouge est indiquée la zone dans laquelle on évalue la valeur de σ_{zz} pour un U donné (figure b). (b) Tracé de σ_{zz} en fonction de U pour la même configuration, ainsi que pour la référence élastique ayant 2 mailles suivant y . (c) Lois cohésives pour les différentes configurations.

3.3 Etude en Statique Moléculaire du système avec une cavité isolée

Nous avons ensuite voulu observer le comportement d'une cavité isolée (cf figure 10c)), pour discuter du rôle des interactions entre cavités dans leur croissance. Un nouvel essai de traction (U augmente) en Statique Moléculaire a été réalisé pour ce système.

Dans ce cas, le système n'est pas fragile. En effet, une dislocation apparaît à $U=1.30$ ($\varepsilon \sim 6\%$), lorsque le niveau de contrainte mécanique est de $\sigma = 6.1 GPa$, valeur pour laquelle la rupture fragile se produit avant l'apparition de la dislocation pour les autres systèmes. La boîte de simulation est représentée sur la figure 13, au moment de l'émission de la dislocation.

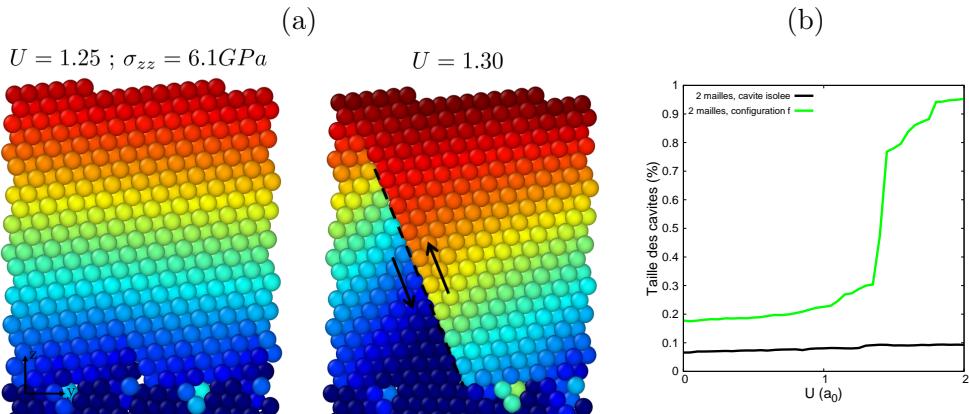


FIGURE 13 – (a) Apparition d'une dislocation entre $U=1.25$ et $U=1.30$. En couleur est codé le déplacement des atomes suivant z . Le plan sur lequel apparaît le cisaillement des atomes est représenté sur la figure. Il est visible que les atomes à droite de celui-ci ont pu se déplacer vers le haut, alors que ceux de gauche se sont déplacés vers le bas. (b) Evolution de la taille des cavités pour le système de 2 mailles. Unité arbitraire normalisée, 1 correspond à "complètement ouvert". On voit que la taille de la cavité isolée est constante au cours de la traction. Dans le cas où les cavités peuvent interagir (configuration f), elles croissent, et la rupture est visible lorsque la taille des cavités augmente brutalement.

Un programme calculant (en unité arbitraire) la taille de la cavité à chaque incrément de déplacement a été utilisé. En traçant l'évolution de la taille de la cavité (figure 13b) on peut voir que lorsque

elle est isolée, la cavité ne croit pas. De cela, on peut conclure que les interactions entre cavités sont fondamentales pour la rupture fragile athermique.

3.4 Activation thermique

On souhaite maintenant se placer juste en dessous du chargement mécanique critique, avant la rupture ou l'émission de dislocations, et observer l'apparition d'événements thermiquement activés permettant la croissance des cavités, et donc la rupture fragile.

La théorie de l'état de transition indique que la fréquence d'apparition de défauts thermiquement activés dans un solide [8] est donnée par

$$\Gamma = \nu_0 e^{-\frac{E_a}{kT}} \quad (8)$$

où ν_0 est la fréquence typique des atomes autour de leur point d'équilibre ($\sim 10^{13} Hz$), k est la constante de Boltzmann, T la température et E_a l'énergie d'activation (nécessaire à l'apparition d'un évènement thermiquement activé).

On sait que l'énergie d'activation diminue avec la contrainte. Typiquement, pour la 1ère configuration du système comportant une maille, la rupture se fait lorsque σ_{zz} dépasse 5GPa. Pour ces valeurs de contrainte, $E_a = 0$ et on peut observer des événements athermiques en Statique Moléculaire conduisant à la rupture athermique (cf figure 11).

On peut estimer la vitesse de déformation qui serait appliquée au système pour simuler la rupture, à \dot{U} imposé, en Dynamique Moléculaire. Le pas de temps typique pour intégrer le mouvement est $\Delta t = 1 fs$. On souhaite se placer à une déformation du système d'environ $\varepsilon \sim 6\%$ et à $T=500K$. Avec l'équation (8) on peut calculer qu'il faut environ 10^6 pas d'intégration pour observer un phénomène thermiquement activé (ayant une énergie d'activation $E_a = 0.4 eV$). Ainsi, pour atteindre un niveau de déformation de 6%, le taux de déformation serait $\dot{\varepsilon} \sim 10^{10} s^{-1}$. Experimentallement, les essais de tractions se font pour un taux de déformation $\dot{\varepsilon}_{exp} \sim 10^{-6} s^{-1}$, et au delà, la rupture fragile n'est pas observée. On utilise donc une autre stratégie qui est présentée dans la partie suivante.

3.5 Simulations sur le petit système en Dynamique Moléculaire

Dans les parties 2 et 3.2, nous avons pu observer la rupture fragile des systèmes ayant leur joint de grains endommagé par la configuration de cavité f. Cette partie présente l'étude du comportement de cette configuration en Dynamique Moléculaire. Les simulations ont été réalisées sur le système "2 mailles avec cavités" (fig.10).

Pour imposer une contrainte Σ_{zz} à la boîte de simulation, une force est imposée sur chaque atomes de la surface supérieure de la boîte (équation (5)). Afin de suivre l'évolution de la taille de la boîte, on définit l'allongement de la boîte U_z comme la moyenne du déplacement suivant z des atomes de la surface supérieure.

Le déroulement de la simulation est le suivant :

1. Le système est déformé par une traction quasistatique jusqu'à un niveau de déformation $\varepsilon \sim 6\%$ ($U=1.2 a_0$) afin de se placer à un chargement proche du chargement critique.
2. Mise en température du système (à U imposé) pendant un temps assez court pour ne pas que des phénomènes que l'on souhaiterait observer par la suite se produisent, mais assez long pour que la température se stabilise autour d'une valeur T souhaitée.
3. Une contrainte Σ_{zz} est appliquée à la boîte.

Ce procédé est appellé "fluage" : le suivi de l'allongement U_z (liée à la croissance des cavités) du système dans le temps, pour différents niveaux de contrainte constants Σ_{zz} et différentes températures T .

La valeur de Σ_{zz} a été choisie inférieure ou égale à 5GPa, niveau de contrainte auquel la rupture fragile ne s'est pas produite en Statique Moléculaire. Pour un système thermalisé à une température T , nous avons lancé simultanément plusieurs simulations à des niveaux de contrainte Σ_{zz} différents, situés entre 1 et 5 GPa, espacés de $\Delta\Sigma_{zz}=0.25\text{GPa}$. Sur la figure 14, le résultat de ces simulations est présenté sur en temps court.

Le premier cas, (fig. 14a), correspond à la température minimale que l'on peut imposer au système.

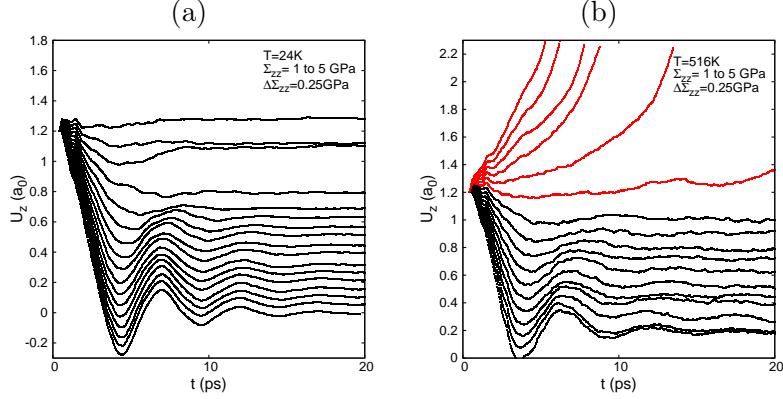


FIGURE 14 – Tracé de l'allongement de la boîte de simulation U_z en fonction du temps, pour différents niveaux de contraintes, après thermalisation à une température T , et une traction statique $U=1.2a_0$. Niveaux de contraintes croissant de bas en haut (de 1 à 5GPa par incrément $\Delta\Sigma_{zz}=0.25\text{GPa}$). (a) $T=24\text{K}$, pas de rupture fragile. (b) $T=516\text{K}$, rupture fragile pour les courbes rouges.

On peut voir qu'aucun niveau de contrainte n'a amené à la rupure fragile, de la même manière qu'en Statique Moléculaire (où $T=0\text{K}$). L'allongement de la boîte se stabilise assez rapidement, à des valeurs cohérentes avec les essais de traction réalisés dans la partie 3.2 (en statique, U est imposé et on peut mesurer σ_{zz} , et en dynamique Σ_{zz} est imposé et on mesure U_z). On peut également voir qu'une fois la contrainte imposée, la boîte oscille suivant z, puis ces oscillations disparaissent : la force de frottement visqueuse ajoutée sur les atomes du bord supérieur est donc efficace.

A $T=516\text{K}$ (fig. 14b) le comportement est différent, l'augmentation de la température a un effet sur le système. En rouge sont tracés les résultats des simulations durant lesquelles une rupture fragile s'est produite. On peut voir que lorsqu'il y a rupture, plus le niveau de contrainte est élevé, plus l'allongement de la boîte est rapide.

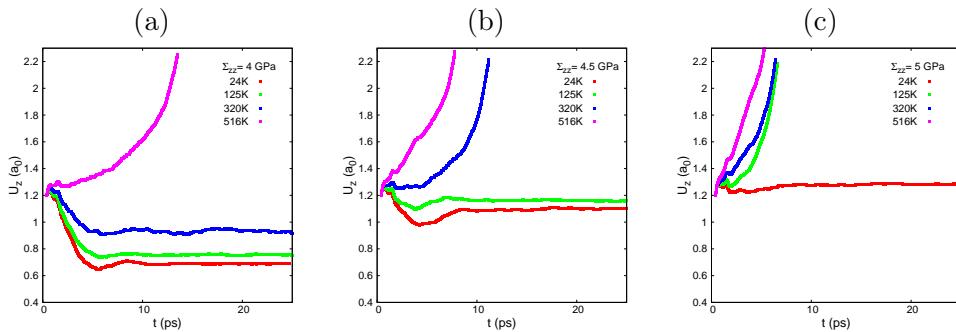


FIGURE 15 – Allongement de la boîte U_z en fonction du temps. Simulation à niveaux de contrainte Σ_{zz} constants, sur lesquels on observe l'influence de la température pour la rupture fragile.(a) $\Sigma_{zz}=4\text{GPa}$. (b) $\Sigma_{zz}=4.5\text{GPa}$. (c) $\Sigma_{zz}=5\text{GPa}$.

Afin de préciser l'effet de la température sur le comportement du système, des simulations ont

été réalisées à Σ_{zz} constant, à différentes températures. Le résultat est présenté sur la figure 15. Pour chaque niveau de contrainte, le rupture se produit à 516K, mais pas à 24K. En balayant d'autres valeurs de températures intermédiaires on peut voir que pour une contrainte donnée la température active la rupture. Par exemple, sur la figure 15b, la rupture est activée thermiquement à partir d'un seuil de température situé entre 125K et 320K.

Grâce à cette étude, nous avons pu observer l'apparition de seuils de température permettant l'apparition de la rupture fragile pendant le temps de la simulation.

Plutôt que de chercher une valeur précise de ce seuil de température, nous nous sommes placés à une température fixe $T=516K$, à laquelle des événements thermiquement activés semblent se produire, et avons voulu caractériser plus précisément le seuil de contrainte auxquel la rupture se produit.

Pour cela, des simulations plus longues ont été réalisées pour $\Sigma_{zz}=3.50\text{GPa}$ et $\Sigma_{zz}=3.75\text{GPa}$, les deux valeurs de contrainte encadrant a priori la contrainte critique menant à la rupture fragile.

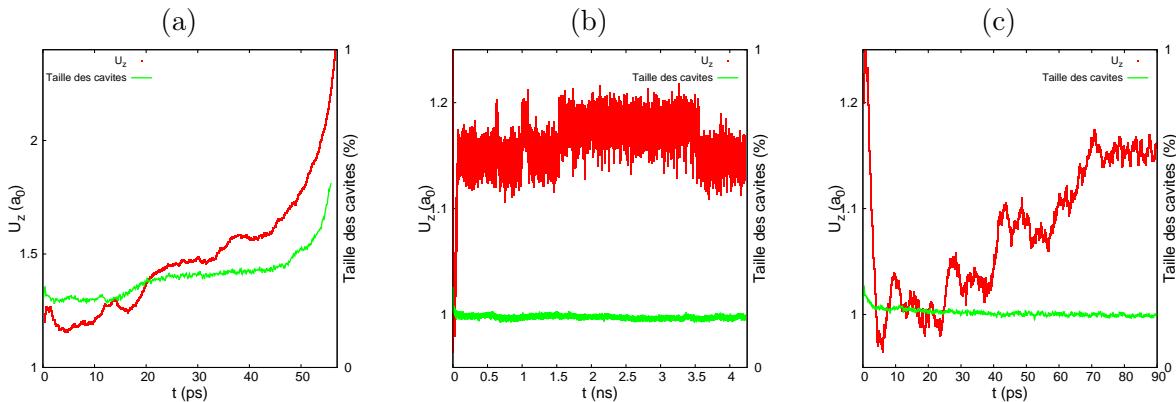


FIGURE 16 – Suivi plus long de l'allongement de la boîte et de la taille des cavités à $T=516K$. (a) $\Sigma_{zz}=3.75\text{GPa}$. Rupture fragile du système. (b),(c) $\Sigma_{zz}=3.5\text{GPa}$. Stabilisation de l'allongement et de la taille des cavités, pas de rupture fragile et apparition de dislocations à $t\sim40\text{ps}$.



FIGURE 17 – Motif de cavité projeté sur le joint de grains à $T=516K$ et $\Sigma_{zz}=3.75\text{GPa}$. Coalescence thermiquement activée des cavités conduisant à la rupture fragile du matériau.

Lorsque $\Sigma_{zz}=3.75\text{GPa}$, on peut voir (fig. 16a) que l'allongement de la boîte augmente de manière quasi-constante jusqu'à $t\sim45\text{ps}$, avant de croître de manière brutale, lors de la rupture finale. Ce profil de courbe est typique du fluage, en effet, les courbes d'essais expérimentaux de fluages sont caractérisées par un régime linéaire assez long (fluage secondaire), puis d'une augmentation rapide juste avant la rupture (fluage tertiaire).

En suivant la taille des cavités au cours du temps, on remarque que celles-ci ne croissent pas aussi rapidement que la boîte ne s'allonge. Cela provient du fait que les événements thermiquement activés apparaissent de manière ponctuelle. Les événements intervenant aux alentours de 50ps sont illustrés sur la figure 17. On peut y voir la coalescence des plus grosses cavités entre elles, menant à la rupture fragile.

Ainsi, à $\Sigma_{zz}=3.75\text{GPa}$ et $T=516\text{K}$, nous avons pu observer des mécanismes de rupture thermiquement activée dans la FPZ de ce système.

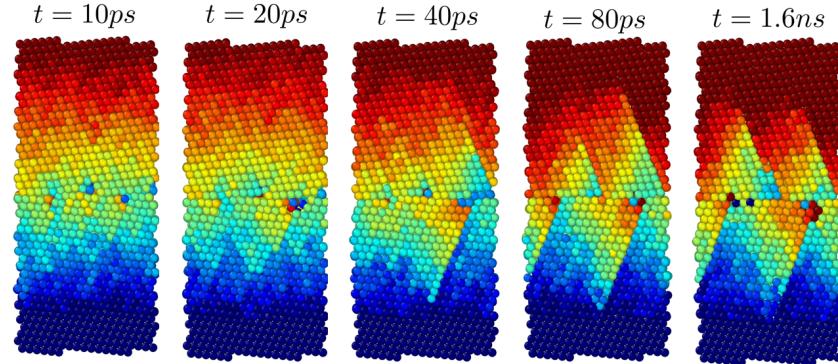


FIGURE 18 – Vu de côté des boîtes de simulation à $T=516\text{K}$ et $\Sigma_{zz}=3.5\text{GPa}$. Apparition et propagation de dislocations thermiquement activées.

En se plaçant à $\Sigma_{zz}=3.50\text{GPa}$, nous n'avons pas observé de rupture fragile. Sur la figure 16b, on peut voir que l'allongement de la boîte augmente jusqu'à atteindre une valeur de $U_z \sim 1.15a_0$ à laquelle elle se stabilise. De plus, la taille des cavités est constante.

Cependant, au début de la simulation ($t < 90\text{ps}$), avant que le système ne se stabilise (fig. 16c), il s'est dans un premier temps allongé. Durant cette montée (assez lente), des dislocation thermiquement activées ont été émises depuis le centre de la boîte. Sur la figure 18, à $t=20\text{ps}$, on peut voir l'émergence de dislocations qui se propagent ensuite le long de plans de glissement facile. Sur le tracé de U_z (fig. 16b), un palier est présent à $t \sim 1.5\text{ns}$. Ce palier correspond à la propagation d'une des dislocations (au centre de la boîte), qui permet à la boîte de s'allonger.

Dans ce cas, la rupture fragile n'a pas lieu, car la déformation critique à partir de laquelle les cavités grossissent et coalescent ($U_z \sim 1.3a_0$) n'a pas été atteinte.

A travers ces simulations un seuil de contrainte a été trouvé pour lequel la rupture fragile se produit. Il s'agit d'un niveau de chargement mécanique inférieur à celui observé en régime athermique, auquel des événements thermiquement activés ont conduit à la rupture fragile de systèmes au joint de grains endommagé par la configuration de cavité f.

Conclusion et perspectives

Au cours de ce stage, par la pratique de la Statique et de la Dynamique Moléculaire, nous avons pu observer la rupture fragile d'un système pourtant intrinsèquement ductile, par l'ajout de cavités nanométriques modélisant la fragilisation d'un joint de grains par l'hydrogène.

Pendant la première partie du stage, nous avons pu déterminer un encadrement de la densité critique de ces cavités pour causer la rupture fragile d'une fissure placée sur le joint de grains d'un cristal d'aluminium. L'étude plus approfondie d'une configuration de cavités rendant le système fragile a ensuite été menée dans un premier temps à température nulle (statique moléculaire) sur de plus petits systèmes ne comportant pas de fissure. Les niveaux de contraintes typiques, et la loi cohésive des systèmes ont ainsi été déterminés. En augmentant ensuite la température, nous avons pu observer et quantifier le rôle d'événements thermiquement activés dans la rupture fragile de tels systèmes. La température a permis d'abaisser le seuil de contrainte de 5-7GPa à 3.75GPa. Il est donc pertinent d'étudier les événements thermiquement activés pour la rupture intergranulaire.

Afin d'étayer l'étude de la FPZ menées durant ce stage, un certain nombre de perspectives est envisageable. L'ajout d'une contrainte empêchant le cisaillement des atomes afin d'empêcher les dislocations thermiquement activées pourrait être effectuée. Cela permettrait, par exemple, d'étudier la croissance d'une cavité isolée en Dynamique Moléculaire, à contrainte mécanique imposée. L'analyse plus fine des mécanismes (glissement, nucléation de paires lacune-interstiel, migration de lacune) pourrait également être réalisée sur des petits systèmes. Le calcul des barrières d'énergie sous contrainte permettrait de modéliser la rupture à plus basse température et plus basses contraintes (sur des échelles de temps plus longues à partir de la Transition State Theory). Cela permettrait de se rapprocher des conditions expérimentales et de proposer des mécanismes réalistes.

Enfin, un des objectifs du stage, qui n'a pas pu être mené à bien, était la détermination d'une loi contrainte-ouverture dépendante du temps. La détermination d'une telle loi serait très enrichissante, car à partir de celle-ci, il est possible de calculer la vitesse d'avancé d'une fissure à partir de la théorie élastique des dislocations. Un ordre de grandeur de la vitesse de fissuration permettrait une première confrontation avec les résultats expérimentaux.

Références

- [1] Vasily V. Bulatov and Wei Cai. *Computer simulations of dislocations*. Oxfords series on materials modelling, 2006.
- [2] Murray S. Daw and M. I. Baskes. Embedded-atom method : Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals. *Phys. Rev. B*, 29 :6443, 1984.
- [3] Rebecca Janisch. *Ab initio tensile tests of Al bulk crystals and grain boundaries*, volume 81. 2010.
- [4] Brian Lawn. *Fracture of brittle Solids - Second Edition*. Cambridge Solid State Science Series, 1993.
- [5] S. J. Zhou P. Gumbsch and B. L. Holian. Molecular dynamics investigation of dynamic crack stability. *Phys. Rev. B*, 55(6) :3445–3455, 1997.
- [6] James R. Rice and Jian-Sheng Wang. Embrittlement of interfaces by solute segregation. *Materials Science and Engineering*, A107 :23–40, 1989.
- [7] Emmanouil Vamvakopoulos and Dôme Tanguy. Equilibrium vacancy concentrations in Al- $\Sigma=33(554)[110]$ by grand canonical monte carlo simulations. *Phys. Rev. B*, 79 :094116, 2009.
- [8] Georges H. Vineyard. Frequency factors and isotope effects in solid state rate processes. *Phys. Chem. Solids*, 3 :121–127, 1957.
- [9] J. Weertman. *Dislocation Based Fracture Mechanics, reprint edition*. World Scientific Publishing, Singapore, 1998.

A Annexe : Scaling, mesure du temps d'exécution du programme de simulation

Afin de pouvoir simuler le plus long temps physique possible, un grand nombre de pas d'intégrations a du être effectué. Au cours d'un pas d'intégration, le programme doit calculer l'interaction de chaque particule avec tous ses voisins. Ce procédé étant long, on divise la boîte en cellules. La boucle ne se fait plus sur toutes les particules, mais sur toutes les cellules. Pour chaque cellule, on calcule, l'interaction des atomes des cellules voisines et de la cellule courante avec la particule considérée.

Afin d'optimiser ce procédé, la librairie openMP a été utilisée pour parralléliser le programme, et effectuer les calculs de chaque cellules indépendamment. Cette librairie permet de définir un nombre de *threads* (ou sous-processus). Le nombre de threads nous donne le nombre de branches d'exécutions en parrallèle.

Au cours de ce stage, nous avons utilisé deux modèles d'ordinateur : un ayant 2 core (4 processeurs), et l'autre 12. Afin de mesurer l'impact de la parrallélisation sur le temps d'exécution, nous avons fait varier le nombre de threads, et la taille de cellule, puis le programme a été exécuté sur les deux ordinateurs pour mesurer le temps d'un pas d'intégration. Ces tests ont été effectués sur le petit système ayant une maille CSL suivant y.

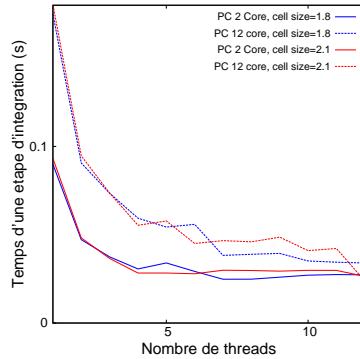


FIGURE 19 – Scaling, pour deux tailles de cellules, avec deux PC différents.

Sur la figure 19, on peut voir que le temps d'exécution diminue lorsque le nombre threads augmente. Nous avons tout d'abord fait ces calculs pour une taille de cellule de 1.8. Lors du passage de 1 à 2 threads, le temps (pour chaque PC) est environ divisé par deux, cela est conforme à nos attentes quant à la parralélisation. Pour 12 threads, le temps est divisé par 3.3 sur le PC à 2 core, et 5.14 sur le PC à 12 core.

Pour ce dernier, nous nous serions attendus à avoir un rapport de 12, au vu du nombre de processeurs. La différence vient du fait que si le nombre de cellules n'est pas un multiple du nombre de threads, quelques cellules seront exécutées sequentiellement, et le temps d'exécution ne sera pas optimal. Afin d'optimiser ce temps, la taille de cellule a été modifiée (taille de cellule = 2.1), afin d'avoir exactement un mutliple de 12 cellules dans notre système. Dans ce cas, on remarque que pour le PC ayant 12 core, le temps d'exécution diminue fortement si on passe de 11 à 12 threads.

Grâce à cette optimisation du temps de calcul, le temps typique pour réaliser une simulation de Dynamique Moléculaire sur le petit système (2 mailles CSL) pendant 10^6 pas d'intégration est d'environ 8 heures.