

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR

ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE



UNIVERSITE DU 20 AOUT 1955- SKIKDA

FACULTE DES SCIENCES

DEPARTEMENT DES SCIENCES DE LA MATIERE

MEMOIRE

PRESENTE POUR OBTENIR LE DIPLOME DE

MAGISTER

SPECIALITE : PHYSIQUE

OPTION : MATIERE CONDENSEE

Simulation de la croissance normale de grains. Comparaison entre les méthodes Monte- Carlo et la Dynamique Moléculaire.

PAR

FISLI Meriem

Soutenu le : 11/12/2014

Devant le jury :

<u>Président</u>	K. KHOUNFAIS	MCA	Université de Skikda
<u>Rapporteur</u>	N. MAAZI	Pr.	Université de Skikda
<u>Examineurs</u>	R. BOULECHFAR	MCA	Université de Skikda
	A. KABIR	MCA	Université de Skikda
	A. BOUMAIZA	MCA	Université de Jijel

Table des matières

Introduction générale	1
Chapitre I \ Evolution de la microstructure des matériaux	
I.1. Introduction	3
I.2. Principe et mécanisme de la recristallisation	3
I.2.1. Restauration	3
I.2.2. Recristallisation primaire	4
I.2.3. Croissance normale.....	6
I.3. Propriétés des joints de grains	6
I.3.1. Introduction	6
I.3.2. Approche géométrique d'un joint de grains	7
I.3.3. Les paramètres cristallographiques de désorientation.....	9
I.3.4. Réseau de coïncidence CSL	9
I.4. Critère géométrique de spécialité	10
I.5. Migration des joints de grains	11
I.5.1. Introduction	11
I.5.2. Différents Types des joints de grains	11
I.5.3. Energie du joint de grains	12
I.5.4. Mobilité du joint de grains	12
I.6. Force de migration des joints de grains	13
I.6.1. Force motrice	13
I.6.2. Force de freinage	15
I.7. Modélisation de la croissance des grains	16
I.7.1. Stabilisation aux points triples	16
I.7.2. Modèle de Louat.....	18
I.7.3. Modèle de Hillert.....	20

I.7.4. Les modèles déterministes	22
Références bibliographiques.....	24
Chapitre II \ Techniques de simulation	
II.1. Les échelles de la simulation.....	28
II.2. Les différentes méthodes de simulation aux différentes échelles	29
II.3. Technique Monte Carlo (MC).....	30
II.3.1. Historique	30
II.3.2. Monte Carlo de Metropolis	31
II.3.3. Générateur de nombres aléatoires	32
II.3.4. Algorithme d'intégration.....	33
II.3.5. Le temps dans la méthode Monte Carlo	34
II.4. Méthode de simulation Dynamique Moléculaire (DM).....	34
II.4.1. Description de la méthode DM.....	34
II.4.2. Principe.....	35
II.4.3. Mise en œuvre.....	36
II.4.4. Les algorithmes d'intégration temporelle.....	37
II.4.4.1. L'algorithme de Verlet.....	37
II.4.4.2. L'algorithme prédicteur-correcteur de Gear.....	37
II.4.5. Les paramètres initiaux de la simulation DM.....	38
II.4.5.1. Boite de simulation et conditions aux limites périodiques.....	38
II.4.5.2. Choix du pas de temps.....	39
II.4.5.3. Maintien de la température en dynamique moléculaire.....	39
II.4.6. Potentiels d'interaction atomiques.....	40
II.4.6.1. Introduction.....	40
II.4.6.2. Potentiels de paires.....	40
II.4.6.2.1. Potentiel de sphères dures.....	41
II.4.6.2.2. les potentiels de paires complets.....	41
II.4.6.2.2.1. Potentiel de lennard-Jones.....	42

II.4.6.2.2.2. Potentiel de Morse.....	43
Références bibliographiques.....	44
Chapitre III \ Simulation de la croissance des grains par les deux techniques MC et DM	
III.1. Introduction.....	46
III.2. Simulation de la croissance normale des grains par la technique Monte Carlo.....	48
III.3. Simulation de la croissance normale des grains par la Dynamique Moléculaire...52	
III.4. Comparaison entre méthode de Monte Carlo et Dynamique Moléculaire	57
Conclusion et perspectives.....	60

Introduction Générale

Introduction

Les sciences sont toujours caractérisées par un partage entre l'expérience et la théorie. Dans l'expérience le système est soumis à certaines mesures qui donnent des résultats sous forme numérique. En théorie un modèle du système est construit, généralement sous forme d'un ensemble d'équations mathématiques; la validité du modèle repose sur son habilité à décrire l'évolution du système dans des cas bien précis introduisant généralement un grand nombre de simplifications indispensables pour rendre le problème plus simple.

La simulation est une procédure de recherche scientifique qui consiste à réaliser une reproduction artificielle du phénomène réel, que l'on désire étudier, préalablement décrit par un ensemble de modèles, ensuite à observer le comportement de cette reproduction. Ainsi elle joue un rôle très important dans divers domaines de la science. Les méthodes de simulation sont largement connues comme outils puissants pour l'étude des systèmes réels. Elles donnent à cet effet une nouvelle dimension à l'investigation scientifique de nombreux phénomènes physiques et techniques.

En science des matériaux des progrès importants ont pu être réalisés en combinant la simulation numérique à plusieurs échelles et l'expérimentation. En effet, grâce à l'augmentation permanente de la puissance des supercalculateurs ainsi que de la connaissance grandissante des comportements des matériaux, les méthodes multi-échelles ont récemment émergé comme étant un outil de choix pour relier le comportement physique des matériaux à l'échelle atomique la plus fine avec l'échelle macroscopique. Les méthodes multi-échelles permettront certainement d'allier approche expérimentale, approche théorique et simulation numériques dans le but de mieux comprendre le comportement des matériaux.

Les deux principales techniques utilisées dans le domaine de la simulation en physique de la matière condensée sont la méthode de Monte Carlo (MC) et la Dynamique Moléculaire (DM). La simulation de la croissance des grains par ces deux méthodes repose sur une description de la configuration initiale (microstructure) de la matrice primaire.

En plus de la simulation MC largement utilisé à l'échelle mésoscopique (échelle de grains), le but de ce travail est d'introduire une autre technique de simulation (DM) pour faire une comparaison entre les deux techniques.

Ce mémoire est organisé de la manière suivante:

- ✓ **Le premier chapitre** est consacré à la description des processus de recristallisation et croissance des grains. En plus, une caractérisation des paramètres qui contrôlent les différentes étapes de l'évolution de la microstructure est introduite.

- ✓ **Le deuxième chapitre** expose les diverses techniques utilisées en simulation aux différentes échelles, avec un accent particulier sur les deux méthodes de Monte Carlo (MC) et la Dynamique Moléculaire (DM).
- ✓ **Le dernier chapitre** contient nos résultats de simulation de la croissance des grains réalisée par MC et DM. Une comparaison sera faite pour ces deux méthodes de simulation.

CHAPITRE I

EVOLUTION DE LA MICROSTRUCTURE

DES MATERIAUX

Chapitre I \ Evolution de la microstructure des matériaux**I.1. Introduction**

La microstructure contrôle les propriétés des matériaux, quelles soient électriques, mécaniques, magnétiques ou autres. Elle dépend de la chimie du matériau et également de toute la gamme de transformation depuis la solidification, à savoir les traitements thermomécaniques, les traitements mécaniques et thermiques. Tout au long de la gamme de fabrication, les transformations de phases, la déformation plastique des grains, la restauration et la recristallisation des grains écrouis, la croissance normale ou anormale des grains, influent sur la microstructure finale des matériaux [1].

I.2. Principe et mécanisme de la recristallisation

Le métal écroui emmagasine un excès d'énergie. Pendant le recuit, cette énergie sera éliminée progressivement. A ce stade, plusieurs processus interviennent : la restauration, la recristallisation primaire, la croissance normale et/ou la recristallisation secondaire.

I.2.1. Restauration

La restauration est définie comme le rétablissement des propriétés physiques ou mécaniques d'un métal écroui sans modification apparente de sa structure. C'est un traitement qui est effectué rapidement à une température inférieure à celle de la recristallisation.

La restauration se fait en plusieurs étapes. Dans un premier temps, on assiste à une réorganisation de la sous-structure de dislocations. En favorisant la montée des dislocations par élévation de la température, on diminue la densité totale de dislocations par annihilation. Les dislocations et les parois se structurent pour former des sous-joints (Fig. I.1), c'est l'étape de polygonisation [2].

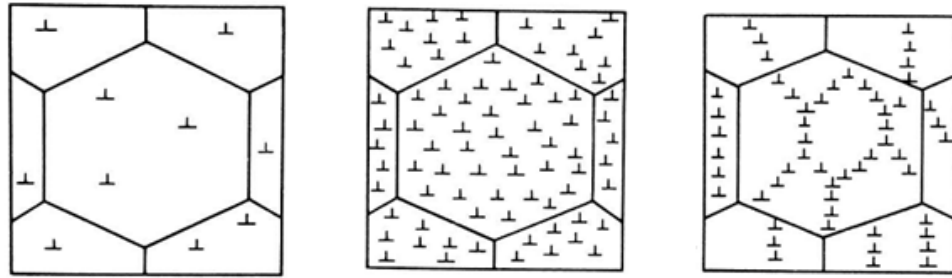


Figure I.1. Formation de sous-joints délimitant des sous-grains (polygonisation)

Puis, les sous-grains évoluent par mouvements des sous joints pour atteindre une structure minimisant l'énergie stockée. Chaque grain présente donc une sous-structure constituée de cellules ou de sous-grains désorientés de quelques degrés par rapport à l'orientation initiale du grain. Cette restauration peut être influencée par le taux de déformation, la température de recuit et les caractéristiques du matériau (énergie de faute d'empilement, éléments en solution solide et précipités) [3-4].

I.2.2. Recristallisation Primaire

La recristallisation primaire correspond à l'absorption des dislocations par les joints de grains. Elle est caractérisée par l'apparition de « germes » qui se développent aux dépens de la matrice écrouie qui les entoure. L'énergie de déformation stockée conduit à la migration des joints de grains de forte désorientation (croissance). La croissance se poursuit jusqu'à ce qu'ils arrivent au contact les uns des autres (Fig. I.2). Les nouveaux grains possèdent des orientations tout à fait différentes de celles de la matrice d'origine. On parlera d'une texture de recristallisation primaire, qui sera différente de celle de la matrice déformée [5- 6].

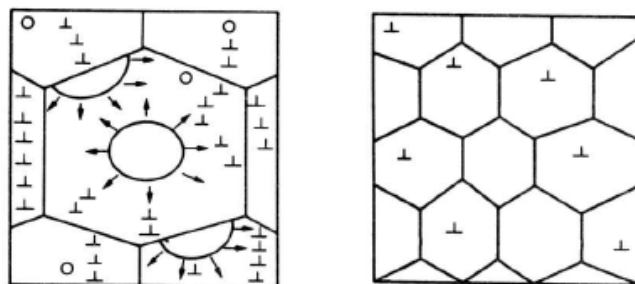


Figure I.2. Formation et croissance de nouveaux grains.

Pour que la recristallisation se produise, il faut que l'on ait simultanément :

- Une instabilité thermodynamique (un germe de recristallisation) ;
- Une instabilité cinétique (un joint de grain de forte désorientation c'est-à-dire une différence de mobilité entre le germe et son voisinage) ;
- Une instabilité mécanique (un gradient de densité de dislocations de part et d'autre de la frontière du germe potentiel).

Si l'une de ces trois conditions n'est pas remplie, la restauration se poursuit. En effet, les mécanismes de restauration et de recristallisation étant liés par la diminution de l'énergie stockée.

La recristallisation ne peut avoir lieu que si la restauration est bloquée. En pratique, il est difficile de dissocier la restauration de la recristallisation.

La recristallisation est caractérisée de façon générale, par la vitesse de recristallisation (fraction volumique recristallisée 'v' par unité de temps). Cette vitesse est donnée :

$$\frac{dV}{dt} = \dot{N}.G \quad (\text{I. 1})$$

où \dot{N} est le nombre de germes de nouveaux grains par unité de temps et 'G' leur vitesse de croissance volumique. Comme ces deux quantités dépendent du temps, la cinétique de recristallisation ne suit pas une fonction simple. Cependant, on exprime souvent la fraction volumique recristallisée sous la forme de l'équation de Kolmorov-Johnson-Mehl-Avrami (KJMA):

$$V = 1 - \exp\left(- (kt)^n\right) \quad (\text{I. 2})$$

où 'n' est une constante dont la valeur est comprise entre 1 et 2 et 'k' est un facteur dépendant de la température [7].

Les mécanismes de restauration et de recristallisation dépendent considérablement de l'orientation des grains et de l'énergie stockée [8]. Ils sont également influencés par la température de recuit, le taux d'écrouissage, la taille de grains avant l'écrouissage, les précipités et les éléments en solution solide.

I.2.3. Croissance normale

Après la recristallisation primaire, la structure n'est toujours pas stable. De ce fait, une croissance des grains se produit, diminuant encore l'énergie emmagasinée dans le matériau au niveau des joints de grains. La force motrice pour la croissance est de deux ordres de grandeur inférieure au phénomène précédent. La vitesse de migration des joints de grains sera donc beaucoup plus faible que pendant la recristallisation primaire [9].

Deux types de croissance peuvent avoir lieu. Tout d'abord, il peut se développer une croissance normale où la microstructure change de manière uniforme. Dans ce cas, il y a une faible gamme de tailles et de formes de grains. De plus, l'allure de l'enveloppe de la fonction de distribution de la taille des grains est, en général, indépendante du temps.

Il existe néanmoins des circonstances pour lesquelles la microstructure devient instable et quelques grains grossissent exagérément; il s'agit de la "croissance anormale" de grains.

I.3. Propriétés des joints de grains

I.3.1. Introduction

L'idée à la base d'un ordre géométrique dans les joints de grains dérive d'une loi générale en physique : entre deux objets physiques (ici deux grains) ou entre deux quantités physiques en relation l'un(e) à l'autre, il existe toujours un invariant. Etablir un ordre géométrique, c'est alors rechercher les invariants entre les grains 1 et grain 2 désorientés et/ou translétés. La description des modèles géométriques qui se sont développés sur la base de cette invariance implique, tout d'abord, de préciser les caractéristiques géométriques des joints de grains puis de déterminer les opérations de symétrie formé par deux grains adjacents interpénétrés [10].

I.3.2. Approche géométrique de structure des joints de grains

Le joint de grains est l'interface entre deux cristaux de même structure et d'orientation différente. Les orientations des cristaux peuvent être repérées par deux référentiels $T_1(Ox_1y_1z_1)$ et $T_2(Ox_2y_2z_2)$ de même origine "O" liés respectivement à chacun des deux réseaux cristallins [11]. D'un point de vue géométrique, un joint de grains possède cinq paramètres :

- Trois paramètres définissent la désorientation relative de deux cristaux. Ce sont l'angle et l'axe de la désorientation (R, θ) (Fig. I.3) ou les trois angles d'Euler (Fig. I.4) qui permettent d'amener en coïncidence les deux trièdres formés dans les deux cristaux par trois directions cristallographiques identiques ;
- Les deux autres paramètres définissent l'orientation du plan du joint par rapport à l'un de trièdres [12].

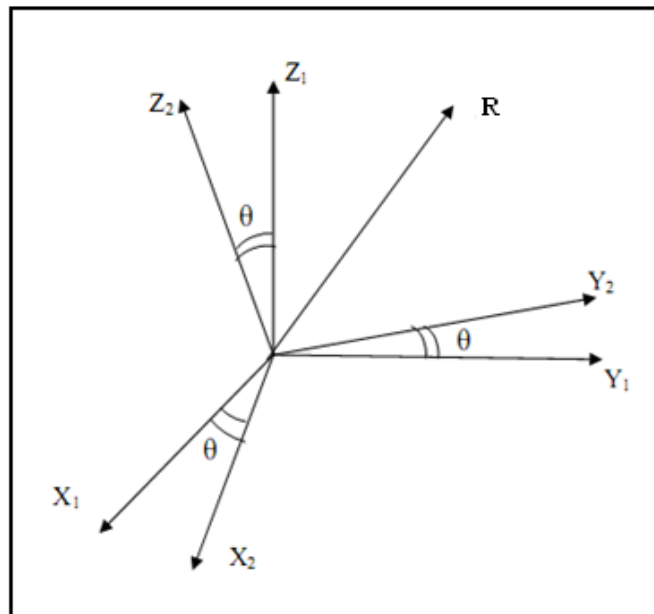


Figure I.3 : Axe et angle (R, θ) de désorientation entre deux cristaux.

I.3.3. Les paramètres cristallographiques de désorientation

A partir de la rotation entre les deux grains adjacents, on peut calculer toutes les rotations équivalentes, en utilisant la méthode des quaternions unitaires, mise au point par H. Grimmer [13] et développée par R. Bonnet [14]. Cette méthode consiste à associer aux 4 paramètres (θ, u, v, w) un élément du groupe Q des quaternions unitaires, soit :

$$Q = (\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3, \alpha_4) \quad (\text{I. 3})$$

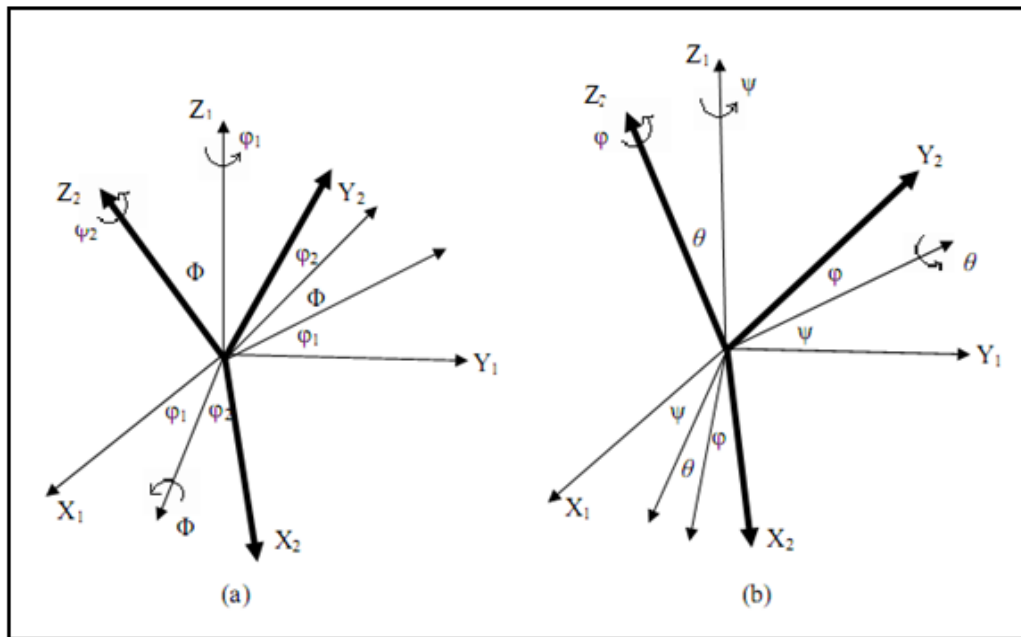


Figure I.4. Désorientation entre deux grains dans l'espace d'Euler :

(a) formalisme de Bunge ($\varphi_1, \varphi, \varphi_2$) ;

(b) formalisme de Roe (ψ, θ, φ).

Ces éléments sont donnés par :

$$\alpha_1 = \cos \frac{\theta}{2} \quad (\text{I. 4})$$

$$\alpha_2 = \frac{u}{\sqrt{(u^2 + v^2 + w^2)}} \sin \frac{\theta}{2} \quad (\text{I. 5})$$

$$\alpha_3 = \frac{v}{\sqrt{(u^2 + v^2 + w^2)}} \sin \frac{\theta}{2} \quad (\text{I. 6})$$

$$\alpha_4 = \frac{w}{\sqrt{(u^2 + v^2 + w^2)}} \sin \frac{\theta}{2} \quad (\text{I. 7})$$

Par des combinaisons linéaires des éléments $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ et α_4 , nous obtenons les 6 quaternions qui définissent toutes les rotations cubiquement équivalentes. L'angle de désorientation correspond à l'élément de plus grande valeur absolue α_0 parmi les 24 possibilités :

$$\theta_0 = 2 \arccos(\alpha_0) \quad (\text{I. 8})$$

Aux trois autres éléments du quaternion sont associés les indices (u_0, v_0, w_0) de l'axe de rotation, tels que $u_0 > v_0 > w_0 > 0$, ce qui situe l'axe dans le triangle stéréographique standard (100, 110, 111). La désorientation définie par θ_0 et $[u_0, v_0, w_0]$ est unique [15].

I.3.4. Réseau de coïncidence C.S.L.

Le degré de coïncidence est un moyen pour caractériser la désorientation entre les cristaux adjacents. La première utilisation de ce paramètre pour décrire le joint remonte aux travaux de Kronberg et Wilson [16]. Ces derniers ont constaté, en étudiant les textures de recristallisation secondaire dans le cuivre, que l'orientation des germes n'était pas aléatoire. En effet, certaines désorientations, relativement aux grains parents, sont privilégiées au cours de la recristallisation. Afin de les exprimer, ils ont utilisé deux types de représentations :

- 1- l'expression classique : angle et axe rotation ;
- 2- un modèle moins courant : degré de coïncidence des deux grains (cristaux) adjacents séparés par le joint de grains.

Ce modèle, purement cristallographique, a ensuite été repris et formalisé par Brandon et al. [17], Brandon [18] et Ranganathan [19]. Le nom attribué au réseau de coïncidence constitué par les nœuds communs aux deux réseaux adjacents est C.S.L. « Coincidence Site Lattice ». Le degré de coïncidence, noté Σ , est le rapport entre le volume de la maille de coïncidence C.S.L. et le volume de la maille simple du cristal. Plus le degré de coïncidence est élevé, plus Σ est faible.

$$\Sigma = \frac{\text{volume de la maille de coïncidence}}{\text{volume de la maille élémentaire}} \quad (\text{I. 9})$$

La figure I.5 représente un joint $\Sigma 5$ avec un angle de rotation égal 37° pour deux réseaux carrés.

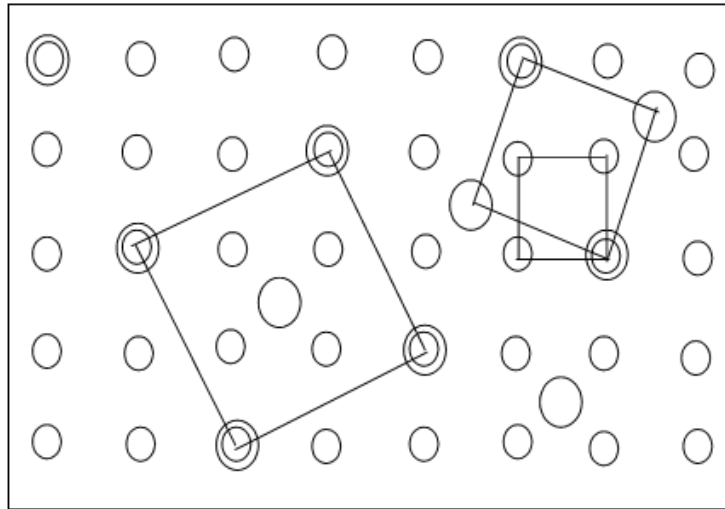


Figure I.5. Réseau de coïncidence $\Sigma 5$. Mailles élémentaire désorientées (petit carré) et maille du réseau de coïncidence (grand carré) [20].

I.4. Critère géométrique de spécialité

Le critère le plus utilisé est celui de Brandon, qui détermine la déviation maximale acceptable pour qu'un joint de grains soit identifié en tant que C.S.L. :

$$\Delta\theta_c = \theta_0 / \sqrt{\Sigma} \quad (\text{I. 10})$$

Σ étant l'indice de coïncidence et $\theta_0 = 15^\circ$ est la limite angulaire des joints de faible désorientation L.A. (Low Angle) [21].

Ainsi, d'après ce critère, les joints de faibles désorientations ($< 15^\circ$) sont des $\Sigma 1$. Par ailleurs les parois de macles cohérentes, c'est-à-dire celles ayant comme plan un des plans denses du réseau cubique à faces centrées, sont un cas particulier de joints $\Sigma 3$.

Les joints de grains de type C.S.L. ont suscité beaucoup d'intérêt dans la littérature. Ce formalisme fournit incontestablement un outil très pratique permettant de décrire la nature des joints de grains tenant compte des symétries, notamment dans le système cubique.

I.5. Migration des joints de grains

I.5.1. Introduction

Le phénomène de croissance est contrôlé par la migration des joints de grains. Cette migration implique que certains atomes, dont l'arrangement correspond initialement au réseau de l'un des deux cristaux, vont se trouver disposés suivant le réseau de l'autre cristal. Il y a donc une réorganisation des atomes au niveau du joint, la migration de ces derniers est équivalente au transfert d'atomes d'un grain vers l'autre.

I.5.2. Types des joints de grains

Du point de vue énergétique, les joints de grains sont classés généralement en deux groupes :

- les joints à faible désorientation ($\theta < 15^\circ$) et les joints à grand angle proches d'un état de coïncidence, ces joints correspondent à des minima d'énergie;
- les joints généraux, dans lesquels aucune périodicité ne peut être révélée (ce qui n'exclut pas un certain degré d'organisation) ; ces joints possèdent une grande énergie (Fig. I.6).

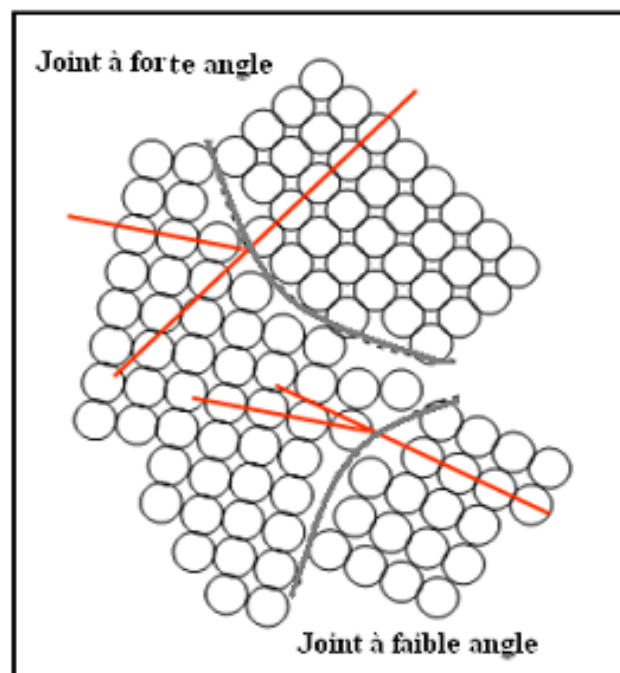


Figure I.6 : Joint de grains à forte angularité et Joint de grains à faible angularité.

I.5.3. Energie du joint de grains

La croissance de grains qu'elle soit normale ou anormale dépend de l'énergie de joint qui tend à réduire l'aire totale des joints de grains. Cette énergie intervient dans la force de migration et, en présence de précipités, dans la force de freinage. Il est bien établi que la cohésion théorique des joints de grains apparaît liée à l'énergie intergranulaire, qui dépend essentiellement des paramètres cristallographiques définissant le joint et des ségrégations qui s'y produisent [22]. On sait notamment que les joints à faible désorientation et les joints de coïncidence ont une faible énergie, relativement aux joints généraux. L'énergie du joint est donc une propriété qui dépend de sa structure [23]. Cette hypothèse a servi de point de départ au modèle quantitatif proposé dès 1950 par Read et Schokley [24] pour évaluer l'énergie des sous-joints en fonction de leur structure (décrite en termes de dislocations) et de leur désorientation. Le modèle a été perfectionné par Brokman et Balluffi [25] pour rendre compte qualitativement des minima énergétiques associés aux joints de forte désorientation, proches d'une coïncidence, puis aux joints généraux par Wang et Vitek [26].

1.1.1 I.5.4. Mobilité du joint de grains

Dans une microstructure, les joints de grains peuvent être amenés à migrer sous l'effet de différentes forces motrices. Parmi les principales sources d'énergies, on peut citer [27] : la différence d'énergie élastique entre deux grains adjacents, l'énergie de déformation ou densité de dislocations dont la différence de part et d'autre du joint produit la force motrice pour la migration de celui-ci (l'objectif de cette migration est de minimiser l'énergie totale du système) et énergie du joint de grains, c'est-à-dire l'énergie d'interface et la courbure produisent une force motrice visant à minimiser la surface du joint en se rapprochant de la configuration plane. L'aptitude du joint de grains à convertir une force motrice en déplacement ou vitesse est appelée mobilité. La vitesse de migration 'v' d'un joint de grains est le produit de la force motrice 'F' et de la mobilité 'm' :

$$v = mF \quad (\text{I. 11})$$

La mobilité est sensible aux paramètres thermodynamiques, notamment la température et aux caractéristiques intrinsèques du joint de grains qui dépendent de ses 5 degrés de liberté [28].

la mobilité augmente avec l'angle de désorientation dans le cas des sous-joints. De manière générale, les joints de grains de forte désorientation sont plus mobiles que les joints de faible désorientation (Fig. I.7).

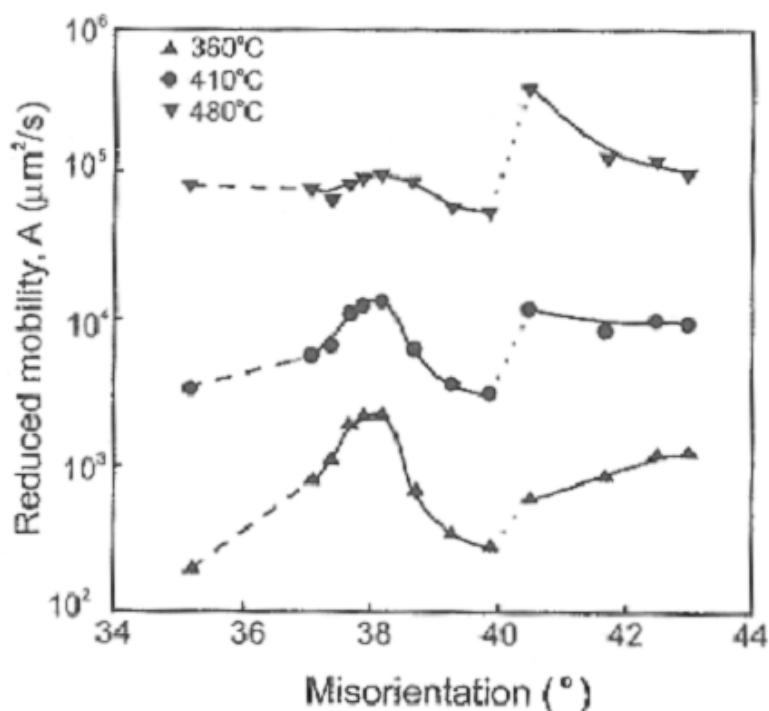


Figure I.7. Effet de la température et de l'angle de désorientation sur la mobilité des joints de forte désorientation dans l'Al pur [29]

I.6. Forces essentielles en croissance

I.6.1. Force motrice

Les premières tentatives pour décrire la croissance des grains datent d'une cinquantaine d'années; ainsi Smith [30] établit que la force motrice pour la migration des joints de grains au cours de la croissance est l'énergie du joint. Il insista sur le fait que la croissance des grains dépend de contraintes topologiques et des conditions d'équilibre liées à la tension superficielle des joints.

Dès 1920, Carpenter et Elam [31] montrent en suivant la croissance normale d'un alliage Sn-1.5%Sb à l'aide d'un microscope à platine chauffante que :

- la croissance se produit par migration de joints et non pas par coalescence ;
- la vitesse de migration d'un joint n'est pas constante au cours du recuit ;
- la direction de migration peut changer.

En utilisant la même technique, Sutoki [32] montre qu'un joint de grains migre vers son centre de courbure pour réduire son aire et donc son énergie. Un grain qui est limité par des joints faisant des angles nettement inférieurs à 120° disparaît [33].

Avec les hypothèses précédentes, Burke et Turnbull [34] montrent que la vitesse de croissance normale suit une loi parabolique. Dans le cas d'un métal pur, la vitesse de migration d'un joint de grains est reliée à la force motrice par l'équation (I. 11).

La force 'F' est proportionnelle à la courbure du joint :

$$F = \gamma \left(\frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} \right) \quad (\text{I. 12})$$

où γ est l'énergie du joint et r_1 et r_2 sont les rayons de courbure principaux de la surface du joint. Si le joint est assimilé à une sphère, $r_1 = r_2 = R$

$$F = \frac{2\gamma}{R} \quad (\text{I. 13})$$

où R est le rayon de courbure du joint.

Il faut noter que l'expérience relève de nombreux cas où la relation entre la vitesse 'v' et la force motrice 'F' n'est pas linéaire, on écrit $v = F^n$, avec $n = \text{cst}$ [35].

Généralement :

$$F = k \frac{\gamma}{R} \quad (\text{I. 14})$$

où k est une constante.

En introduisant un facteur de correction dû à l'existence d'une hétérogénéité de structure dans la matrice, Gladmanen [36] propose une nouvelle approximation :

$$F = 2 \left(\frac{3}{2} - \frac{2}{p} \right) \frac{\gamma}{R} \quad (\text{I. 15})$$

où p est le rapport entre la taille du grain en croissance et la taille moyenne de ses voisins.

I.6.2. Force de freinage

La présence d'une seconde phase de précipités dans une matrice, influe sur la vitesse de migration du joint ; en effet, l'interaction joint-impuretés implique l'existence d'une force de freinage.

Un modèle très simple est du à C. Zener [37]. Considérons un joint d'énergie γ par unité d'aire, franchissant une particule sphérique de rayon r (fig. I.8).

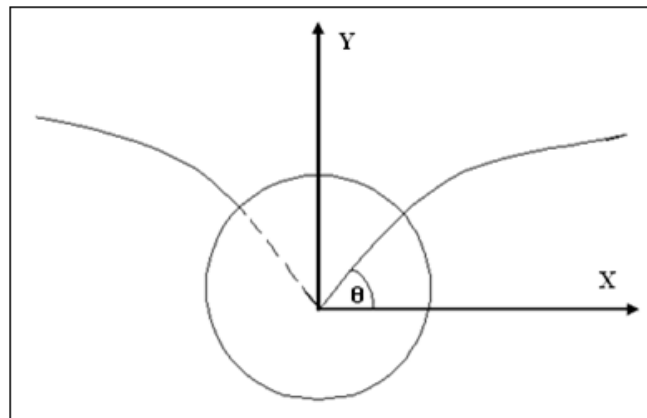


Figure I.8. Migration de la frontière en présence d'une inclusion sphérique.

La force d'épingle exercée par la particule dans la direction y est donnée par :

$$F_f = \pi.r.\gamma.\sin 2\theta \quad (\text{I. 16})$$

Dont la valeur maximale vaut :

$$F_{fm} = \pi.r.\gamma \quad (\text{I. 17})$$

Soit ' N ' le nombre de particules coupées par unité d'aire de joint et ' f ' est la fraction volumique des particules, ' N ' est donné par :

$$N = \frac{3f}{2\pi r^2} \quad (\text{I. 18})$$

La force de freinage par unité d'aire sera donc :

$$F_f = \frac{3}{2} \gamma \frac{f}{r} \quad (\text{I. 19})$$

Dans le cas général, cette force est donnée par :

$$F_f = B\gamma \frac{f}{r} \quad (\text{I. 20})$$

où B est une constante [38].

I.7. Modélisation de la croissance des grains

I.7.1. Stabilisation au point triple

Dans ce modèle le phénomène de croissance décrit par le mouvement des joints, cette mouvement se fait vers leurs centres de courbure pour réduire leurs énergies et donc atteindre un état plus stable. Pour obtenir un état stationnaire, il est indispensable de réarranger les joints de telle manière que la résultante des forces s'annule. Si nous considérons le cas d'un sommet à trois côtés (point triple), la configuration la plus stable est obtenue pour une égalité des angles aux points triples, c'est la condition de stabilité aux nœuds proposée par Von Neumann. Elle est donnée par la relation suivante [39]:

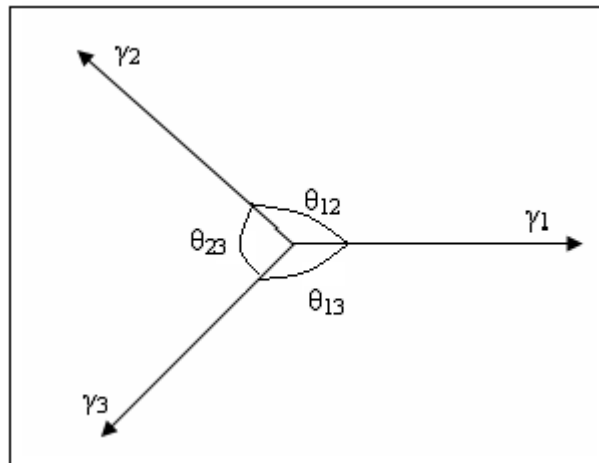


Figure I.9. Représentation des forces appliquées à un sommet ou point triple.

$$\frac{\gamma_1}{\sin(\theta_{23})} = \frac{\gamma_2}{\sin(\theta_{13})} = \frac{\gamma_3}{\sin(\theta_{12})} \quad (\text{I. 21})$$

où $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma_3$, les forces sont indépendantes de la désorientation, donc l'état la plus stable coïncide avec $\theta_{23} = \theta_{13} = \theta_{12}$.

Suivant la loi de Van-Neumann, la vitesse de croissance d'un grain à 'n' voisins est donnée par [39-40] :

$$\frac{dA}{dt} = \frac{\pi}{3} m\gamma(n - 6) \quad (\text{I. 22})$$

Un grain en équilibre est entouré par 6 joints. Le grain qui possède moins de 6 côtés aura tendance à disparaître, tandis que celui possédant plus de 6 côtés aura tendance à croître (fig. I.10).

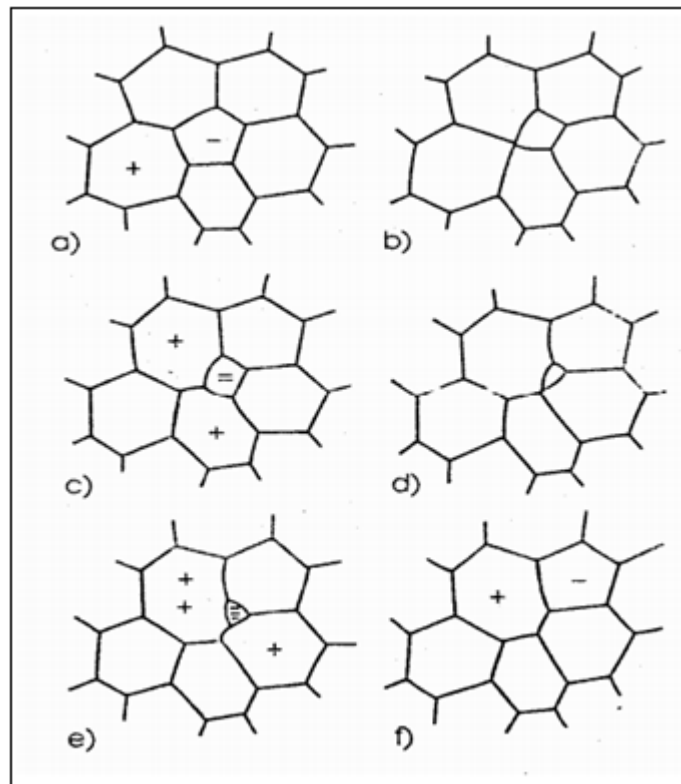


Figure I.10. Mécanisme de croissance de grains en 2D [41].

Parmi les processus topologiques en 2D, on peut citer la disparition de grains triangulaires et l'échange de voisins (Fig. I.11). Lorsque deux sommets se rencontrent le long d'un joint puis se séparent dans une direction perpendiculaire, on aura un échange de voisins; un grain triangulaire va disparaître lorsque trois sommets voisins se rencontrent pour former un seul sommet.

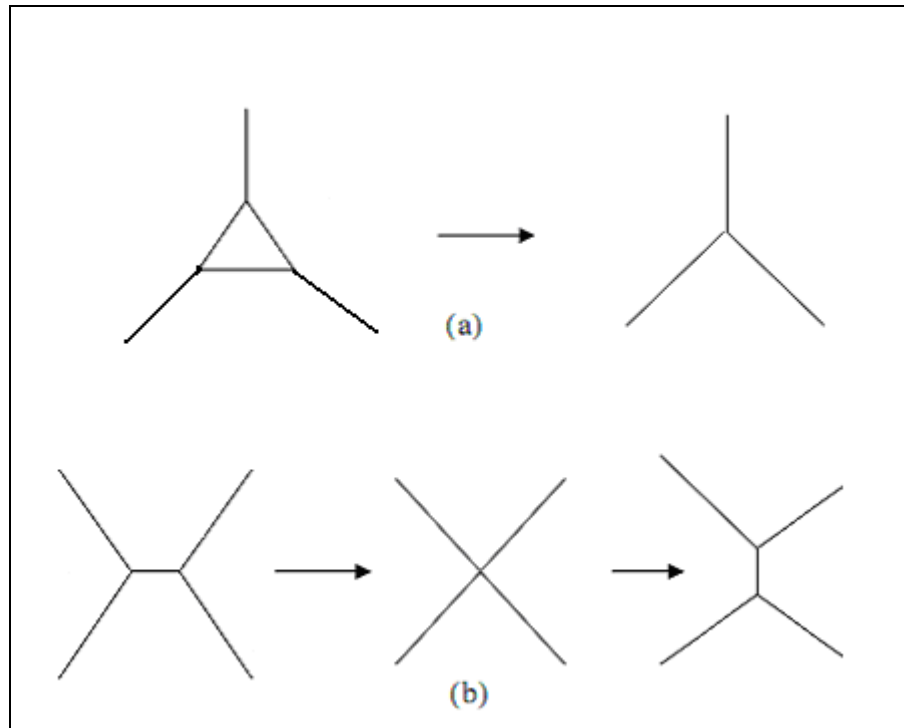


Figure I.11. (a) Disparition d'un grain triangulaire et (b) échange de voisins.

I.7.2. Modèle de Louat

Le modèle de Louat suppose que le mouvement aléatoire des joints est la cause fondamentale de la croissance ou la décroissance des grains, en relation avec la diminution de l'énergie du système [42]. L'idée de ce modèle est que la croissance des grains se fait par des sauts atomiques aléatoires à travers les sites vides de façon similaire au processus de diffusion. A un temps donné, le nombre de grains est connu et la longueur de la chaîne est invariante dans le temps, ce qui implique que le volume du matériau reste inchangé au cours du processus de croissance.

Le volume est constant dans le temps, dans ce cas la croissance de certains grains se fait par l'alimentation d'autres grains, on peut dire donc qu'une classe de grains est alimentée par une

autre classe de taille plus petite. L'évolution du nombre de grains de chaque classe obéit à la deuxième loi de Fick :

$$\frac{\partial f(t,l)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 f(t,l)}{\partial l^2} \quad (\text{I. 23})$$

où :

- $f(t,l)$ est la fonction de distribution des grains ;
- ' l ' est la taille moyenne des grains de la classe considérée ;
- ' D ' est un coefficient donné par : $D = \frac{1}{2}(\delta x^2)\Gamma$;
- Γ est la fréquence de saut aléatoire ;
- δx est la longueur du saut.

La longueur totale de la chaîne atomique est donnée par l'expression suivante :

$$L = \int_0^{\infty} \frac{1}{l_c} f(l,t) \left(\frac{dl}{dt} \right) l_c^2 = \int_0^{\infty} \lambda F(\lambda) d\lambda = C \quad (\text{I. 24})$$

- l_c est la taille critique ;
- $F(\lambda)$ est la nouvelle fonction de distribution des tailles, indépendante du temps.

$$F(\lambda) = f(l,t) l_c^2 \quad (\text{I. 25})$$

En introduisant cette l'expression dans la loi de Fick II, on obtient :

$$\frac{\partial (F(\lambda)/l_c^2)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 (F(\lambda)/l_c^2)}{\partial \lambda^2} \quad (\text{I. 26})$$

Par développement de cette équation :

$$D \frac{\partial^2 F(\lambda)}{\partial \lambda^2} - \frac{\partial F(\lambda)}{\partial t} + \frac{2}{l_c} F(\lambda) \frac{\partial l_c}{\partial t} = 0 \quad (\text{I. 27})$$

Si l_c suit une loi parabolique, l'équation (I. 27) devient :

$$D = \frac{d^2F}{d\lambda^2} + k\lambda \frac{dF}{d\lambda} - 2kF = 0 \quad (\text{I. 28})$$

Le problème est résolu en considérant les deux conditions aux limites :

$$F(0) = 0 \text{ et } F(\infty) = 0.$$

La solution de cette équation différentielle est alors :

$$F(\lambda) = kZ \exp\left(-\frac{1}{2}Z^2\right) \quad (\text{I. 29})$$

Cette distribution obtenue par Louat correspond à celle de Rayleigh à une dimension, lorsque le mouvement des joints est aléatoire, les fonctions de distribution des modèles statistiques et déterministes sont donc similaires.

Hundri et Ryum [43] ont comparé ce modèle avec leur modèle déterministe à une dimension, ils ont considéré des chaînes d'atomes (les grains), séparées par des vides (les joints de grains).

I.7.3. Modèle de Hillert

L'aspect le plus intéressant de la théorie de Hillert est qu'elle envisage une croissance anormale du grain en relation avec la taille moyenne de la microstructure en présence des particules d'une seconde phase [44].

Par des simplifications géométriques de la structure polycristalline, Hillert remplace dans l'expression de la vitesse de croissance des grains les rayons de courbure des joints r_1 et r_2 par le rayon des grains R suivant:

$$\begin{aligned} v &= \frac{dR}{dt} = m\sigma \left(\frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} \right) \\ &= \alpha m\sigma \left(\frac{1}{R_c} - \frac{1}{R} \right) \end{aligned} \quad (\text{I. 30})$$

où α est un facteur géométrique ($\alpha = 1$ pour la structure à 3 dimensions et $\alpha = \frac{1}{2}$ pour celle à 2 dimensions) et R_c est un rayon critique.

Le nombre critique de côtés N_c d'un grain est égal à 6 pour le cas isotrope ou tous les joints de grains ont la même tension interfaciale σ [45, 46], ainsi le rayon critique R_c sera égal au rayon moyen des grains de la matrice \bar{R} .

En présence de particules, la relation de Hillert (équation I. 30) devient :

$$\frac{dR}{dt} = \alpha m \sigma \left(\frac{1}{R_c} - \frac{1}{R} \pm z \right) \quad (\text{I. 31})$$

où $z = \frac{3f}{4r}$ est le facteur de freinage ou facteur de Zener ('f' et 'r' sont respectivement la fraction volumique et le rayon moyen des précipités).

On utilisant le modèle fondé sur l'étude de la morphologie des grains de coalescence d'une part et le modèle de coalescence dû à Lifshitz et Slyozov d'autre part [47], Hillert a trouvé l'expression :

$$\frac{dR_c^2}{dt} = \frac{d\bar{R}^2}{dt} = \frac{1}{2} \alpha m \sigma \quad (\text{I. 32})$$

Hillert obtient la variation de la taille moyenne des grains en présence de particules par des calculs analogues aux précédents :

$$\frac{d\bar{R}^2}{dt} = \frac{1}{2} \alpha m \sigma \left(1 - \frac{z\bar{R}}{\alpha} \right) \quad (\text{I. 33})$$

Ainsi, il a démontré l'existence d'une distribution de tailles de grains qui correspond à un état stationnaire de la matrice. Dans cette distribution il n'existe plus de grains dont le rayon dépasse $2R_c$. La condition d'avoir une croissance anormale est reliée à l'existence d'un grain dont le rayon est plus grand que $2R_c$.

En 2 dimensions, la croissance des grains est bloquée si $\bar{R} > \frac{1}{2z}$ (équation I. 33). De plus, Hillert a montré, par le modèle de défaut (figure I. 10), que si $\bar{R} > \frac{1}{3z}$ la croissance est bloquée, car dans ces conditions, un grain de 4 côtés ne peut pas décroître.

Dans le domaine limité par les deux rayons critiques $\frac{1}{2z}$ et $\frac{1}{3z}$, la croissance anormale peut avoir lieu s'il existe un très gros grain dans la matrice dont le rayon $R > 2\bar{R}$.

II.7.4. Les modèles déterministes

Hundry et Ryum [50-51] ont proposé un modèle déterministe unidimensionnel pour prévoir le comportement des grains en croissance anormale. Ce modèle traite la croissance des grains par analogie avec la coalescence des bulles de savon. Les grains sont assimilés à des bulles liées par des tubes (Fig. 12). La pression interne 'p_i' dans une bulle de rayon 'R_i' est :

$$p_i = \frac{2\sigma}{R_i} \quad (\text{I. 34})$$

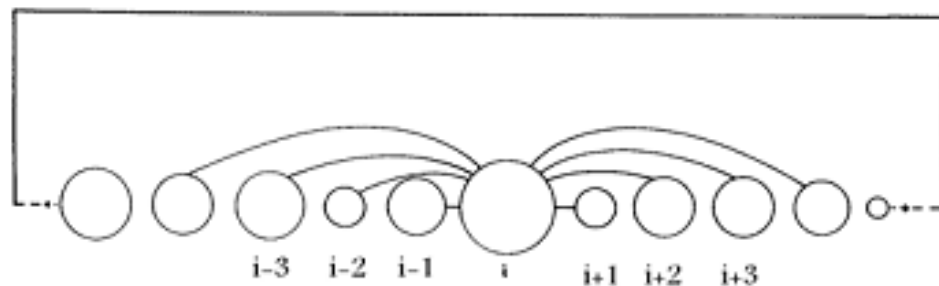


Figure I.12. Modèle de bulles connectées [51].

La différence de pressions internes dans les bulles est due à la différence de tailles des bulles voisines, l'évolution du système est donnée par :

$$\frac{dv}{dt} = 2m\sigma \left(\frac{1}{R_i} - \frac{1}{R_j} \right) \quad (\text{I. 35})$$

où 'm' est la viscosité.

Le taux de croissance est :

$$\frac{dR_i}{dt} = 4m\sigma \left(\frac{1}{R_i^2} - \frac{1}{2} \left(\frac{1}{R_{i-1}} - \frac{1}{R_{i+1}} \right) \right) \quad (\text{I. 36})$$

Deux problèmes se posent :

- chaque bulle possède deux voisins, alors en réalité le nombre de voisins dépend de la taille du grain ;
- le transfert de la matière à travers les surfaces de contact n'est pas constant.

Pour déterminer la distribution des tailles de grains en fonction du temps, il faut résoudre 'N' équations ('N' est le nombre de grains) de la forme (I. 36). Une simulation réalisée sur 3500 grains permet d'écrire l'expression du rayon moyen :

$$\bar{R}^4(t) - \bar{R}^4(0) = kt \quad (\text{I. 37})$$

Références bibliographiques

- [1] K.T. Aust, J.W. Rutter, *Trans. Met. Soc. AIME*. 215 (1959)119.
- [2] K.T. Aust, J.W. Rutter, *Trans. Met. Soc. AIME*. 215 (1959) 820.
- [3] J. Hansen, J. Pospiech, K. Lücke, Springer Verlag Berlin, Heidelberg New-York, (1978).
- [4] N. Hansen, D. Juul Jensen, T. Leffers, B. Ralph, Roskilde, Denmark, 75 (1986).
- [5] F. Haessner, Verlag Gmbh, Stuttgart, (1978).
- [6] P. Coulomb, Dunod Paris, (1972).
- [7] J. Thébault, Thèse de Doctorat Ecole Centrale Paris, 720 (2009).
- [8] F. Haessner, Verlag Gmbh, Stuttgart, (1978).
- [9] P. Coulomb, Dunod Paris, (1972).
- [10] C. Goux, *Mém. Scient. Rev. Met.* LVIII. 9 (1961).
- [11] W. Bollmann, Springer Verlag, Berlin, (1970).
- [12] Klaus Van Benthem, Stuttgart, Jun. (2002).
- [13] H. Grimmer, *Acta Cryst.* A30 (1974) 685.
- [14] R. Bonnet, *Acta cryst.* A36 (1980) 116.
- [15] S. Ranganathan, *Acta Cryst.* 21 (1966) 197.
- [16] M.L. Kronberg, F.H. Wilson, Vol. 185 (1949) 501.
- [17] D.G Brandon, B. Ralph, S. Ranganathan, M.S.A. Wald, *Acta Metallurgica*. 12 (1964) 813.
- [18] D.G. Brandon, *Acta Metallurgica*. 14 (1966) 1479.
- [19] S. Ranganathan, *Acta Crystallographica*. 21 (1966) 197.
- [20] Klaus Van Benthem, Stuttgart, Jun. (2002).
- [21] W.T. Read, W. Shockley, *Physical Review*. 78 (1950) 275.
- [22] G. Hasson, C. Goux, *Scripta Met.* 5 (1971) 889.
- [23] P.J. Goodhew, *ASM seminar volume*. (1980) 155.
- [24] W.T. Read, W. Shockley, *Phys. Rev.* 78 (1950) 275.
- [25] A. Brokman, R.W. Balluffi, *Acta Met.* 29 (1981) 1703.
- [26] G.J. Wang, V. Vitek, *Acta Met.* 5 (1986) 5951.
- [27] G. Gottstein, L.S. Shvindlerman, CRC Press, (1999).

- [28] F.J. Humphreys, M. Hatherly, Elsevier, (2004).
- [29] C.S. Molodov, U. Czubayko, G. Gottstein, L.S. Shvindlerman, 32 (1995) 529.
- [30] C.S. Smith, Ohio ASM. 65 (1952).
- [31] H.C.H. Carpenter, C.F. Elam, J. Inst. Met. 24 (1920) 83.
- [32] T. Sotoki, Sc. Rep. Tohoku Univ. 17 (1928) 857.
- [33] D. Harker, E.A. Parker, Trans. Amer. Soc. Met. 34 (1945) 353.
- [34] J.E. Burke, D. Turnbull, Pergamon Press, 3 (1952) 220.
- [35] C. Jordan, Ecole de mét. Phys, Carry le Rouet, Sept. 1984, Paris. (1984).
- [36] T. Gladmann, Proc. Roy. Soc. A294 (1966) 298.
- [37] C. Zener, cited by C.S. Smith, TMS-AIMS. 15 (1948) 175.
- [38] M. Hillert, Acta Metall. 13 (1965) 227.
- [39] J.Von. Neumann, Am. Soc. Metals, Cleveland, Ohio. (1952).
- [40] F. Haessner, Dr. Riedere Verlag Gmbh, Stuttgart, (1978).
- [41] F.J. Humphreys, M. Hatherly, Pergamon. (1995).
- [42] N. P. Louat, Acta Metal. 22 (1974) 721.
- [43] O. Hundry, N. Ryum, Mat. Sci. For Trans. Vol. 94 (1992) 89.
- [44] M. Hillert, Acta Metall. 13 (1965) 227.
- [45] J.V. Newmann, A.S.M., Cleveland, 168 (1952).
- [46] W.W.J. Mullins, Appl. Phys. 27 (1956) 900.
- [47] I.M. Lifshitz, V.V. Slyozov, Phys. Chem. Solids. 19 (1961) 35.
- [48] O. Hundry, N. Ryum, H. Westengen, Acta Metall. 27 (1976) 161.
- [49] O. Hundry, N. Ryum, Acta Metall. 29 (1981) 1737.
- [50] O. Hundry, N. Ryum, Acta Metall. 30 (1982) 739.
- [51] O. Hundry, N. Ryum, H. Westengen, Acta, Metall. 27 (1979) 161.

CHAPITRE II

TECHNIQUES DE SIMULATION

CHAPITRE II \ TECHNIQUES DE SIMULATION

II.1. Les échelles de la simulation

En sciences des matériaux, les différentes méthodes de simulation numérique servent à l'étude d'objets ou de systèmes de tailles différentes. Se basant sur le critère de taille des objets, on peut définir différentes échelles de simulation (Fig. II.1) [1] :

- L'échelle nanoscopique ou atomique ;
- L'échelle microscopique ou mésoscopique ;
- L'échelle macroscopique.

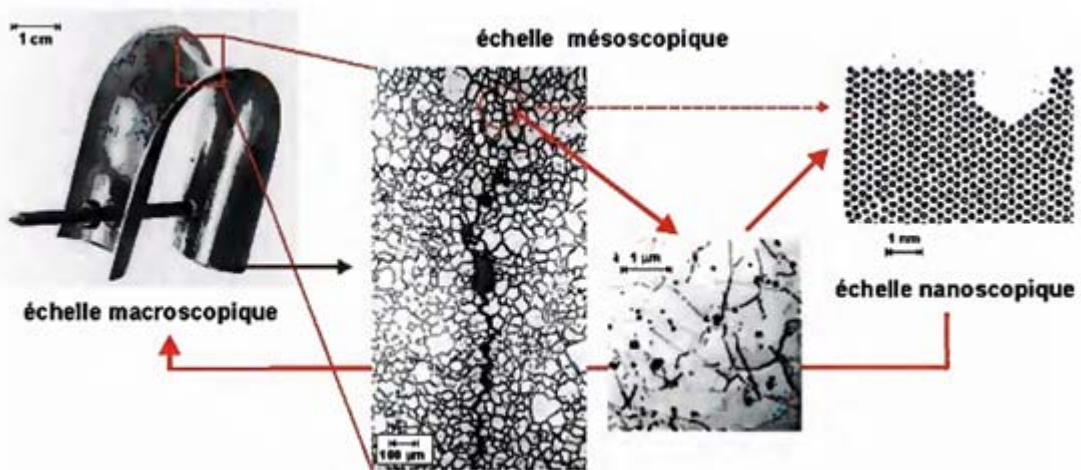


Figure II.1 Exemple de couplage multi-échelle dans le cas de la corrosion sous contrainte [1].

La première échelle concerne les phénomènes ou mécanismes se déroulant à **l'échelle de l'atome** ; c'est un milieu discret où l'élément de base est l'atome.

On peut considérer la structure électronique des atomes, c'est le cas des méthodes « ab-initio » où l'on tente de résoudre l'équation de Schrödinger ou considérer l'atome comme une entité unique, c'est le cas de la Dynamique Moléculaire et de certaines méthodes de Monte Carlo. Les capacités actuelles de calculs ne permettent pas de traiter un nombre considérable d'atomes et donc des volumes de matière virtuelle importants.

Pour dépasser cette limite et simuler des volumes plus grands, on doit considérer un milieu continu, qu'il faudra naturellement discrétiser mais avec un pas supérieur à la dimension atomique, et que l'on dotera de propriétés chimiques, physiques ou mécaniques représentatives. On distinguera l'**échelle mésoscopique** (représentatives de la microstructure pour les matériaux métalliques et donc correspondant à l'échelle du grain) et l'**échelle macroscopique**, qui est celle de l'environnement habituel, au-delà du millimètre ou centimètre.

II.2. Les différentes méthodes de simulation aux différentes échelles

Pour le chercheur en science des matériaux qui désire modéliser son système d'étude, un large éventail de méthodes s'offre à lui. Mais chaque méthode est cloisonnée à des échelles spatiales et temporelles spécifiques.

Voici, ci-dessous une liste non exhaustive des méthodes de modélisation numérique implémentées en sciences des matériaux :

- Les calculs **Ab-initio** (dont fait partie la théorie de la fonctionnelle de densité DFT) sont surtout utilisés en statique pour déterminer des structures de surface, des énergies de liaisons, des structures d'état de transition et des potentiels interatomiques [2].
- Les méthodes de **Dynamique Moléculaire Classiques**, qui utilisent des Potentiels empiriques pour représenter les interactions électroniques, permettent de simuler des systèmes de plus grande taille (jusqu'à 10000 atomes), sur des durées qui peuvent excéder la nanoseconde.
- Les méthodes **Monte Carlo Classiques** de type **Métropolis** [3] permettent de simuler des systèmes de taille comparable mais sans contrôle précis de leur dynamique.
- Les méthodes **Monte Carlo Cinétiques** [4] se situent entre l'échelle atomique et l'échelle des milieux continus, et ils sont capables de décrire à la fois des processus assez rapides, qui ne concernent que l'échelle atomique (diffusion de surface, réactions,...) et des évolutions beaucoup plus lentes, qui touchent la micro ou la méso-échelle (formation de microstructure).

- Les méthodes utilisées pour simuler la microstructure à l'échelle micro ou mésoscopique (grains ou cristaux des films polycristallins,...) sont des méthodes de **Potts** [5], d'**Automates Cellulaires** [6] et des méthodes aux **éléments finis** (Fig. II.2).
- Les modèles macroscopiques (transferts thermiques, évolution des contraintes mécaniques...) sont généralement des modèles aux volumes finis ou aux éléments finis qui permettent de simuler la dynamique d'évolution d'un système en résolvant des systèmes d'équations aux dérivées partielles.

Dans le cadre de ce travail, nous décrirons essentiellement les méthodes de **Monte Carlo (MC)** et la **Dynamique Moléculaire (DM)** qui sont les plus utilisées pour l'étude des joints de grains [7].

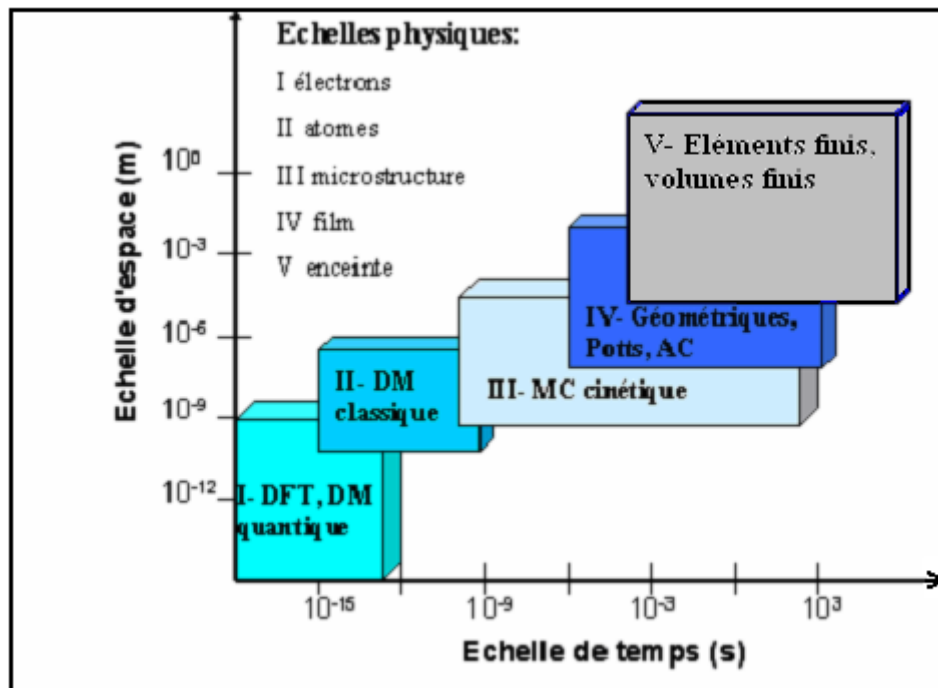


Figure II.2. Principaux modèles de simulation utilisée en science des matériaux [8].

Nous présentons brièvement le principe de chacune de ces deux méthodes.

II.3. Technique de simulation Monte Carlo

II.3.1. Historique

Le nom et le développement systématique des méthodes de Monte Carlo datent de 1944 environ [9-11]. Elles sont la mise en œuvre des expériences mathématiques sur les nombres aléatoires. L'appellation « Monte Carlo » (théorie des jeux) est due à Metropolis, inspiré de l'intérêt d'Ulam pour le poker. Le nom de cette méthode a pour origine les similarités avec les jeux de hasard. L'utilisation systématique, par Ulam, Metropolis et Von Neumann notamment, est intervenue à Los Alamos, pendant la préparation de la bombe atomique, où ont collaboré de nombreux mathématiciens et physiciens de renom [12,13].

Le travail à Los Alamos consistait à simuler directement les problèmes de dispersion et d'absorption de neutrons pour les matériaux fissibles. Dès les premières applications, des méthodes de réduction de la variance ont été utilisées. Les recherches étant bien évidemment secrètes à Los Alamos, les premières publications sur le domaine ne sont intervenues qu'à partir de 1949. Ensuite, le développement de ces méthodes a accompagné les développements de l'informatique. En effet, en 1945 déjà, J. von Neumann conjecturait le potentiel des ordinateurs pour la simulation stochastique.

Les techniques Monte Carlo ont alors été utilisées fréquemment et dans de nombreux domaines à partir des années 50, par exemple pour des problèmes où elles n'étaient pas les plus adaptées. Les problèmes traités par la méthode de Monte Carlo sont de deux types, dits probabilistes ou déterministes suivant qu'ils concernent directement ou non le comportement et le résultat du processus aléatoire [14,15].

- Dans le cas où le problème traité serait de nature probabiliste, la technique Monte Carlo consiste à observer les nombres aléatoires de telle façon qu'il simule de manière directe le processus physique aléatoire du problème considéré, et à tirer les solutions suivant le comportement de ces nombres aléatoires. Ce sont la méthode de Monte Carlo direct.
- Si maintenant le problème posé est de nature déterministe, bien qu'il n'ait pas de relations directes avec les processus aléatoires, on peut adjoindre au problème déterministe un processus aléatoire adéquat.

En général les méthodes de Monte Carlo sont utilisées pour l'évaluation des intégrales multidimensionnelles.

II.3.2. Monte Carlo de Metropolis

Metropolis et al. ont introduit la méthode de MC Metropolis en physique de la matière condensée [16-19]. Cette méthode permet l'estimation des moyennes de grandeurs physiques données par la formulation de Gibbs de la mécanique statistique sous la forme d'intégrales multidimensionnelles. On génère des configurations successives qui constituent une chaîne de Markov, puisque la nouvelle configuration provient directement de la précédente sans prise en compte de l'historique des états du système. On échantillonne en privilégiant les régions où le facteur de Boltzman ($\exp(-U/k_B T)$), c'est-à-dire la densité de probabilité de l'ensemble canonique dans cet espace, est plus élevé. La probabilité d'une configuration particulière d'énergie potentielle U_i est alors proportionnelle à ($\exp(-U_i/k_B T)$), autrement dit l'acceptation d'une configuration de la chaîne de Markov est pondérée par une fréquence proportionnelle au facteur de Boltzman. Une propriété d'équilibre est alors obtenue comme une moyenne simple sur les configurations acceptées (Fig. II. 3). Cette exploration de l'espace des configurations, en suivant l'algorithme de Metropolis, constitue le premier cas d'échantillonnage suivant l'importance en mécanique statistique. Elle est encore largement utilisée de nos jours parce qu'elle représente un moyen simple et relativement efficace d'obtenir des moyennes de grandeurs physiques dans un ensemble statistique.

II.3.3. Générateur de nombre aléatoire

Un générateur de nombres aléatoires est capable de simuler une suite de nombres choisie au hasard [20]. En d'autres termes cette suite représentera une réalisation d'une suite de variables aléatoires (U_1, U_2, \dots, U_n) indépendantes. Le générateur de nombre aléatoire est utilisé dans notre calcul pour [21] :

- tirer au hasard un site de la matrice,
- réorienter le site choisi aléatoirement vers une nouvelle orientation parmi les voisins,
- accepter ou non la probabilité de réorientation.

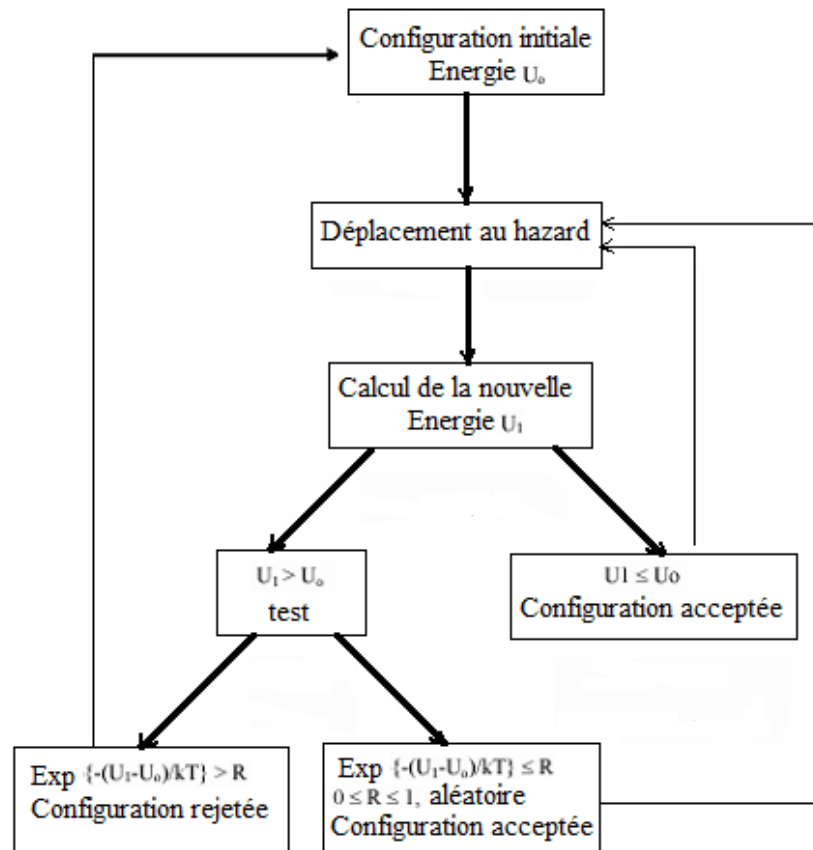


Figure II.3. Organigramme de la méthode de Monte Carlo [16-19].

II.3.4. Algorithme MC pour la croissance granulaire

A partir d'un maillage triangulaire de 200×230 sites (Fig. II.4), permettant ainsi à un site d'avoir 6 plus proches voisins, des nombres entiers aléatoires Q représentant les orientations cristallographiques sont attribués à tous les sites du maillage.

Dans ce type de simulation, 2 sites adjacents qui ont le même nombre d'orientation Q sont considérés comme faisant partie du même grain. Par contre, 2 sites adjacents mais de nombres d'orientation Q différents sont séparés par un joint de grains.

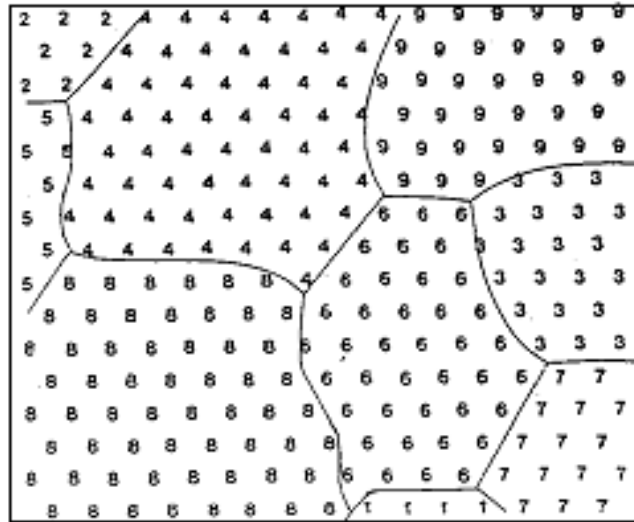


Figure II.4. Microstructure sur un réseau triangulaire.

Dans la méthode de Monte Carlo [22- 24], un site « i » est choisi au hasard sur le maillage. Ce site a pour nombre d'orientation Q_i . L'énergie de ce site (E_1) est calculée à l'aide de l'équation suivante :

$$E = \sum_{k=1}^6 J \left(1 - \delta_{Q_k Q_m} \right) \quad (\text{II.1})$$

où $Q_m(Q_k)$ est l'orientation du site $m(k)$, δ est la fonction de Kröneckner et J une constante positive qui représente l'énergie du joint.

Ensuite, une nouvelle valeur d'orientation Q_j , choisie au hasard parmi les plus proches voisins, est attribuée au hasard au site « i ». L'énergie du site affectée de sa nouvelle valeur d'orientation est calculée (E_2). Si la variation d'énergie $\Delta E = E_2 - E_1$ est négative ou nulle, le changement d'orientation est accepté (Fig. II. 5). Par contre, si la variation d'énergie est positive, alors le

changement d'orientation est accepté avec la probabilité $\exp\left(\frac{-\Delta E}{k_B T}\right)$.

où k_B est la constante de Boltzmann et T la température en degré Kelvin.

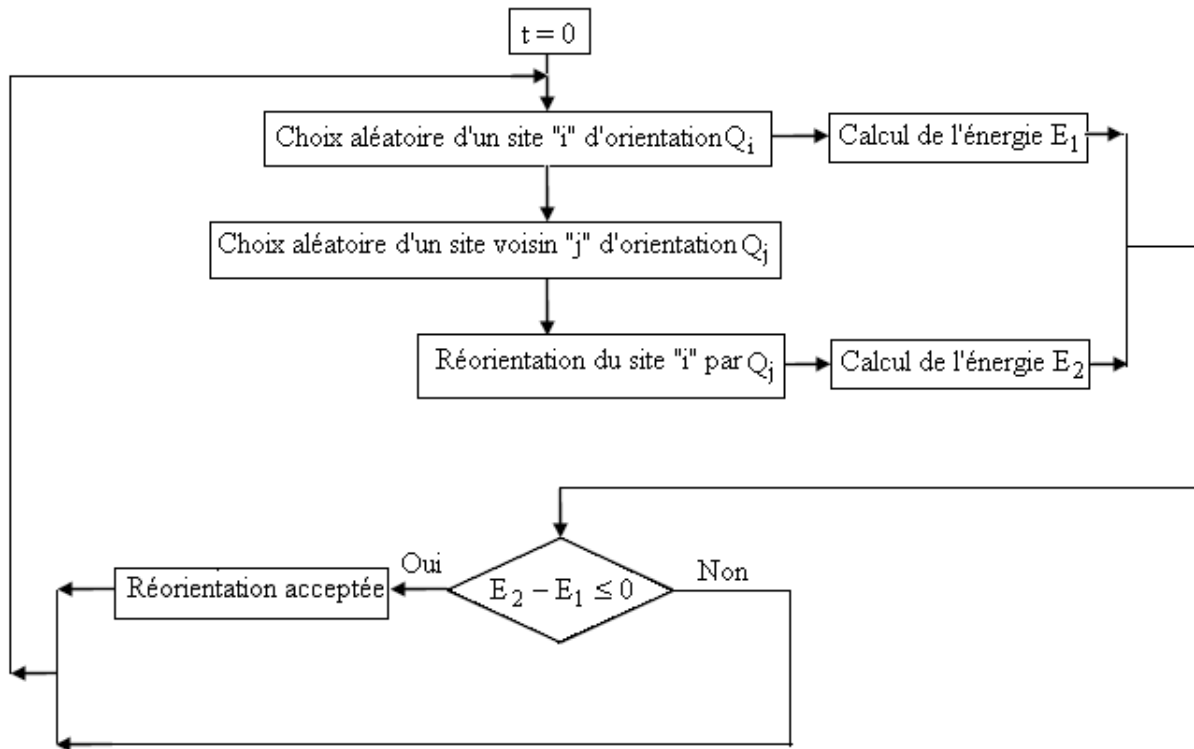


Figure II.5. Organigramme de la méthode de Monte Carlo pour la croissance de grains.

II.3.5. Le temps dans la méthode de Monte Carlo

L'unité de temps dans la technique MC est le MCS (Monte Carlo Step), il correspond à une procédure complète de réorientation de tous les sites de la matrice. Ce temps d'évolution n'est pas un temps réel [25].

II.4. Méthode de simulation de la Dynamique Moléculaire

II.4.1. Description de la méthode

La dynamique moléculaire consiste à simuler les mouvements atomiques au cours du temps. Les atomes du système, traité comme des masses ponctuelles en interaction mutuelle, sont supposés obéir aux équations de la mécanique classique. Les équations différentielles du mouvement sont résolues numériquement de façon itérative. On calcule la position et la vitesse de chaque atome à chaque itération. En croissance, il s'agit de déterminer le transfert d'atomes à travers les joints de grains, en spécifiant les lois d'interaction qui poussent les atomes à rejoindre les états énergétiques les plus stables. On simule alors le mouvement réel des atomes.

II.4.2. Principe

On considère un système isolé de N atomes (particules) de masse m contenues dans une boîte parallélépipédique. A une température donnée, une vitesse initiale est attribuée à chaque atome. A partir de ces vitesses, considérées constantes, la position d'un atome 'i' change de $\vec{r}_i(t)$ à $\vec{r}_i(t + \delta t)$ et sa vitesse change de $\vec{v}_i(t)$ à $\vec{v}_i(t + \delta t)$ où δt est l'incrément de temps. Chaque atome 'i' est soumise à une force \vec{F}_i , supposée constante entre 't' et 't+ δt ' :

$$\begin{aligned}\vec{F}_i &= m\vec{a}_i \\ &= m \frac{d^2\vec{r}_i(t)}{dt^2}\end{aligned}\tag{II. 2}$$

où \vec{a}_i est le vecteur accélération de l'atome i ;

On a donc un système de $3N$ équations différentielles que l'on se propose de résoudre numériquement pour simuler les nouvelles positions $\vec{r}_i(t + \delta t)$ et vitesses $\vec{v}_i(t + \delta t)$ des atomes [26].

II.4.3. Mise en œuvre

Les atomes interagissent entre elles via une énergie potentielle E_p , souvent appelée potentiel interatomique, qui dépend de toutes les positions. La force agissant sur chaque atome 'i' est alors obtenue à partir du potentiel par rapport au vecteur position de l'atome considéré :

$$\vec{F}_i = -\frac{dE_p}{dr_i} \vec{u}\tag{II. 3}$$

Le potentiel d'interaction E_p est en général tronqué à partir d'un rayon de coupure r_c .

L'influence du potentiel est supposée négligeable au-delà de ce rayon ($E_p = 0$ si $r > r_c$).

La simulation se déroule selon les étapes suivantes :

- On calcule les accélérations suivant la loi de Newton, à partir de la force appliquée selon la relation (II. 2) ;
- On calcule les vitesses des atomes à partir des accélérations :

$$\frac{d\vec{v}_i}{dt} = \vec{a}_i \quad (\text{II. 4})$$

- Ensuite les positions atomiques à partir des vitesses :

$$\frac{d\vec{r}_i}{dt} = \vec{v}_i \quad (\text{II. 5})$$

Des intégrations successives de ces équations se font en subdivisant la trajectoire en une série d'états discrets séparés par des intervalles de temps très courts, ce qui conduit à une trajectoire en fonction du temps.

Pour simuler une montée en température, on fournit par exemple une énergie cinétique conséquente aux atomes (en fonction de la température voulue). Cette énergie cinétique permet au système de franchir des barrières de potentiel assez grandes. Des vitesses 'v' sont assignées aux atomes par tirage aléatoire suivant une distribution de Maxwell :

$$\begin{aligned} E_c &= \frac{1}{2} \sum_i \langle v_i \rangle^2 \\ &= \frac{3}{2} N k_B T \end{aligned} \quad (\text{II. 6})$$

où :

- $\langle v_i \rangle^2$ est le carré de la vitesse moyenne ;
- N est le nombre d'atomes du système ;
- k_B est la constante de Boltzmann ;
- T est la température absolue.

II.4.4. Les algorithmes d'intégration temporelle

Connaissant la position et la vitesse de l'atome 'i' à l'instant 't', on peut connaître sa position et sa vitesse à l'instant $(t + \delta t)$ où δt est le pas d'intégration. On doit faire appel à un algorithme d'intégration. Les méthodes d'intégration utilisées en Dynamique Moléculaire pour résoudre les équations du mouvement sont nombreuses. Celles que nous décrivons sont les plus largement

utilisées parce qu'elles sont simples à programmer, suffisamment précises et parce qu'elles offrent une bonne stabilité de l'énergie. Deux algorithmes sont couramment utilisés, celui de Verlet et l'algorithme « prédicteur-correcteur » de Gear.

II.4.4.1. L'algorithme de Verlet

L'algorithme de Verlet est implémenté dans de nombreux codes de dynamique moléculaire.

L'idée général est d'écrire les positions atomiques \vec{r} aux instants $(t - \delta t)$ et $(t + \delta t)$ comme des développements de Taylor d'ordre 3 :

$$\vec{r}(t - \delta t) = \vec{r}(t) - \dot{\vec{r}}(t)\delta t + \frac{1}{2}\ddot{\vec{r}}(t)\delta t^2 - \frac{1}{6}\dddot{\vec{r}}(t)\delta t^3 + o(\delta t^4) \quad (\text{II. 7})$$

$$\vec{r}(t + \delta t) = \vec{r}(t) + \dot{\vec{r}}(t)\delta t + \frac{1}{2}\ddot{\vec{r}}(t)\delta t^2 + \frac{1}{6}\dddot{\vec{r}}(t)\delta t^3 + o(\delta t^4) \quad (\text{II. 8})$$

où $\dot{\vec{r}}$ est la vitesse, $\ddot{\vec{r}}$ est l'accélération et $\dddot{\vec{r}}$ est la dérivée troisième de la position par rapport au temps.

En ajoutant les deux expressions, les positions atomiques à l'instant $(t + \delta t)$ s'écrivent :

$$\vec{r}(t + \delta t) = 2\vec{r}(t) - \vec{r}(t - \delta t) + \ddot{\vec{r}}(t)\delta t^2 + o(\delta t^4) \quad (\text{II. 9})$$

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

$$\ddot{\vec{r}}(t) = -\frac{1}{m} \vec{\nabla} E_p(\vec{r}(t)) \quad (\text{II. 10})$$

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

$$\dot{\vec{r}}(t) = \frac{\vec{r}(t + \delta t) - \vec{r}(t - \delta t)}{2\delta t} \quad (\text{II. 11})$$

II.4.4.2. L'algorithme prédicteur-correcteur de Gear

En 1971 C. W. Gear proposa un autre algorithme d'intégration, dit prédicteur-correcteur [27]. Cet algorithme développé au cinquième ordre est implémenté dans le code de la Dynamique Moléculaire massivement parallèle LAMMPS [28]. Cet algorithme se déroule en trois étapes :

- 1- **Calcul du prédicteur** : à partir des positions atomiques $\vec{r} = \vec{r}_0$ à l'instant t , et de leurs dérivées temporelles :

$$\vec{r}_1 = \delta t (d\vec{r}_0 / dt) \quad (\text{II. 12})$$

$$\vec{r}_2 = \frac{1}{2} \delta t^2 (d^2 \vec{r}_0 / dt^2) \quad (\text{II. 13})$$

$$\vec{r}_3 = \frac{1}{6} \delta t^3 (d^3 \vec{r}_0 / dt^3) \quad (\text{II. 14})$$

et ainsi de suite jusqu'à l'ordre q , les mêmes quantités sont prédites pour le pas de temps suivant, ' $t + \delta t$ ', par simple développement de Taylor [29].

- 2- **Evaluation des forces** : Les forces sont calculées en prenant le gradient du potentiel pour les positions prédites. L'accélération résultante sera en général différente de l'accélération « prédite ». La différence entre les deux constitue un « signal d'erreur ».

- 3- **Correction** : Ce signal d'erreur est utilisé pour « corriger » les positions et leurs dérivées. Toutes les corrections sont proportionnelles au signal d'erreur, le coefficient de proportionnalité étant un « nombre magique » déterminé pour maximiser la stabilité de l'algorithme.

II.4.5. Les paramètres initiaux de la simulation DM

II.4.5.1. La boîte de simulation et les conditions aux limites périodiques

La première opération consiste à créer le milieu virtuel de la simulation. En Dynamique Moléculaire c'est généralement une « boîte » contenant un certain nombre d'atomes. Ce nombre est naturellement limité pour des raisons pratiques liées au temps de calcul. Il doit être choisi en fonction du problème traité et peut donc varier entre quelques centaines de millions d'atomes.

Afin de reproduire artificiellement les dimensions quasi-infinies d'un milieu réel, on peut appliquer sur l'ensemble des faces de la boîte des « conditions aux limites périodiques » (Fig. II. 6) [30].

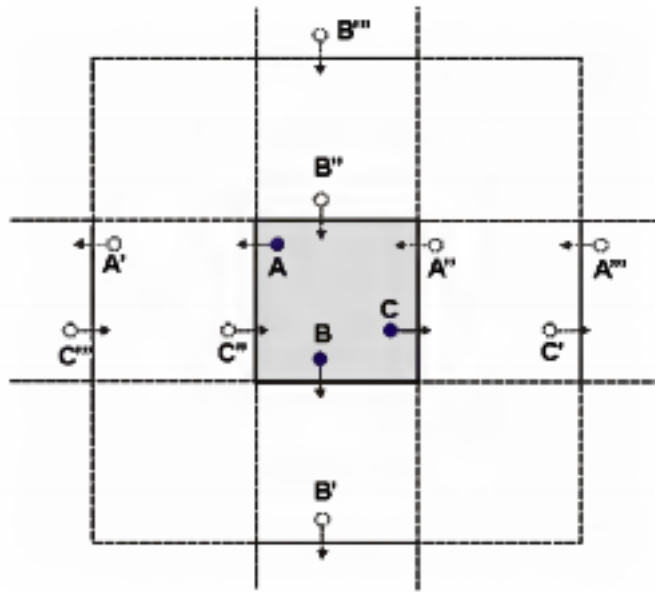


Figure II.6. Boîte de simulation en 2D.

pour le cas en 3D, la boîte de simulation est reproduite à l'infini dans les 3 directions cartésiennes. Si a , b et c sont les 3 dimensions de la boîte, une particule située à la position r représentera tout un ensemble de particules situées aux positions $r + l\alpha + m\beta + n\gamma$.

où l , m et n sont des nombres entiers.

II.4.5.2. Choix du pas de temps

Le pas de temps (c'est-à-dire l'intervalle de temps entre deux calculs) doit être supérieur aux temps de relaxation des phénomènes physiques simulés. Cependant, il ne doit pas être trop grand sinon certains phénomènes risquent de ne pas être observés ou le calcul risque de diverger. Ce pas de temps est généralement compris entre quelques centièmes et quelques dizaines de fs (10^{-5} s).

II.4.5.3. Maintien de la température en dynamique moléculaire

Les simulations en dynamique moléculaire sont effectuées suivant l'ensemble canonique ou NVT. En effet le système est porté à une déformation donnée, ce qui revient à fixer les

dimensions de la boîte de simulation, avant de lancer l'intégration des équations de Newton ; la simulation se fait donc à volume V constant. Le nombre de particules N est également constant (pas d'apport ni de perte de matière), et la température T est maintenue à peu près constante [31].

II.4.6. Potentiel d'interaction atomiques

II.4.6.1. Introduction

Le choix du potentiel est particulièrement important, la validité physique de la simulation reposant presque exclusivement sur ce choix. Pour cela nous allons développer les outils théoriques utilisés dans la suite de ce travail (simulation Dynamique Moléculaire à l'échelle atomique). Nous donnerons tout d'abord quelques détails sur les potentiels interatomiques utilisés, en mettant l'accent sur les problèmes posés par la difficulté à rendre compte de façon cohérente des réarrangements atomiques.

Pour une simulation de la Dynamique Moléculaire, cela revient à choisir le potentiel. Ce potentiel est une fonction des positions des entités de la simulation (des atomes généralement) représentant l'énergie du système quand les atomes sont arrangés en une configuration spécifique. Cette fonction est invariante par translation et par rotation, et est habituellement construite à partir des positions relatives des atomes entre eux plutôt qu'à partir des positions absolues.

La force qui s'exerce entre deux atomes dérive d'une grandeur physique $U(r)$, le potentiel d'interaction :

$$\vec{F}_{ij} = -\Delta U(|\vec{r}_i - \vec{r}_j|) \quad (\text{II. 15})$$

En fait, ces notions de force et de potentiel d'interaction ne sont pas uniquement limitées aux cas des interactions entre atome mais peuvent être étendues à tout autre particule (molécules, matériaux granulaires ...).

II.4.6.2. Les potentiels de paires

On suppose que les interactions entre atomes se font séparément par paire. L'énergie potentielle totale est donnée par la somme des potentiels individuels :

$$U(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N) = \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N \Phi(r_{ij}) \quad (\text{II. 16})$$

avec $\vec{r}_{ij} = |\vec{r}_i - \vec{r}_j|$

Le potentiel décroissant rapidement lorsque r_{ij} augmente, on introduit généralement une distance de coupure r_c , telle que :

$$\Phi(r_{ij}) = 0 \quad \text{si} \quad r_{ij} > r_c \quad (\text{II. 17})$$

Cette simplification ne modifie en rien le résultat réduit considérable le nombre de calculs qui devient d'ordre N (le nombre de calculs varie linéairement avec le nombre d'atomes) [32].

II.4.6.2.1. Potentiel de sphères dures

Le potentiel de sphères dures a été le premier potentiel utilisé en Dynamique Moléculaire, il modélise le cas de collisions instantanées. Même s'il ne fournit aucune information sur l'énergie du système puisque il ne modélise pas les liaisons [33] (Fig. II.7) :

$$\Phi_{ij}(r_{ij}) = \begin{cases} \infty & (r_{ij} \leq \sigma) \\ 0 & (r_{ij} > \sigma) \end{cases} \quad (\text{II. 18})$$

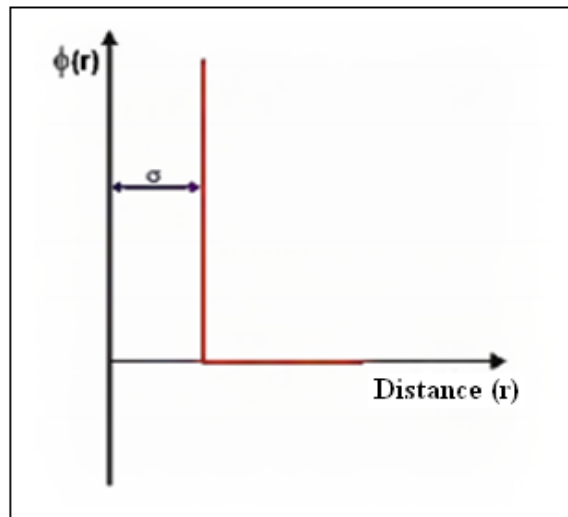


Figure II.7. Potentiel de sphère dures $\Phi(r)$ en fonction de la distance r .

Ce potentiel est surtout utilisé dans la simulation de milieux granulaires ; il peut aussi simuler qualitativement des milieux atomiques ou moléculaires (liquide) très simplifiés [34].

II.4.6.2.2. les potentiels de paires complets

Pour modéliser correctement un potentiel d'interactions, il faut donc au minimum une partie répulsive et une partie attractive, afin d'obtenir une position stable, c'est-à-dire un minimum d'énergie. Deux potentiels répondent en particulier à ce critère : le potentiel de Lennard-Jones et le potentiel de Morse [35].

II.4.6.2.2.1. Le potentiel de Lennard-Jones

Ce potentiel est donné par (Fig. II.8):

$$\Phi_{LJ}(r_{ij}) = 4\varepsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^m - \left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^n \right] \quad (\text{II. 19})$$

où ε et σ sont des paramètres ajustables ;

ε représente la valeur du potentiel pour r_0 (position d'équilibre) et σ correspond à la position r pour laquelle le potentiel est nul.

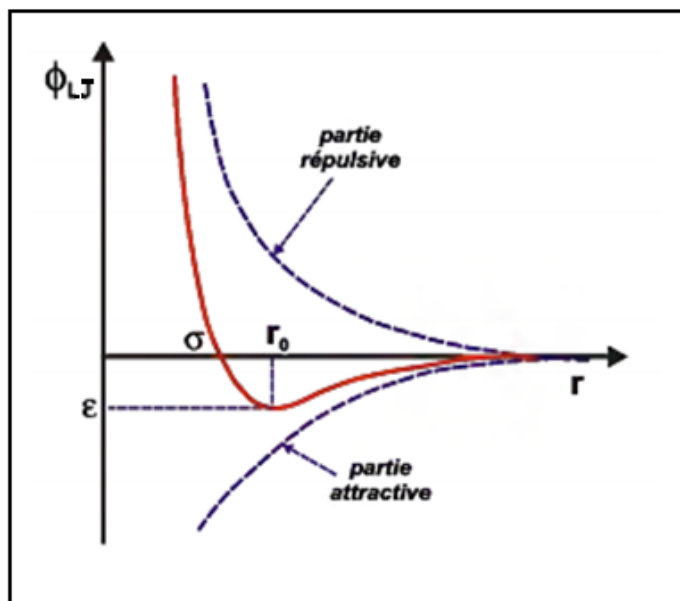


Figure II.8. Potentiel de Lennard-Jones.

Le potentiel de Lennard-Jones le plus utilisé est le potentiel d'indices $m = 12$ et $n = 6$.

Le terme d'indice m , dominant à courte distance, modélise la répulsion entre atomes quand ils sont très proches. Son origine physique est liée au principe de Pauli ; quand les nuages électroniques entourant les atomes commencent à se chevaucher, l'énergie du système augmente brusquement.

Le terme d'indice n , dominant à grande distance, constitue la partie attractive du potentiel. Il crée la cohésion du système et traduit l'action des forces de dispersion de Van der Waals [36].

II.4.6.2.2.2. Potentiel de Morse

Le potentiel de Morse est équivalent au potentiel de Lennard-Jones utilisé pour une partie attractive et une partie répulsive avec des exponentielles. Il est physiquement plus approprié mais le calcul d'une exponentielle est plus coûteux en terme de calcul. Ce potentiel est largement utilisé pour modéliser les molécules diatomiques avec des liaisons covalentes.

$$\Phi(r_{ij}) = D \cdot \exp[-2\alpha(r_{ij} - r_0)] - 2D \cdot \exp[-\alpha(r_{ij} - r_0)] \quad (\text{II. 20})$$

où D , α et r_0 sont des paramètres ajustables.

Les potentiels de paires de type Lennard-Jones ou Morse donnent une bonne description des interactions dans des systèmes tels que les gaz rares et la structure électronique d'un atome ou d'une molécule n'est pas perturbée par l'environnement de coordination locale de cet atome ou de cette molécule.

Dans les métaux, l'environnement local affecte significativement les liaisons entre atomes. De ce fait, les potentiels de paires ne peuvent pas donner une description précise des interactions du système. Les potentiels de paires n'arrivent pas non plus à prévoir la relaxation interne des couches externes des atomes d'une surface métallique [37].

Références bibliographiques

- [1] G. Geneste, manuscrit de thèse, 94 (2003).
- [2] C. Klitt, 5^e édition Dunod, Paris, 594 (1983).
- [3] K. Ohno, K. Esfarjani et Y. Kawazoe, Springer, Berlin, 129 (1999).
- [4] N. Metropolis, A.W. Rosenbluth, M.N. Rosenbluth, A.H. Teller, E. Teller, J. Chem. Phys. 21 (1953) 1087.
- [5] F. James, Rep. Prog. Phys. 43 (1980) 1145.
- [6] R.B. Potts, Proc. Camb. Phil. Soc. 48 (1952) 106.
- [7] J.Von Neumann, A.W. Burks, University of Illinois Press, (1966).
- [8] A. Dollet, Surf. Coat. Technol. 177 (2004) 245.
- [9] M. Sprik, (1995) 421.
- [10] E.S. poher, G. Palinkas, P. Bopp, M.M. Probst, J. chem. 92 (1988) 6754.
- [11] K. Heinzinger, Pure Appl, G. Palinkas, H.ED.Springer Verlag, Berlin, 57 (1987) 1031.
- [12] F.H. Stillinger, A. Rahman, J. chem, 60 (1974) 1545.
- [13] O. Matsuoka, E. Clementi, M. Yoshimine, J.chem, 64 (1976).
- [14] W. Jorgensen, J. chem. Phys. 77 (1982) 4156.
- [15] J.R. Reimers, R.O. Watts, M.L. Klein, chem, Phys. 64 (1982) 95.
- [16] Y. Kataoka, H. Hamada, S. Nose, T. Yamamoto, J. chem, Phys. 77 (1982) 5699.
- [17] N. Metropolis, A.W. Rosenbluth, M.N. Rosenbluth, A.H. Teller, E. Teller, Journal of Chemical Physics, 21 (1953) 1087.
- [18] H. Eyring, Journal of Chemical Physics, 3 (1935) 107.
- [19] S. Glasstone, K.J. Laidler, H. Eyring, McGraw-Hill Book Company Inc, New York, (1941).
- [20] A.D. Rollett, Mat. Sci. 42 (1997) 79.
- [21] E.A. Holm, A.D. Rollett, D.J. Srolovits, Comp. Sim. Mat. Sci. 373 (1996).
- [22] M.P. Anderson, D.J. Srolovitz, G.S. Grest, P.S. Sahni, Acta Metall. 32 (1984) 783.
- [23] D.J. Srolovitz, M.P. Anderson, P.S. Sahni, G.S. Grest, Acta Metall. 32 (1984) 793.
- [24] D.J. Srolovitz, M.P. Anderson, G.S. Grest, P.S. Sahni, Acta Metall. 32 (1984) 1429.

- [25] D.J. Srolovits, M.P. Anderson, P.S. Sahani, G.S. Grest, *Acta. Metall.* 32 (1984) 793. [26] G. Geneste, *manuscrit de these*, (2003).
- [27] K. Ohno, K. Esfarjani, Y. Kawazoe, Springer, Berlin, (1999).
- [28] N. Metropolis, A.W. Rosenbluth, M.N. Rosenbluth, A.H. Teller, E. Teller, *J. Chem. Phys.* 21(1953) 1087.
- [29] F. James, *Rep. Prog. Phys.* 43 (1980) 1145.
- [30] R.B. Potts, *Proc. Camb. Phil. Soc.* 48 (1952) 106.
- [31] J. von Neumann et A.W. Burks, University of Illinois Press, (1966).
- [32] M. BORN, J.E. MAYER, *Z. Physik.* 75 (1932) 1.
- [33] M. Dijkstra, R. van Roij, R. Evans, *Phys. Rev. Lett.* 81 (1998) 2268.
- [34] M. BORN, J.E. MAYER, *Z. Physik.* 75 (1932) 1.
- [35] J.E. LENNARD-JONES, *Proc. Roy. Soc. London*, A106 (1924) 463.
- [36] P.M. MORS, *Phys. Rev.* 34 (1929) 57.
- [37] B.M. Axilrod, E. Teller, *J. Chem. Phys.* 11 (1943) 299.

CHAPITRE III

SIMULATION DE LA CROISSANCE DES GRAINS

Chapitre III \ Simulation de la croissance des grains

III.1. Introduction

En sciences des matériaux, la simulation numérique permet d'expérimenter les principes gouvernant la physique du phénomène qu'on veut étudier. Parmi les thèmes les plus connus, la simulation permet de traiter les surfaces et interfaces (joints de grains), la croissance de grains (croissance normale ou anormale), les défauts (dislocations, lacunes, interstitiels), les transitions de phases et les solides ordonnés ou désordonnés. Le phénomène de croissance des grains gouverne l'évolution des propriétés mécaniques, électriques et magnétiques des matériaux polycristallins. A l'échelle mésoscopique, Plusieurs méthodes de simulation de la croissance des grains sont utilisées. Ces techniques de simulation sont partagées en deux catégories, probabilistes et déterministes. Les deux principales techniques de simulation utilisées dans le domaine de la matière condensée sont la méthode probabiliste de Monte Carlo (MC) [1-3] et la méthode déterministe de la dynamique moléculaire (DM) [4, 5]. Les approches statistiques de la technique MC traitent le changement moyen de l'ensemble de grains de la matrice. Dans ce cas, la croissance d'un grain donné est contrôlée par l'évolution moyenne de tous les grains, et non pas par son entourage réel. En réalité, la croissance de grains est réalisée par le transfert d'atomes d'un grain vers un grain voisin à travers les joints de grains pour rejoindre les états énergétiques les plus stables. Ce mouvement réel d'atomes peut être simulé par la dynamique moléculaire. Malheureusement ce mouvement est difficile à simuler par cette technique vu le grand nombre de paramètres à traiter en même temps.

Ce chapitre est consacré à la simulation de la croissance normale des grains par ces deux techniques (MC et DM). Une étude comparative sera faite pour les deux méthodes. On a utilisé le logiciel MATLAB pour réaliser nos propres programmes de simulation. Ces programmes nous permettent d'une part de simuler la croissance des grains et d'autre part de suivre l'évolution de la microstructure. La simulation est faite à partir d'une microstructure bidimensionnelle 200x230 sites sur un maillage triangulaire (Fig. III.1).

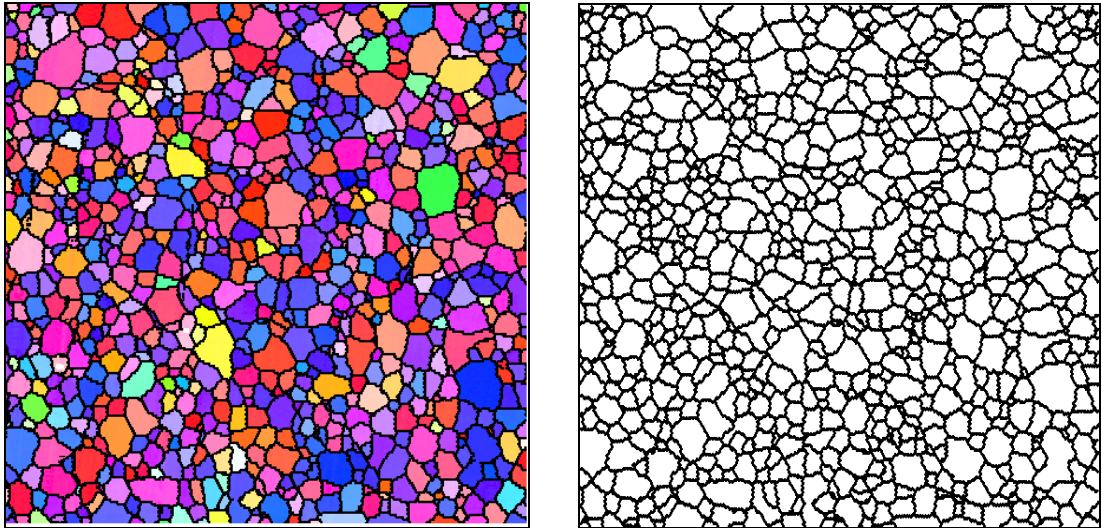


Figure III.1. Microstructure initiale utilisée en simulation : (a) MC et (b) DM.

La figure III. 2 représente la distribution en taille de grains pour la matrice primaire. Il existe des grains dont la taille est largement supérieure à la taille moyenne de la microstructure. Donc, Ces grains sont candidats à croître d'une façon anormale.

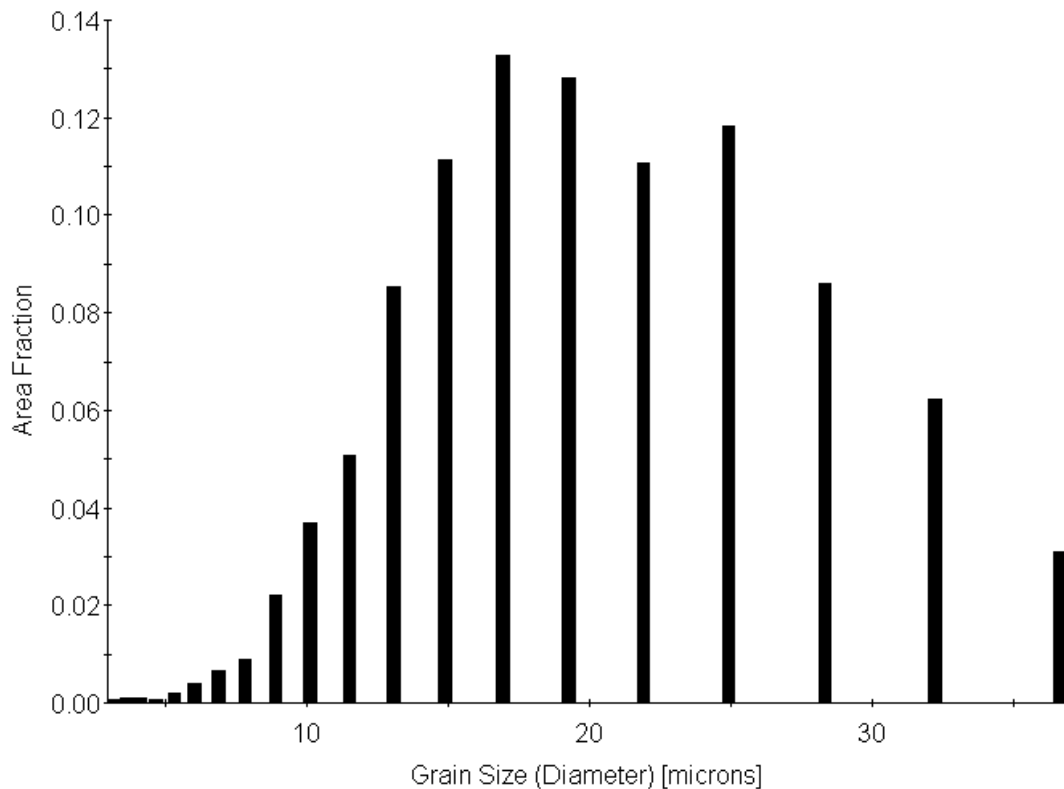


Figure III.2. Distribution en taille de grains de la matrice primaire.

III.2. Simulation de la croissance normale des grains par la technique Monte Carlo

Pour faire une étude comparative entre les deux méthodes de simulation (MC et DM). La première simulation est faite à l'aide de la technique MC pour le cas isotrope (sans texture) à $T = 0K$ suivant l'organigramme dans la figure II.5.

Pour vérifier la procédure de simulation, il faut toujours procéder à des tests de validation. Pour étudier l'isotropie de croissance des grains, le test le plus fréquent est la simulation de la croissance d'un grain circulaire noyé dans une matrice d'orientation différente.

La figure III. 3 montre l'évolution de la taille et de la morphologie d'un grain insulaire en simulation MC. Nous remarquons que le grain perd sa forme circulaire et sa taille diminue d'une façon continue jusqu'à disparition totale.

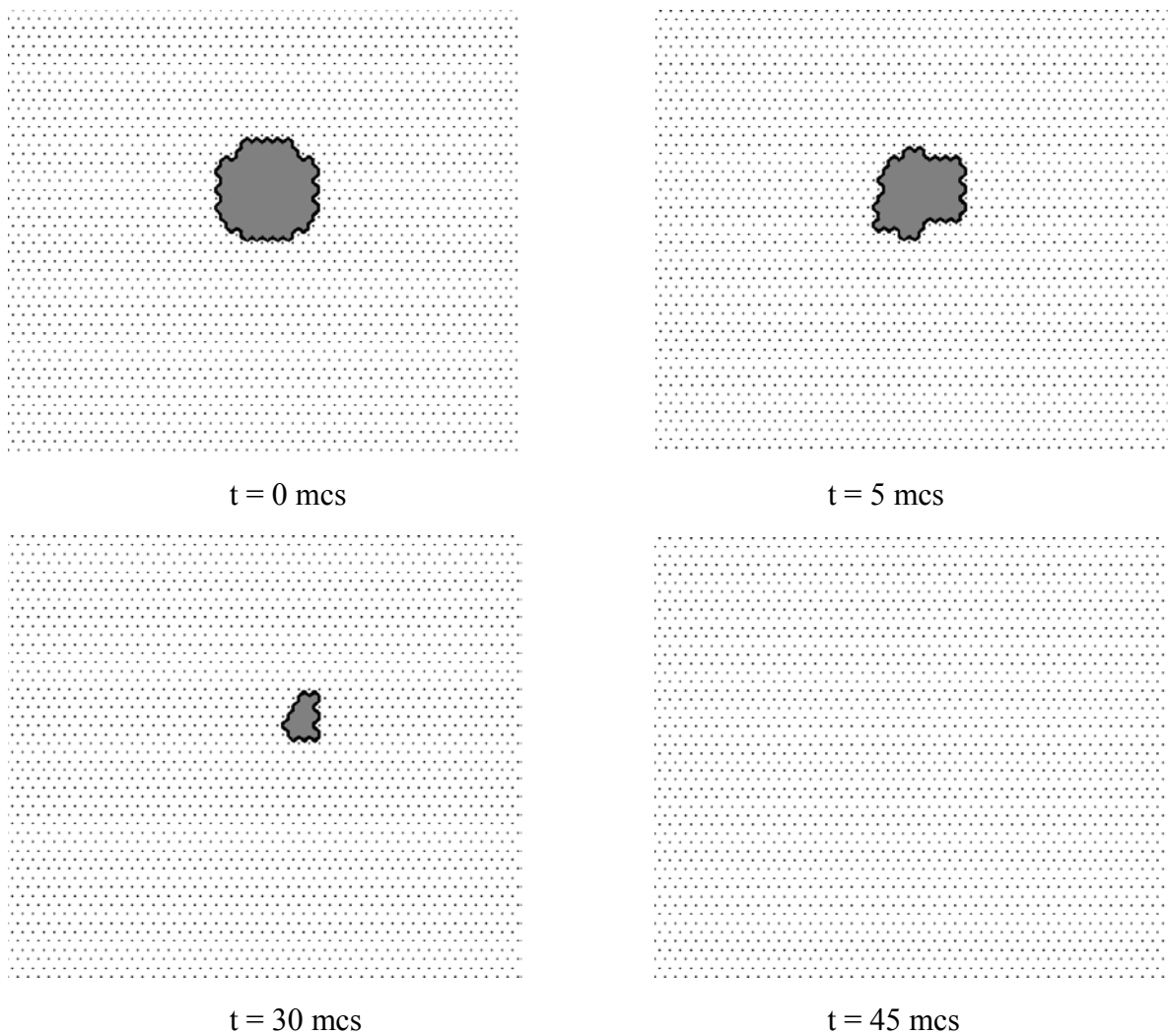


Figure III.3. Variation de la morphologie d'un grain insulaire par la méthode de MC.

Parmi les autres tests de validation, on peut citer aussi les deux testes :

- 1- La variation de la taille moyenne de la microstructure \bar{R} obéit à la loi théorique :

$$\bar{R}^2 - \bar{R}_0^2 = kt \quad (\text{III. 1})$$

où \bar{R}_0 est la taille moyenne initiale de la matrice (Fig. III. 1) et k est une constante.

- 2- Un grain possédant moins de 6 voisins aura tendance à disparaître et s'il en possède plus de 6 voisins il aura tendance à croître. Un grain entouré par 6 joints à 120° sera stable.

La figure III. 4 montre l'évolution de la taille moyenne de la microstructure primaire \bar{R} (Fig. III.1) pour différents mcs. On observe une augmentation continue de la taille moyenne \bar{R} . Admettant que la pente de la variation de \bar{R} sur la figure III. 4 représente la vitesse de la croissance des grains, on peut distinguer deux cas :

- 1- une croissance rapide jusqu'à $t = 200$ mcs ;
- 2- après, la croissance devient plus lente.

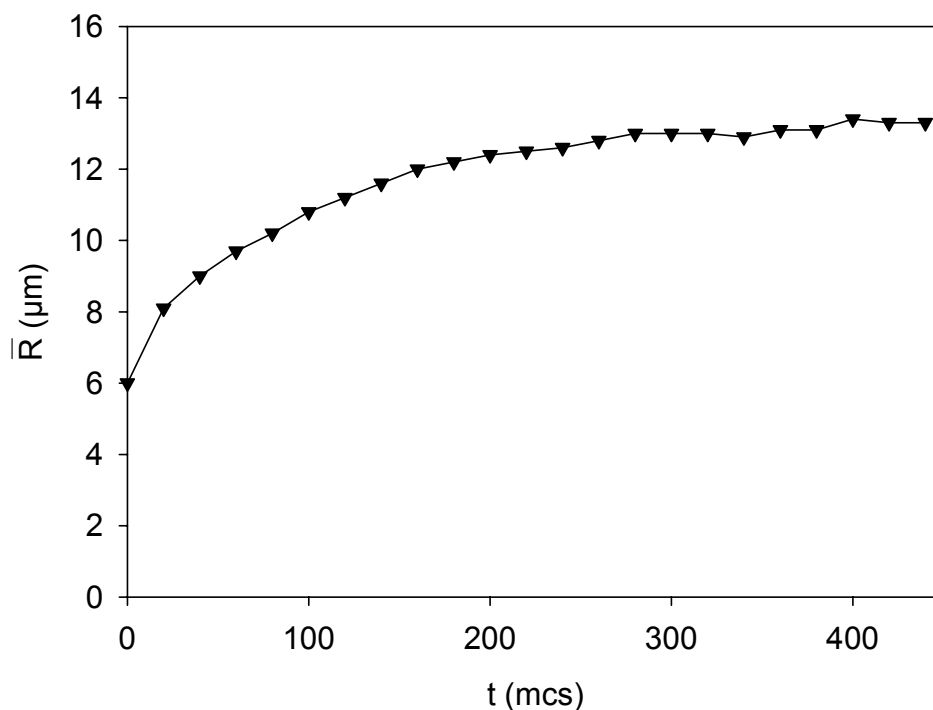
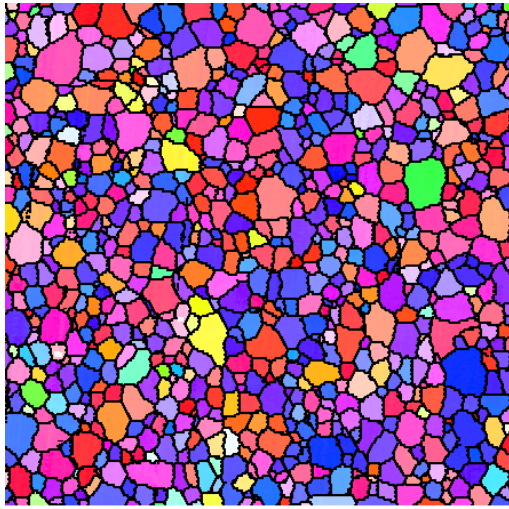


Figure III.4. Evolution de la taille moyenne de la matrice \bar{R} en fonction du temps mcs.

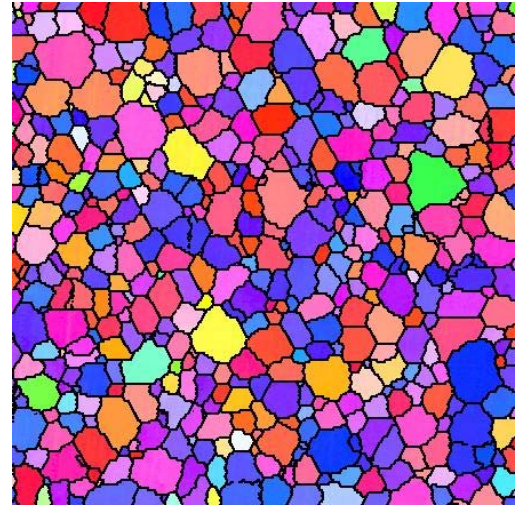
Cette évolution correspond à une croissance normale de la microstructure primaire (Fig. III.1).

La figure III. 5 montre les changements de la microstructure pour différents mcs. On observe

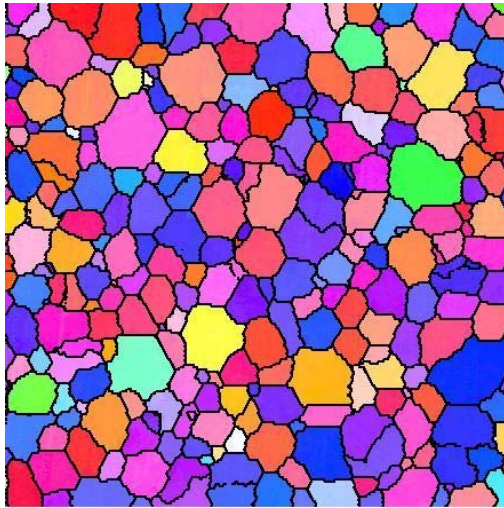
une croissance homogène des grains de la matrice primaire.



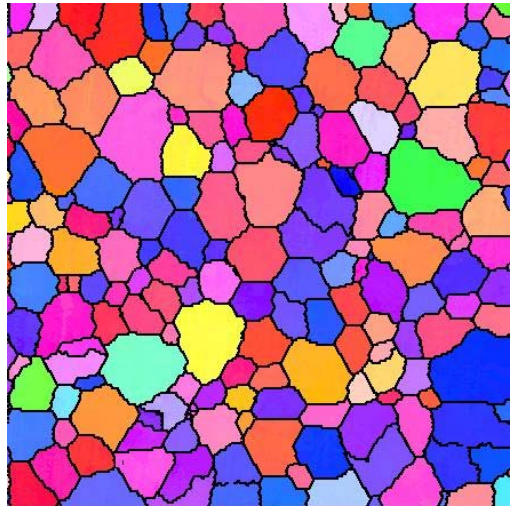
t = 0 mcs



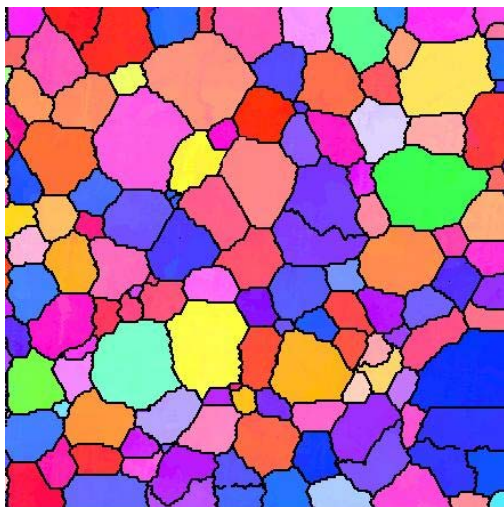
t = 40 mcs



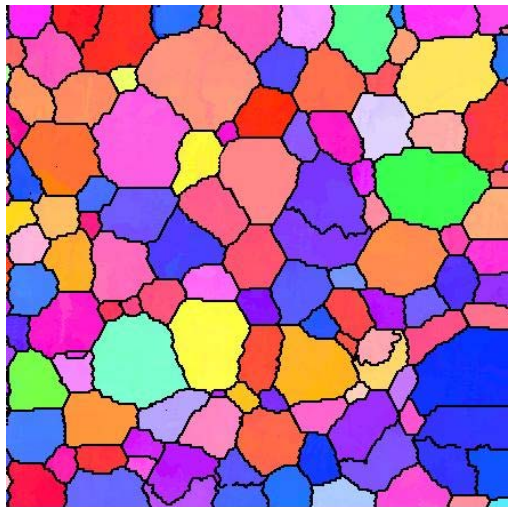
t = 120 mcs



t = 200 mcs



t = 360 mcs



t = 400 mcs

Figure III.5. Evolution de la microstructure pour différents mcs (t = 0- 400 mcs).

On note que cette simulation a été faite pour le cas isotrope ou les joints de grains sont supposés avoir la même énergie. Cette énergie est prise égale à l'unité. Donc, on a considéré seulement le paramètre géométrique qui est la forme des joints de grains. Au cours de la croissance normale des grains, la force motrice est contrôlée par la courbure des joints de grains. Un joint de grain avance vers son centre de courbure et sa forme devient rectiligne. La matrice tend vers un état de stabilisation ou les joints de grains forment entre eux des angles de 120° . Cela est vérifié au cours de cette simulation. On voit, par exemple pour la microstructure correspondante à $t = 400$ mcs (Fig. III.5), les joints de grains deviennent rectilignes et forment entre eux des angles de 120° . De plus, les grains dont le nombre de voisins est supérieur à 6 vont croître, pour le cas contraire ces grains vont décroître jusqu'à disparition totale. Les grains dont le nombre de voisins est égal à 6 seront stables. La figure III.6 montre la variation de \bar{R}^2 avec le temps (mcs). On observe que cette variation obéit à la loi générale de type :

$$\bar{R}^2 = kt + B \quad (\text{III. 2})$$

avec k et B sont des constantes.

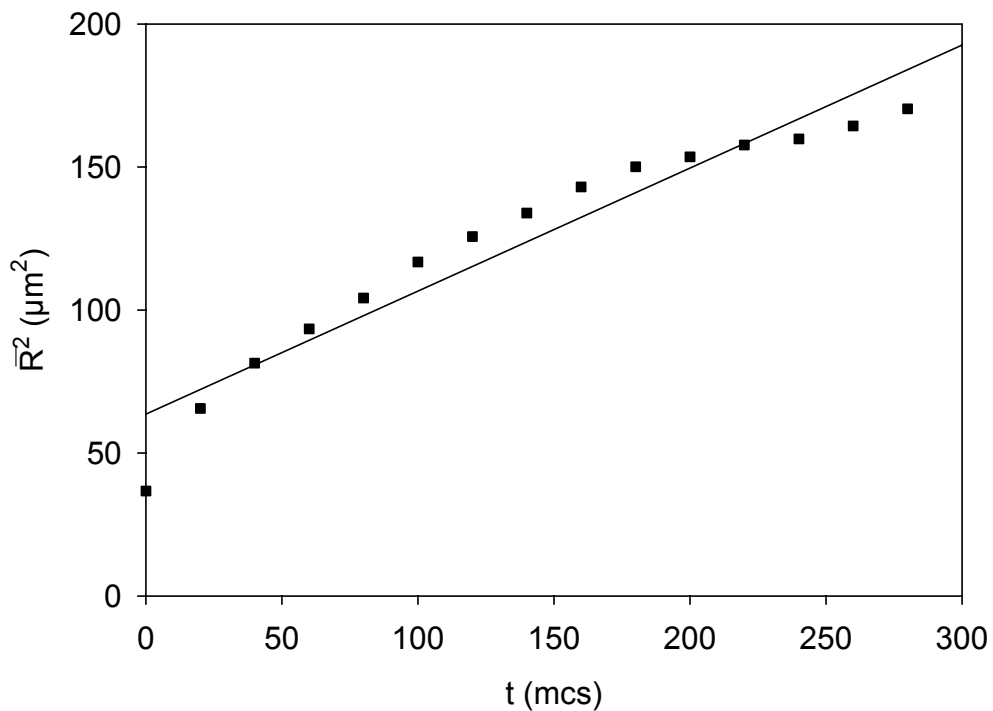


Figure III.6. Variation de \bar{R}^2 en fonction du temps (mcs).

III.3. Simulation de la croissance normale des grains par la Dynamique Moléculaire

La limitation intrinsèque de la simulation Monte Carlo provient de ce qu'on ne considère pas la dynamique réelle du système. La dynamique Moléculaire repose sur une description moléculaire en termes de positions et quantités de mouvement pour un ensemble de particules qui constituent le système. L'énergie potentielle qui décrit les interactions inter-atomiques (force inter-atomiques) est en général mal connue et constitue, de ce fait, une limitation importante de cette méthode de simulation. De plus, il est difficile de simuler par cette technique la croissance des grains à l'échelle mésoscopique vu le grand nombre de paramètres à traiter en même temps. La qualité d'une simulation de Dynamique Moléculaire est évidemment liée à la rapidité de l'exécution du programme. Notons que l'essentiel du temps de calcul dans une dynamique moléculaire est consommé dans le calcul des forces. Au cours de cette étude, nous avons appliqué une simulation modifiée dans laquelle la force motrice pour la migration des joints de grains est injectée directement dans le processus de simulation. Donc, on n'a pas besoin de définir une énergie potentielle puisque la force motrice est due à la courbure des joints de grains. De ce fait, la simulation est considérée pour les joints de grains et non pas pour les atomes qui forment ces joints de grains.

D'après la seconde loi de Newton, on a :

$$\vec{F}_{ij}(t) = m_{ij} \frac{d^2 \vec{r}_{ij}(t)}{dt^2} \quad (\text{III. 3})$$

où :

- $\vec{F}_{ij}(t)$ est la force agissant sur un site du joint de grains 'ij' à l'instant 't' ;
- m_{ij} est une masse ponctuelle d'un site du joint de grains 'ij' ;
- $\vec{r}_{ij}(t)$ est la position de ce site à l'instant 't'.

Connaissant la position et la vitesse d'un site 'ij' à l'instant 't', on peut connaître sa position et sa vitesse à l'instant 't + Δt' où Δt est le pas d'intégration grâce par exemple à l'algorithme de Verlet [6] (voir § II.4.4.1). Pour des raisons de simplicité, nous considérons que la force motrice

est constante au cours du déplacement des joints de grains. Dans ce cas, on peut écrire l'équation du mouvement sous la forme :

$$\vec{r}_{ij}(t + \Delta t) = \frac{\vec{F}_{ij}(t)}{2m_{ij}}.(\Delta t)^2 + \vec{v}_{ij}(t).\Delta t + \vec{r}_{ij}(t) \quad (\text{III. 4})$$

$$\vec{v}_{ij}(t + \Delta t) = \frac{\vec{F}_{ij}(t)}{m_{ij}}.(\Delta t) + \vec{v}_{ij}(t) \quad (\text{III. 5})$$

où $\vec{v}_{ij}(t)$ est la vitesse de site 'ij' à l'instant 't'.

La trajectoire de différents joints de grains est générée par ces deux équations.

Pour faire une comparaison avec la simulation Monte Carlo, on va refaire les mêmes simulations précédentes. Pour vérifier nos programmes de simulation, la première simulation est faite pour le cas d'un grain insulaire. La figure III. 7 montre l'évolution par simulation Dynamique Moléculaire d'un grain circulaire noyé dans une matrice d'orientation différente. Les conditions initiales de simulation sont la vitesse $v_0 = 1.5 \mu\text{m/s}$ et le pas d'intégration $\Delta t = 1$ seconde. Comme le cas Monte Carlo, nous remarquons que le grain perd sa forme circulaire et sa taille diminue d'une façon continue jusqu'à disparition totale.

La simulation suivante est faite pour la matrice primaire (Fig. III.1) avec les mêmes conditions initiales, la vitesse $v_0 = 1.5 \mu\text{m/s}$ et le pas d'intégration $\Delta t = 1$ seconde. La figure III. 8 montre une augmentation continue de la taille moyenne de la matrice \bar{R} avec des vitesses différentes. La croissance de grain est plus rapide pour l'intervalle du temps [20-50]s que pour l'intervalle [0-20]s. Une stabilisation est observée après $t = 50$ s.

Il faut noter que la croissance normale est d'autant plus rapide que la taille de grains augmente et leur nombre diminue. De ce fait, la taille moyenne de la microstructure \bar{R} va augmenter. Par comparaison de l'évolution de \bar{R} par les deux techniques, Monte Carlo (Fig. III.4) et la Dynamique Moléculaire (Fig. III.8), on constate que la croissance normale de grains est plus rapide pour la simulation Dynamique Moléculaire.

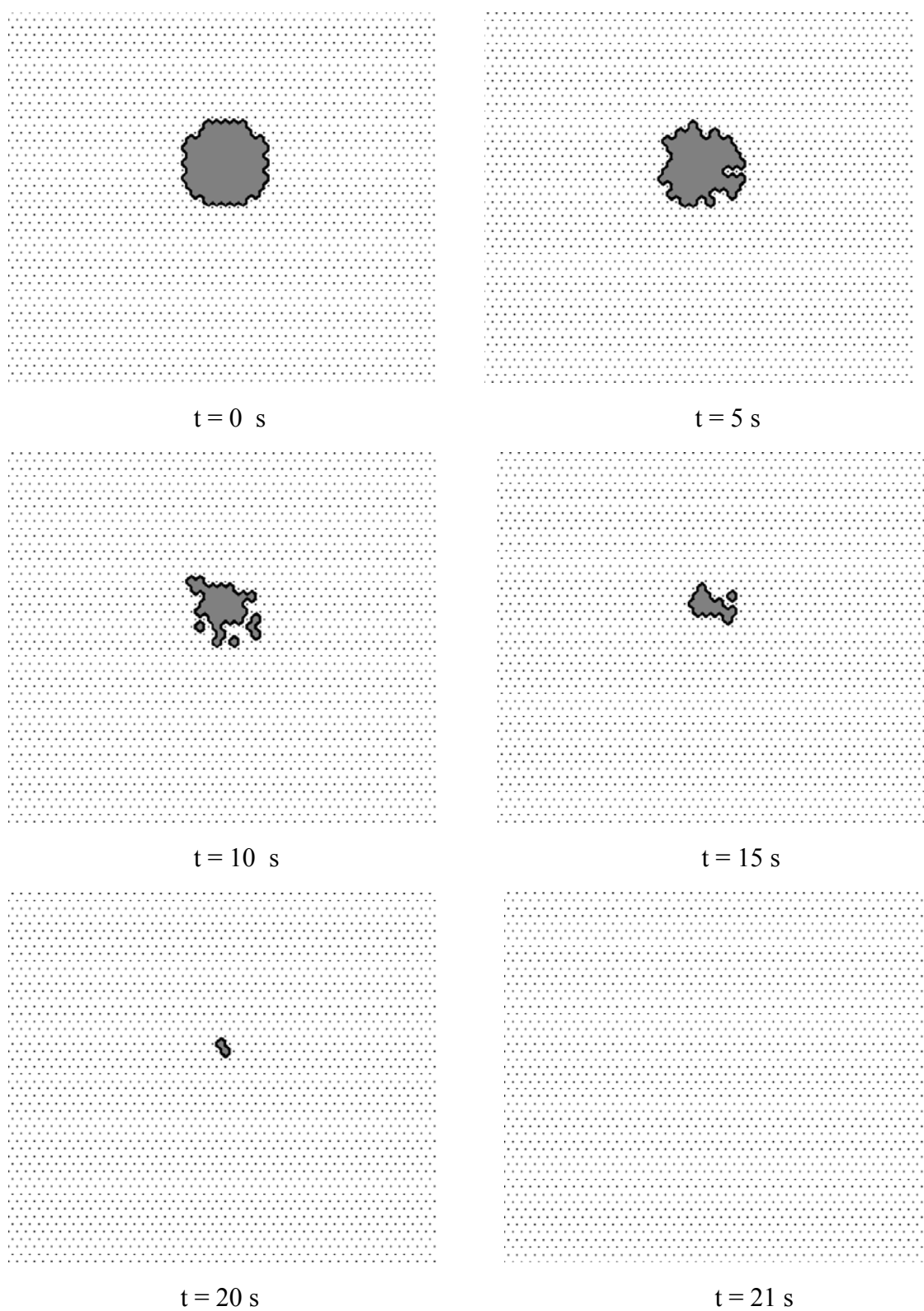


Figure III.7. Evolution d'un grain insulaire par la méthode de la Dynamique Moléculaire.

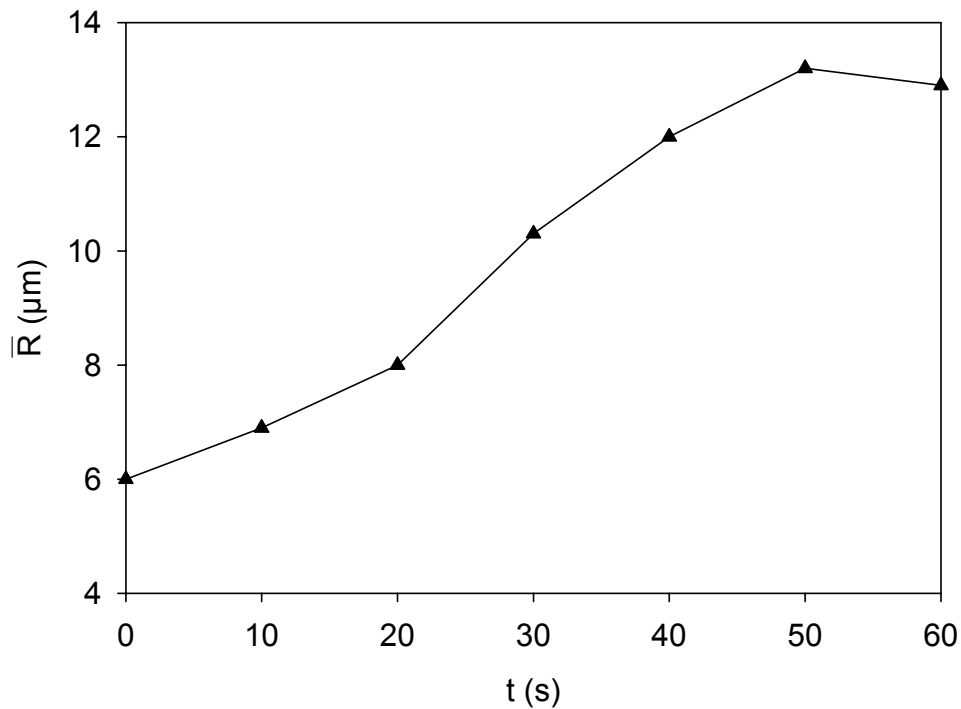


Figure III.8. Evolution de la taille moyenne de la matrice \bar{R} en fonction du temps.

La figure III. 9 montre l'évolution de la microstructure en fonction du temps réel par la technique de la Dynamique Moléculaire. On observe :

- une croissance normale rapide ;
- la migration des joints de grains ne se fait pas vers leurs centres de courbure ;
- une croissance pour les grains dont le nombre de voisins est supérieur à 6 et décroissance dans le cas contraire ;
- la forme des joints de grains n'est pas rectiligne.

Au cours de simulation de la croissance normale, on a remarqué que l'aspect topologique de la microstructure et par conséquent la forme des grains est plus proche de l'évolution expérimentale pour la technique Monte Carlo. Cela est dû à la minimisation de l'énergie totale utilisée dans la technique Monte Carlo et non pas dans la simulation Dynamique Moléculaire.

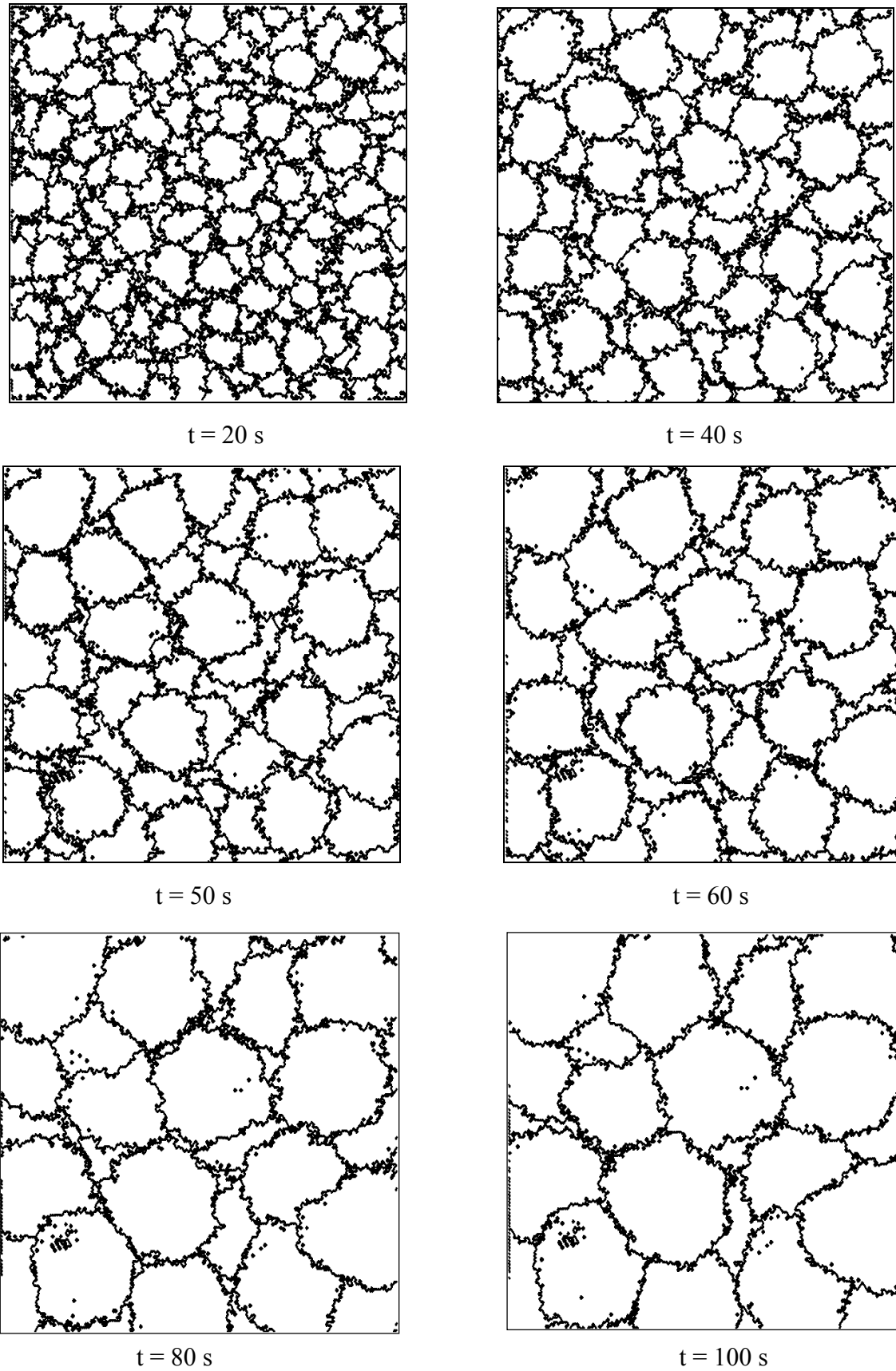


Figure III.9. Evolution de la microstructure en fonction du temps par la simulation DM.

La figure III.10 montre la variation de la taille moyenne \bar{R}^2 avec le temps. Cette variation obéit à la loi générale dans l'équation III. 2.

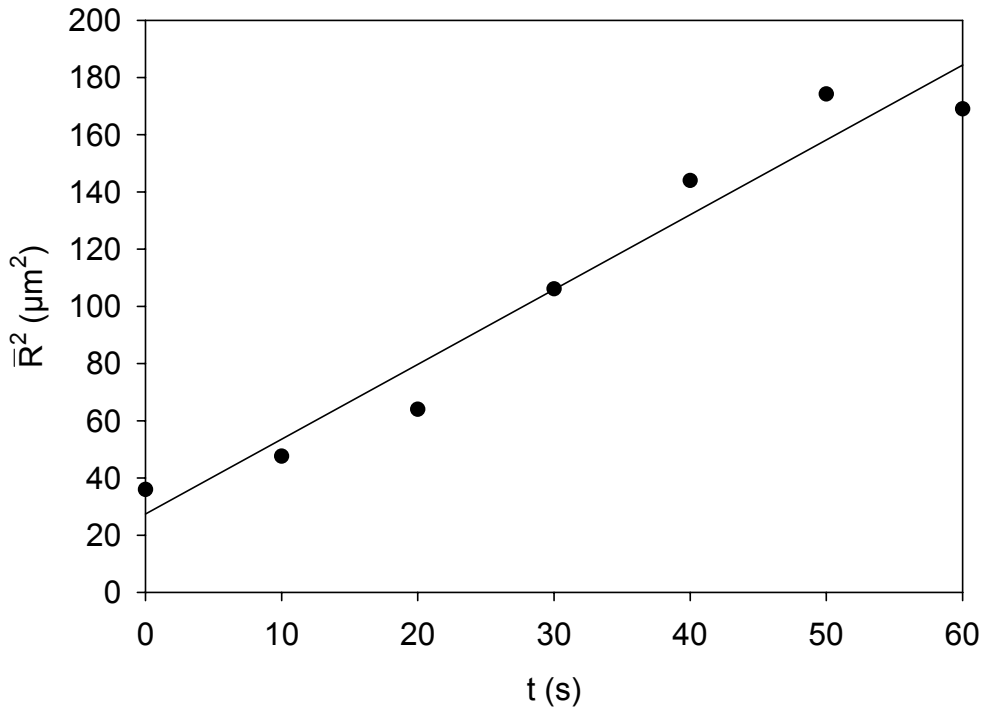


Figure III.10. Variation de \bar{R}^2 en fonction du temps (s).

III.4. Comparaison entre les méthodes de Monte Carlo et de la Dynamique Moléculaire

La comparaison entre les deux méthodes de Monte Carlo et de la Dynamique Moléculaire se fait suivant le problème à traité pour obtenir des propriétés d'équilibre du système. La méthode de Monte Carlo est plus facile à appliquer pour simuler la croissance de grains. Les résultats obtenus par cette technique de simulation sont comparables aux résultats expérimentaux. Malheureusement, puisque cette méthode est probabiliste, il existe plusieurs paramètres qui sont difficiles ou impossible à étudier par la technique Monte Carlo tels que les concepts temps et température par exemple. La limitation de la simulation Monte Carlo provient de ce qu'on ne considère pas la dynamique réelle du système. Par contre, la méthode de la Dynamique

Moléculaire simule le mouvement réel des grains. Cette méthode est incluse dans les méthodes déterministes. La Dynamique Moléculaire permet alors de trouver des chemins plus directs que ceux générés par des mouvements aléatoires Monte Carlo. En croissance, il s'agit de déterminer le transfert d'atomes à travers les joints de grains. Compte tenu du nombre important d'atomes à étudier pour décrire le mouvement des joints de grains, il est impossible de simuler ce mouvement actuellement par cette méthode, notamment en 3D [7, 8].

Pour une simple comparaison des deux méthodes de Monte Carlo et de la Dynamique Moléculaire, le tableau III.1 regroupe, à partir d'une étude bibliographique et des résultats obtenus, les principales différences entre les deux méthodes.

Méthode de Monte Carlo Metropolis (Potts)	Méthode de la Dynamique Moléculaire classique
<ul style="list-style-type: none"> • Echantillonnage de l'espace ; • Chaîne de Markov ; • Algorithme de Metropolis ; • Le concept de temps est absent ; • Accès aux grandeurs statistiques ; • Croissance normale de la microstructure. • Vérification de la loi de Van Neumann. 	<ul style="list-style-type: none"> • Echantillonnage de l'espace ; • Equation de Newton ; • Algorithme de Verlet ; • Le temps est une variable ; • Accès aux grandeurs statistiques et dynamiques ; • Croissance normale de la microstructure. • Vérification de la loi de Van Neumann.

Tableau III.1. Comparaison entre méthode de Monte Carlo et de la Dynamique Moléculaire.

III.5. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats obtenus par simulation de la croissance normale des grains par deux techniques différentes : Monte Carlo et la Dynamique Moléculaire. On a commencé la simulation par des tests de validation. Le test le plus fréquent est la simulation de la croissance d'un grain circulaire noyé dans une matrice d'orientation différente. Ensuite on a simulé la croissance normale de grains par ces deux techniques. Du point de vue programmation, la technique Monte Carlo est la plus simple par rapport à la Dynamique moléculaire. La croissance normale de grains est réalisée par le mouvement des joints qui les entourent. Ce mouvement correspond au transfert d'un très grand nombre d'atomes d'une part et d'autre des joints de grains. Cela est difficile, même impossible à simuler par la méthode de la Dynamique Moléculaire. Donc, on a utilisé une technique Dynamique Moléculaire modifiée dans laquelle on a remplacé le mouvement des atomes par le mouvement global des joints de grains. On a utilisé un pas d'intégration $\Delta t = 1$ seconde. Les résultats de simulation ont montré une croissance normale de grains plus rapide pour la technique Dynamique Moléculaire que pour la technique Monte Carlo. D'autre part, l'aspect topologique de la microstructure est plus proche de l'évolution expérimentale de grains pour la technique Monte Carlo que pour la technique Dynamique Moléculaire.

Références bibliographiques

- [1] M. P. Anderson, D. J. Srolovitz, G. S. Grest; P. S. Sahni, Acta Metall. 32 (1984) 783.
- [2] D. J. Srolovitz, M. P. Anderson, P. S. Sahni, G. S. Grest, Acta Metall. 32 (1984) 793.
- [3] D. J. Srolovitz, M. P. Anderson, G. S. Grest, P. S. Sahni, Acta Metall. 32 (1984) 1429.
- [4] D. Frenkel, B. Smit, Understanding Molecular Simulation- From Algorithms to Applications, Academic press, san diego edition (1996).
- [5] M. Meyer, V. Pontikis, Proceeding of the NATO ASI on Computer Simulation in Material Science (1993).
- [6] L. Verlet, Phys. Rev. 159 (1967) 98.
- [7] V. Yu, Acta metall. 26 (1978) 1739.
- [8] A.J. Haslam, S.R. Phillpot, D. Wolf, D. Moldovan, H. Gleiter, Mater. Sci. Eng. A 318 (2001) 293.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

En science des matériaux, des progrès importants ont pu être réalisés en combinant la simulation numérique à plusieurs échelles et l'expérimentation. La simulation est une procédure de recherche scientifique qui consiste à réaliser une reproduction artificielle du phénomène réel, que l'on désire étudier. Les deux principales techniques utilisées dans le domaine de la simulation en physique de la matière condensée sont la méthode de **Monte Carlo (MC)** et la **Dynamique Moléculaire (DM)**. La simulation de **la croissance des grains** par ces deux méthodes repose sur une description de la configuration initiale (microstructure) de la matrice primaire.

Notre travail a porté sur l'étude par simulation numérique de la croissance normale des grains par les deux techniques de simulation, Monte Carlo et la Dynamique Moléculaire. Nous avons comparé les deux méthodes pour l'évolution de la microstructure et la migration des joints de grains.

Le travail est composé de deux parties :

- dans la première partie, on a appliqué la technique Monte Carlo suivant le modèle de Potts pour simuler la croissance normale des grains en 2D. cette technique est basée sur la relaxation de l'énergie emmagasinée dans les joints de grains.
- dans la deuxième partie, une simulation Dynamique Moléculaire qui consiste à générer la migration des joints de grains, c'est-à-dire la croissance d'un ensemble de grains en intégrant d'une façon directe les équations classiques du mouvement de Newton. Nous avons choisi cette technique pour simuler le chemin réel de croissance des grains. Nous avons appliqué une simulation modifiée dans laquelle la force motrice pour la migration des joints de grains est injectée directement dans le processus de simulation. Donc, on n'a pas besoin de définir une énergie potentielle. De ce fait, la simulation est considérée pour les joints de grains et non pas pour les atomes qui forment ces joints de grains.

Au cours de la croissance normale des grains, la force motrice est contrôlée par la courbure des joints de grains. Un joint de grains avance vers son centre de courbure et sa forme devient rectiligne. La matrice tend vers un état de stabilisation où les joints de grains forment entre eux

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

des angles de 120° . Cela est vérifié au cours de la simulation Monte Carlo et non pas pour la Dynamique Moléculaire. Les résultats de la croissance normale des grains obtenus par les deux méthodes montrent une différence au cours de l'évolution de la matrice. Le temps de calcul est trop long pour la simulation Dynamique Moléculaire que pour la simulation Monte Carlo. Au cours de la croissance normale, la forme des grains est plus proche de l'évolution expérimentale pour la technique Monte Carlo. Cela est dû à la minimisation de l'énergie totale utilisée dans la technique Monte Carlo et non pas dans la simulation Dynamique Moléculaire. De plus, les grains dont le nombre de voisins est supérieur à 6 vont croître, pour le cas contraire ces grains vont décroître jusqu'à disparition totale. Les grains dont le nombre de voisins est égal à 6 seront stables.

En espère élargir notre étude à la croissance de grains pour le cas anisotrope par considération de l'énergie et la mobilité des joints de grains en présence de particules d'une seconde phase. Cela peut mener à une croissance anormale de grains.

Résumé

Les méthodes de simulation sont largement connues comme outils puissants pour l'étude des systèmes réels. Elles ont donné un essor considérable à la simulation de l'évolution de la microstructure. D'abord concernées par la croissance des grains ou des sous-grains, elles se sont étendues à tous les stades de la recristallisation, y compris l'épinglage des joints de grains par les particules. Plusieurs techniques de simulation sont utilisées à l'échelle mésoscopique (croissance des grains). En plus de la technique Monte Carlo (MC), on a choisi la technique de la Dynamique Moléculaire (DM) pour faire une étude comparative entre les deux techniques de simulation.

Mots-clés : Simulation- Monte Carlo- Dynamique Moléculaire- Croissance de grains.

ملخص

تقنيات المحاكاة معروفة على نطاق واسع كطرق قوية لدراسة أنظمة حقيقية، وقد ساهمت بشكل واضح في محاكاة تطور البنية المجهرية. وبالتالي نمو الحبيبات و الحبيبات الفرعية خلال جميع مراحل التبلور بما في ذلك هجرة حدود الحبيبات. وتستخدم عدة تقنيات على المستوى الميزوسكوبي (نمو الحبيبات) بالإضافة إلى تقنية مونتني كارلو (MC) اخترنا تقنية الديناميك الجزيئية (DM) وذلك لأجراء مقارنة بين هاتين التقنيتين .

الكلمات المفتاحية : محاكاة - مونتني كارلو - الديناميك الجزيئية - نمو الحبيبات.