HAL
open science

Formation et extension de macles de déformation dans des nanostructures cfc : simulations numériques

Romuald Béjaud

To cite this version:

Romuald Béjaud. Formation et extension de macles de déformation dans des nanostructures cfc : simulations numériques. Matériaux. Université de Poitiers, 2017. Français. NNT : 2017POIT2318 . tel-03193799

HAL Id: tel-03193799

https://theses.hal.science/tel-03193799

Submitted on 9 Apr 2021

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

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

THÈSE

Pour l'obtention du grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE POITIERS

Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées

Ecole Doctorale : SIMMEA

Domaine de recherche : Milieux Denses, Matériaux et Composants

Présentée par

Romuald BÉJAUD

Formation et extension de macles de déformation dans des nanostructures cfc : Simulations numériques

Directeurs de thèse : **S. Brochard** et **J. Durinck**

Soutenue le 21 décembre 2017

JURY

E. BITZEK	Professeur, Friedrich-Alexander University, Erlangen	*Rapporteur*
O. HARDOUIN DUPARC	Chargé de Recherche CNRS, LSI-Ecole Polytechnique, Palaiseau	*Rapporteur*
F. MOMPIOU	Chargé de Recherche CNRS, CEMES Toulouse	*Examinateur*
A. JOULAIN	Professeur, Institut P', Université de Poitiers	*Examinateur*
S. BROCHARD	Professeur, Institut P', Université de Poitiers	*Examinateur*
J. DURINCK	Maître de Conférences, Institut P', Université de Poitiers	*Examinateur*

Table des Matières

Introduction générale **1**

I État de l'art **5**

I.1 Généralités 6

I.1.1 Définition et classification des macles 6

I.1.2 Maclage mécanique 9

I.1.3 Plasticité dans les matériaux CFC 11

I.1.3.1 Dislocations dans les matériaux CFC 11

I.1.3.2 Maclage mécanique dans les matériaux CFC 15

I.1.3.3 Nucléation et croissance 19

I.2 Maclage à l'échelle nanométrique - nano-macles 22

I.2.1 Maclage mécanique dans les nano-objets monométalliques 23

I.2.2 Cas des matériaux bimétalliques multicouches 25

I.2.3 Macles de croissance 25

I.3 Propriétés des matériaux nano-maclés 26

I.3.1 Propriétés mécaniques 27

I.3.2 Interactions dislocations - joint de macle 29

I.3.3 Autres propriétés 31

II Modèles et méthodes **33**

II.1 Les simulations atomistiques 34
II.1.1 Potentiels semi-empiriques EAM 34
II.1.2 Calcul des positions atomiques 36
II.1.2.1 Minimisation de l'énergie 37
II.1.2.2 Dynamique moléculaire 40
II.1.3 Analyse 45
II.2 Calcul des énergies de défaut d'empilement 48
II.2.1 Systèmes monométalliques 48
II.2.2 Système bimétallique 51
II.3 Modèle étudié 53

III Systèmes monométalliques 57
III.1 Influence des défauts de surface sur le maclage 58
III.1.1 Cas d'une surface parfaite 58
III.1.2 Introduction d'un dipôle de marches 59
III.1.3 Discussion 63
III.2 Maclage en présence d'un joint de macle 65
III.2.1 Nucléation et extension de macles 66
III.2.2 Dislocations de Lomer 70
III.2.2.1 Nucléation de dislocations de Lomer 71
III.2.2.2 Formation de verrous de Lomer-Cottrell 73
III.2.2.3 Source potentielle de macle 74
III.3 Multiples marches de surface 77
III.3.1 Influence sur la nucléation de dislocations 77
III.3.2 Influence d'un joint de macle préexistant 79
III.4 Discussion 82
III.4.1 Autres matériaux CFC 82
III.4.1.1 Comparaison 82
III.4.1.2 Maclabilité 88
III.4.2 Rôle de la vitesse de déformation 91
III.5 Conclusion 93

IV Systèmes bimétalliques 95
IV.1 Modèle et interface 96

IV.2 Influence du type d'interface sur le maclage mécanique 101
IV.2.1 Interface type «cube on cube» 101
IV.2.2 Interface type «heterotwin» 106
IV.3 Rôle du site de nucléation 111
IV.4 Rôle des dislocations d'épitaxie sur le maclage mécanique 115
IV.4.1 Mécanisme de nucléation de dislocations de Lomer - interface HT . 115
IV.4.2 Mécanisme d'extension d'une macle à partir d'une interface COC . 118
IV.4.2.1 Rotation et contrainte projetée à l'interface 118
IV.4.2.2 Interactions dislocations d'épitaxie - joint de macle 120
IV.4.2.3 Taille critique et activation 128
IV.5 Conclusion 131

Conclusion générale et perspectives **133**

A Algorithme d'identification de macle **137**

B Influence des conditions aux limites **145**
B.1 Application de la déformation 145
B.1.1 Suivant la direction (Oy) 145
B.1.2 Suivant la direction (Ox) 149
B.2 Taille de boîte 150

C Rôle de l'orientation cristalline **153**
C.1 Axe de déformation 154
C.2 Influence de la surface formée 156
C.3 Conclusion 160

Références **162**

Introduction

Depuis plusieurs années, différentes études ont montré que les matériaux nano-structurés ou nano-architecturés présentaient souvent des propriétés physiques différentes de leurs homologues sous forme massive. Dans de tels matériaux, la proportion d'interfaces devenant importante, ce sont les propriétés de ces dernières qui peuvent gouverner la réponse moyenne du matériau à une sollicitation extérieure. Ce fut l'idée avancée par Hall et Petch au début des années 50 pour expliquer que l'augmentation de la résistance mécanique d'un matériau polycristallin pouvait être corrélée à une diminution de la taille de grains et donc à une augmentation de la proportion de joints de grains agissant comme des obstacles au glissement des dislocations [1, 2].

Les matériaux multicouches bimétalliques notamment présentent des propriétés mécaniques intéressantes (bonne résistance mécanique et à la fracture, durcissement) ainsi qu'une bonne tenue sous irradiation [3]. Ils offrent la possibilité d'ajuster leurs propriétés mécaniques en faisant varier la nature des métaux et donc de l'interface réalisée ou l'épaisseur des couches. Misra et al. ont montré, par exemple, que les mécanismes de déformation observés dans ces matériaux peuvent être différents selon l'épaisseur des couches cristallines élaborées et induire des propriétés mécaniques macroscopiques différentes [4]. Les méthodes utilisées pour élaborer de tels matériaux nano-architecturés sont en général basées sur des techniques de dépôt par voie physique en phase vapeur. Ces méthodes sont dites «bottom-up», puisqu'on élabore un matériau nano-structuré à partir des atomes.

Cependant les techniques de déformation plastique sévère (DPS) sont de plus en plus répandues. Elles permettent d'élaborer des systèmes bimétalliques avec des épaisseurs de couche pouvant atteindre quelques dizaines de nanomètres par une approche «top-down», où à partir d'un matériau massif on construit un matériau nano-structuré. Les niveaux de déformation très élevés auxquels sont soumis les matériaux conduisent à la formation d'un grand nombre de défauts qui participent à la relaxation plastique des contraintes emmagasinées. La détermination des mécanismes qui sous-tendent la formation de ces défauts s'avère nécessaire soit pour limiter leur apparition, soit pour en tirer partie dans le but d'améliorer la nano-structuration du matériau. Par exemple, plusieurs études ont montré que l'introduction d'un nombre important de dislocations conduit, suite à leurs interactions et recombinaisons, à former des grains de très petites tailles [5, 6]. Un autre mécanisme de plasticité induit par les méthodes DPS est le maclage mécanique, qui a été observé par plusieurs groupes à la suite de la mise en forme de matériaux multicouches bimétalliques Cu/Nb et Cu/Ag [7, 8, 9].

La formation d'une macle provoque une réorientation cristalline locale et introduit deux joints de macle qui sont des interfaces très ordonnées, c'est-à-dire proches localement de la structure du cristal parfait (en comparaison d'autres joints de grains à grand angle de désorientation). Les joints de macle sont connus pour être des obstacles forts au glissement des dislocations ou à la migration de défauts ponctuels. Les matériaux nano-maclés, élaborés par des techniques de dépôt par voie électrolytique ou physique en phase vapeur, comportent un grand nombre de joints de macle de croissance. Ils allient une bonne résistance mécanique, une bonne ductilité (via le glissement de partielles de macle le long des joints de macle) et un durcissement (par accumulation de dislocations aux joints de macle) [10, 11, 12, 13, 14] à une excellente conductivité électrique [15, 16], qui semble même améliorée lorsque la densité de macles est élevée [17]. Être capable de contrôler la nano-structuration, en utilisant par exemple le maclage mécanique, et piloter la taille des macles, c'est à dire la densité de joints de macle, pourrait donc constituer un moyen d'ajuster les propriétés, notamment mécaniques, du matériau.

C'est dans ce contexte que s'inscrit la présente étude, qui a pour objectif de déterminer les paramètres influençant le maclage mécanique, en particulier la taille et la densité de macles formées. Un intérêt particulier sera porté à l'effet que peuvent avoir l'état des surfaces, la nature des métaux considérés et le type d'interfaces présentes dans des systèmes nano-structurés. Pour ce faire, des simulations atomistiques de films minces

autoportés seront réalisées en utilisant des potentiels interatomiques semi-empiriques. Ces outils numériques s'avèrent particulièrement adaptés pour déterminer et décrire, à l'échelle atomique, les mécanismes élémentaires se produisant au cours du maclage.

Dans le premier chapitre, nous commencerons par présenter le maclage mécanique de façon générale, puis les principaux mécanismes élémentaires de plasticité opérant dans les métaux cubiques à faces centrées, en lien avec la formation de macles. Nous ferons également l'état de l'art des propriétés macroscopiques induites par la présence de macles formées par croissance ou au cours de la déformation plastique.

Dans le deuxième chapitre, nous décrirons les méthodes de calcul et d'analyse que nous avons utilisées, ainsi que le modèle de film mince considéré et les paramètres choisis. Nous détaillerons également le calcul des énergies de défaut d'empilement, grandeurs clefs pour les mécanismes élémentaires de plasticité et le maclage mécanique.

Dans le troisième chapitre, nous étudierons le cas d'un film mince d'aluminium en nous intéressant plus particulièrement à l'influence de marches de surface sur le maclage et aux mécanismes d'interaction des macles avec un joint de macle préexistant. Les résultats obtenus dans l'aluminium seront comparés à ceux obtenus avec d'autres métaux de structure cubique à faces centrées (cuivre et argent).

Dans le quatrième et dernier chapitre, nous étudierons le cas de films minces bimétalliques Cu/Ag. Nous analyserons en particulier les mécanismes de nucléation et d'extension des macles en fonction du type d'interface entre les deux métaux en épitaxie.

Chapitre I

État de l'art

Sommaire

I.1 Généralités 6

I.1.1 Définition et classification des macles 6

I.1.2 Maclage mécanique 9

I.1.3 Plasticité dans les matériaux CFC 11

I.1.3.1 Dislocations dans les matériaux CFC 11

I.1.3.2 Maclage mécanique dans les matériaux CFC 15

I.1.3.3 Nucléation et croissance 19

I.2 Maclage à l'échelle nanométrique - nano-macles 22

I.2.1 Maclage mécanique dans les nano-objets monométalliques . . . 23

I.2.2 Cas des matériaux bimétalliques multicouches 25

I.2.3 Macles de croissance 25

I.3 Propriétés des matériaux nano-maclés 26

I.3.1 Propriétés mécaniques 27

I.3.2 Interactions dislocations - joint de macle 29

I.3.3 Autres propriétés 31

I.1 Généralités

L'étude des macles débute avec celle, plus générale, de la cristallographie des matériaux. Elles ont été observées et décrites par Romé de l'Isle au 18ème siècle. Après avoir nourri un attrait certain auprès de minéralogistes et cristallographes du 19ème ainsi que de ceux du début du 20ème siècle, les macles sont à l'heure actuelle toujours autant étudiées pour comprendre les mécanismes élémentaires entraînant leur formation et les propriétés intrinsèques qu'elles peuvent induire, notamment à l'échelle nanométrique.

I.1.1 Définition et classification des macles

Qu'est-ce qu'une macle ? Cette question a pendant très longtemps été sujet à controverse, à cause d'une définition peu précise. C'est en 1885 que Mallard reprend le terme de «macle», donné à l'origine par Romé de l'Isle pour décrire le cas observé de deux cristaux juxtaposés suivant un plan (figure I.1). Il définit alors une macle comme : «un ensemble de deux cristaux accolés et dont les systèmes réticulaires sont symétriques l'un de l'autre par rapport au plan de juxtaposition ou plan de macle.» Il décrit également les groupements par pénétration comme des groupements de différentes orientations cristallines qui se pénètrent mutuellement et qui sont délimités par une surface irrégulière (figure I.2)[18].

Cependant, la définition de Mallard, imprécise, échoue à expliquer et décrire le cas de certaines macles, notamment lorsque le plan ou l'axe de macle ne correspond pas à une rangée ou un plan réticulaire [19]. Ce n'est qu'en 1926 que Georges Friedel propose une définition plus précise et une méthode de classification des macles en considérant un réseau cristallin. Il définit une macle comme : «un édifice poly-cristallin, formé de deux (ou plus) portions homogènes juxtaposées d'un cristal de même nature, et orientées l'un par rapport à l'autre selon des lois bien définies [20].» Georges Friedel précise que les deux cristaux homogènes et juxtaposés peuvent être amenés à une orientation congruente [1], soit par réflexion par rapport à un plan de bas indices, soit par une rotation autour d'une rangée de bas indices du réseau de 60°, 90°, 120° ou 180°. Deux grandeurs sont également introduites : l'indice de macle (i) et l'obliquité (o). L'indice de macle correspond au nombre total des nœuds par rapport au nombre de nœuds qui définissent la période commune aux deux individus homogènes maclés [21]. L'obliquité est quant à elle définie par l'angle entre

1. Qui est en rapport, assorti avec quelque chose.

Figure I.1 – Calcite maclée, faciès en «pointe de flèche». Source : www.impmc.upmc.fr. Droits réservés.

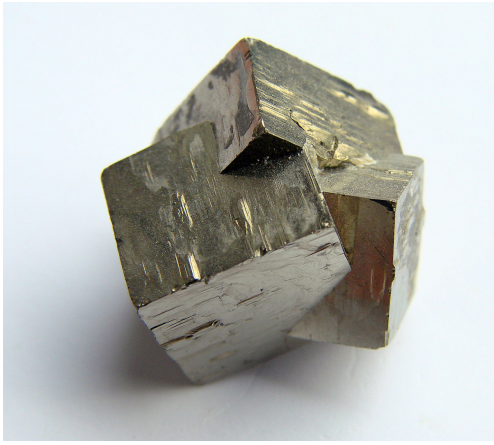

Figure I.2 – Macle par pénétration, ici fomée à partir de trois cristaux de pyrite.

la normale au plan de macle et la normale à un plan réticulaire du réseau. Suivant la valeur de ces deux grandeurs, les macles sont alors classées dans 4 grands groupes :

- macles par mériédrie ($i = 1$ et $o = 0$, figure I.3.a) ;
- macles par pseudo-mériédrie ($i = 1$ et $o > 0$, figure I.3.b) ;
- macles par mériédrie réticulaire ($i > 1$ et $o = 0$, figure I.3.c) ;
- macles par pseudo-mériédrie réticulaire ($i > 1$ et $o > 0$, figure I.3.d).

Cette méthode introduite par Friedel permet une définition et une classification précise des macles selon leur structure cristalline. Malgré cela, Friedel recense plusieurs cas erronés traitant de l'étude de macles, qu'il qualifie alors de «macles d'imagination» (ou «macles imaginaires») [20]. Ces dernières résultant, dans la plupart du temps, de l'accolement par chance de deux cristaux issus de deux germes distincts et suivant une symétrie s'approchant de celle d'une macle. Friedel souligne ainsi l'aspect indispensable de la prise en compte des erreurs de mesure des instruments et, d'autre part, de la reproductibilité de la relation obtenue pour les deux cristaux à considérer sur plusieurs échantillons, afin d'éviter la possibilité qu'une relation observée soit due uniquement à la rencontre fortuite de deux cristaux indépendants.

Dès lors, la nécessité de prendre en considération l'origine de la macle semble primordiale pour mieux appréhender la structure et les opérations de symétrie inhérentes. Ainsi,

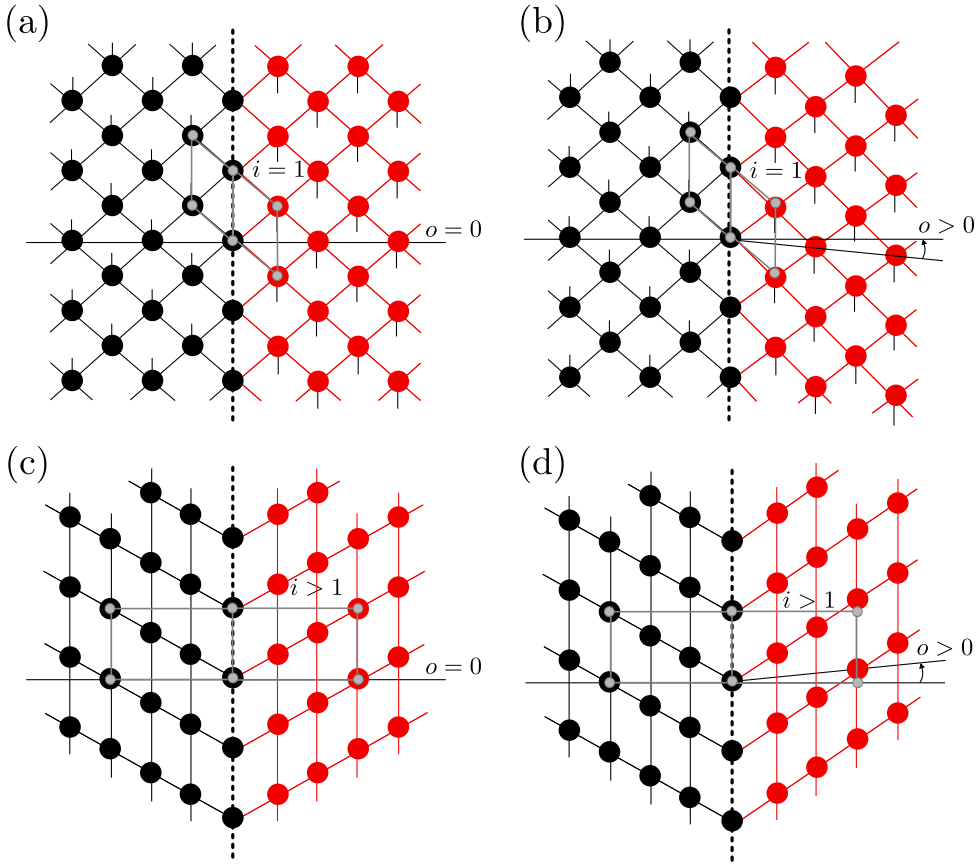

Figure I.3 – (a) Macle par mériédrie, le motif de cristal (indiqué par la zone entourée en gris) est répété dans la macle avec les mêmes positions mais avec une orientation différente, non équivalente. (b) Macle par pseudo-mériédrie, la relation entre les deux cristaux est similaire à une macle par mériédrie cependant l'obliquité est ici non nulle, $o > 0$. (c) Macle par mériédrie réticulaire, le motif de cristal est répété dans la macle sur une période supérieure à 1 (ici $i = 3$). (d) Macle par pseudo-mériédrie réticulaire, la relation entre les deux cristaux est similaire à une macle par pseudo-mériédrie, cependant l'obliquité est non nulle, $o > 0$.

une macle peut être formée de trois façons :

- soit lors d'un changement de phase (solidification ou bien condensation) où un germe peut entraîner la croissance d'un cristal maclé : ce sont les macles de croissance ;
- soit lors d'une transformation de phase entraînée par une variation de température : ce sont les macles de transformation ;

- soit enfin lors d'un mouvement coopératif d'atomes induit par une contrainte mécanique ou lors d'une transformation martensitique : ce sont les macles mécaniques ou de déformation.

Pour les deux premiers types de macle, il est difficile de déterminer avec précision les mécanismes de base engendrant la structure future de la macle. Ces mécanismes opérant de manière probabiliste, il est difficile d'étudier et de contrôler les premiers stades de croissance de la macle. Cependant dans le cas des macles de déformation, qui nous intéressent dans cette étude, les mécanismes induisant le mouvement coopératif d'atomes sous contraintes mécaniques sont connus et correspondent au mouvement d'une (ou plusieurs) dislocation(s). L'étude de la structure et de l'interdépendance des deux cristaux constituant la macle devient alors plus facile et plus précise.

I.1.2 Maclage mécanique

En parallèle des travaux de Friedel, le minéralogiste et cristallographe allemand Otto Mügge tentait de rationaliser les observations de macles obtenues après un simple cisaillement. En 1889, basé sur des observations expérimentales, il montre qu'il existe deux types de maclage mécanique qu'il nomment α et β. Il introduit avec ces deux modes de maclage, les éléments k_1, k_2, σ_1 et σ_2 [2] associés à une macle de déformation. En 1914, Arrien Johnsen [3] poursuit la description géométrique en utilisant les éléments de maclage introduits par Mügge et requalifie également les deux types de maclage en maclage de type I et II [22]. Ces éléments seront repris plusieurs années après, en 1954, par Cahn [23] puis par Bilby et Crocker en 1965 [24] et plus récemment (1995) par Christian et Mahajan dans un article de revue [25].

Une macle mécanique est alors décrite comme le résultat du cisaillement pur d'une partie du cristal parfait, correspondant à un mouvement collectif d'atomes suivant la direction du cisaillement (figure I.4.a).

Plusieurs éléments sont définis pour caractériser la macle (figure I.4.b). Le plan K_1 contient le joint de macle et, par conséquent, ne subit pas le cisaillement. Ce plan n'est pas nécessairement un plan de glissement du cristal, une dislocation de macle permettant d'accommoder la contrainte de cisaillement n'admettant pas nécessairement un vecteur

2. Ces éléments serons renommés plus tard K_1, K_2, η_1 et η_2.
3. Élève de Mügge.

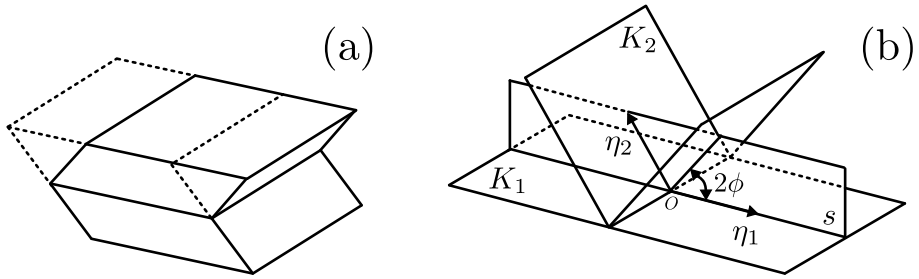

Figure I.4 – (a) Formation d'une macle par cisaillement pur à partir d'un cristal parfait (en lignes pointillées). (b) Élements d'une macle mécanique.

de Burgers contenu dans le plan de macle. Le plan K_2 est un plan qui, après maclage, demeure non déformé et subit une rotation dans la partie maclée du cristal. Il forme un angle 2ϕ avec le plan K_1. La direction de cisaillement est, quant à elle, donnée par la direction η_1. Le plan de cisaillement s est défini comme le plan contenant η_1 qui est normal aux plans K_1 et K_2. La direction η_2 est l'intersection du plan K_2 et du plan de cisaillement s. Enfin l'origine O correspond à l'intersection des lignes portées par les directions η_1 et η_2 ou des plans K_1, K_2 et s. Connaissant les éléments K_1, K_2, η_1 et η_2 associés à une macle, il est possible de définir deux types de macles : les macles de type I et les macles de type II.

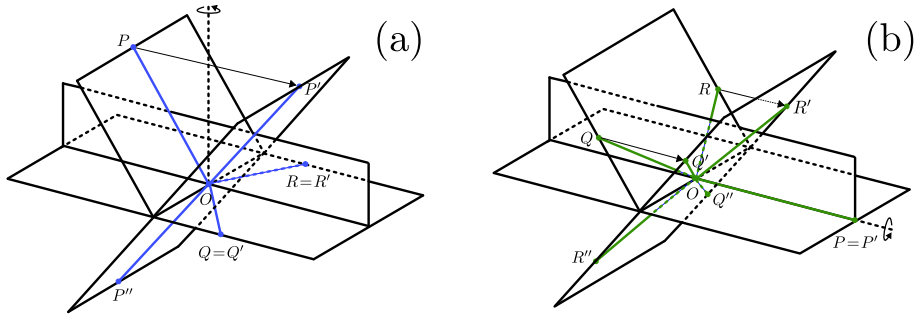

Figure I.5 – Schémas du cisaillement induit (a) par un maclage de type I et (b) par un maclage de type II. Les vecteurs $\overrightarrow{OP}$, $\overrightarrow{OR}$ et $\overrightarrow{OQ}$ correspondent à des directions du réseau cristallin et les vecteurs $\overrightarrow{OP'}$, $\overrightarrow{OR'}$ et $\overrightarrow{OQ'}$ aux mêmes vecteurs après maclage.

On considère une macle de type I dès que K_1 et η_2 correspondent respectivement à un plan et à une direction de bas indices du réseau cristallin (K_2 et η_1 pouvant être

irrationnels). Dans ce cas, si l'on prend trois vecteurs $\overrightarrow{OP}$, $\overrightarrow{OR}$ et $\overrightarrow{OQ}$ correspondant tous à des directions du réseau cristallin, alors la norme ainsi que les angles formés entre chacun de ces vecteurs ne sont pas affectés par le cisaillement induit par le maclage. Le cisaillement induit par un **maclage de type I** est donc complètement équivalent à l'effet d'une rotation de 180° autour de la normale au plan K_1 (figure I.5.a).

De même, on considère une **macle de type II** lorsque K_2 et η_1 sont respectivement un plan et une direction du réseau cristallin (K_1 et η_2 pouvant être irrationnels). Cette fois une rotation de la partie maclée de 180° autour de la direction du cisaillement η_1 permet de retrouver la structure avant maclage (figure I.5.b).

Enfin, il est possible qu'une macle remplisse les deux conditions, à savoir que tous ses indices sont rationnels et correspondent à des directions réelles du réseau. Dans ce cas, on parle de **macle composée** et les deux rotations aboutissent à la formation de la même macle. Les macles composées sont très souvent observées pour des métaux simples, notamment de structure CFC, étant donné que tous les systèmes de glissement sont équivalents (K_1, K_2 d'une part et η_1, η_2 d'autre part, étant équivalents dans ce cas).

Dans le cas du maclage mécanique, la formation de macles permet de répondre plastiquement, par cisaillement, à une déformation imposée. Le maclage mécanique est donc considéré comme un mécanisme de déformation plastique à part entière.

I.1.3 Plasticité dans les matériaux CFC

De manière générale, dans les métaux CFC deux modes de déformation plastique prédominent : le glissement pur et le maclage mécanique. Dans cette partie, nous allons donc nous attarder à décrire chacun de ces mécanismes.

I.1.3.1 Dislocations dans les matériaux CFC

Volterra en 1907 fut l'un des premiers à traiter le problème de la réponse élastique de matériaux cisaillés. Il considéra différentes opérations de cisaillement, dont certaines seront plus tard associées au passage de dislocations, qui furent conceptualisées plus tard. Les premières publications traitant de dislocations sont parues en 1934 pour des dislocations purement coin [26, 27, 28] et en 1939 pour les dislocations vis [29]. Une dislocation est généralement associée à un système de glissement qui est défini par son vecteur de Burgers (correspondant à la quantité élémentaire de déformation qu'elle engendre) et par son plan

de glissement. Elle est matérialisée par une ligne, correspondant à un désordre atomique locale, se propageant dans le matériau. On définit alors son caractère en fonction de l'angle que forme cette ligne avec le vecteur de Burgers : si l'angle est nul alors la dislocation est **vis**, s'il est égale à 90° alors la dislocation est **coin**. Enfin, si l'angle est compris entre ces deux extrêmes on parle de dislocation **mixte**.

Les dislocations parfaites correspondent aux dislocations ayant un vecteur de Burgers ($\overrightarrow{b}$) reliant deux sites atomiques équivalents du réseau cristallin. Ce vecteur de Burgers vaut $1/2\langle 110\rangle$ dans les matériaux CFC. Pour une structure CFC, les plans les plus denses, dans lesquels glissent les dislocations, sont les plans de type $\{111\}$, puis les plans de type $\{100\}$. Expérimentalement, le système de glissement $\{111\}\langle 110\rangle$ est le plus fréquemment observé. La combinaison de tous les plans de glissement et des vecteurs de Burgers $1/2\langle 110\rangle$ associés donne alors 12 systèmes de glissement possibles. Un autre système de glissement plus rare est également régulièrement rencontré : le système $\{100\}\langle 110\rangle$, correspondant aux dislocations de Lomer ou de Lomer-Cottrell. Ces dislocations sont généralement observées quand un matériau est soumis à une contrainte extrême, notamment aux hautes températures et aux vitesses de déformations élevées [30, 31, 32]. Mais dans la plupart des cas, ces dislocations ne sont pas issues d'une nucléation homogène ; elles sont plutôt le résultat de l'interaction de dislocations avec un défaut, tel qu'un joint de macle comme observé dans certaines simulations numériques [10, 33, 34].

Une dislocation parfaite de type $\{111\}\langle 110\rangle$, glisse sur son plan de glissement sans changer l'empilement des plans $\{111\}$ des matériaux cubiques à faces centrées. Cependant, dans la plupart des matériaux CFC, ces dislocations parfaites se dissocient spontanément pour donner deux dislocations partielles de Shockley de vecteurs de Burgers : $1/6\langle 112\rangle$ de plus faible énergie (figure I.6). En effet, l'énergie élastique d'une dislocation est proportionnelle à b^2, ce qui a amené Franck à proposer un critère de stabilité énergétique [35], évalué à partir de la valeur de b^2 (ici, $b^2_{110} > 2.b^2_{112}$) [4]. La réaction est alors par exemple :

$$\tfrac{1}{2}\,[110] \;\rightarrow\; \tfrac{1}{6}\,[211] \;+\; \tfrac{1}{6}\left[12\bar{1}\right] \tag{I.1}$$

Les vecteurs de Burgers de ces dislocations partielles ne sont pas des translations du réseau et elles laissent entres elles un défaut d'empilement dit intrinsèque. On nomme

4. Ce critère ne prend pas en compte l'énergie de défaut d'empilement.

alors la partielle de Shockley créant le défaut d'empilement *partielle de tête*, et la partielle de Shockley fermant le défaut d'empilement *partielle de queue*. Avec les partielles de Shockley, le nombre de systèmes de glissement activables passe de 12 à 24.

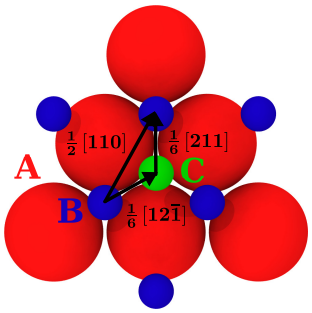

Figure I.6 – Réprésentation dans un plan (111) des vecteurs de Burgers associés à la dissociation d'une dislocation parfaite ($\frac{1}{2}[110]$) en une dislocation partielle de tête ($\frac{1}{6}[211]$) et une dislocation partielle de queue ($\frac{1}{6}[12\bar{1}]$).

Pour décrire aisément ces différents systèmes de glissement, il est possible d'utiliser les notations introduites par Thompson et présentées sous forme d'un tétraèdre (figure I.7). Les faces de ce tétraèdre ((a), (b), (c) et (d)) représentent les quatre plans $\{111\}$, et les six arrêtes (reliant les sommets A, B, C et D) correspondent aux directions $\langle 110 \rangle$. Chaque vecteur indiqué sur le tétraèdre correspond à un vecteur de Burgers. Par exemple, DC est le vecteur de Burgers d'une dislocation parfaite $\overrightarrow{b} = 1/2[110]$. On peut également définir l'orthocentre de chacune des faces du tétraèdre (α, β, γ et δ) ; le vecteur reliant l'un de ces orthocentres à un sommet correspond au vecteur de Burgers d'une dislocation partielle de Shockley. Un tel vecteur de Burgers est alors noté comme une combinaison d'une lettre latine et d'une lettre grecque. Ici $\overrightarrow{b} = 1/6[112]$ est noté $D\gamma$.

D'autre types de dislocations, plus rarement observées expérimentalement, peuvent résulter de l'interaction de plusieurs dislocations, de la montée ou encore du glissement dévié des dislocations décrites précédemment.

Les dislocations stair-rod ont été introduites pour la première fois par Thompson. Elles résultent de la possibilité qu'a une dislocation parfaite à caractère vis (par exemple AB) de glisser dans deux plans de glissement différents (par exemple (c) et (d)), lui permettant ainsi de se dissocier en deux dislocations partielles de Shockley (par exemple : $A\gamma$ et γB dans (c) et $A\delta$ et δB dans (d)). Les différentes portions d'une même ligne de

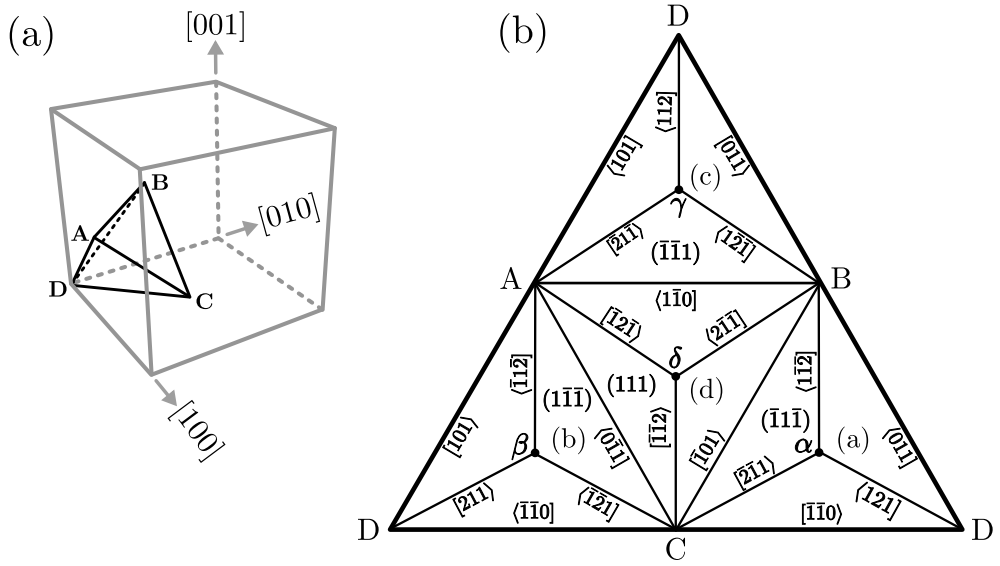

Figure I.7 – (a) Représentation dans une maille CFC du tétraèdre de Thompson. (b) Patron du tétraèdre de Thompson ouvert à partir du sommet D. Les notations de Thompson y sont associées à leurs vecteurs de Burgers respectifs. Les directions des vecteurs de Burgers sont notées de la façon suivante : ⟨112], indiquant ainsi le sens du vecteur.

dislocation dissociées et glissant dans deux plans différents sont alors connectées entre elles par une dislocation stair-rod, qui peut être vue comme issue de la recombinaison de deux partielles. Par exemple, les deux partielles γB et δB glissant respectivement dans (c) et (d) se recombinent pour donner une dislocation stair-rod $\delta\gamma$. Plusieurs types de dislocations stair-rod sont possibles suivant l'angle que forment les deux plans de glissement que l'on considère. Cependant pour ces travaux de thèse, nous n'aurons à considérer que celles dont le vecteurs de Burgers est de type : $\overrightarrow{b} = 1/6[110]$, ce qui correspond en notation de Thompson à l'association de deux lettres grecques (par exemple $\delta\gamma$). Les dislocations stair-rod sont sessiles ; elles peuvent également représenter des obstacles au mouvement des dislocations et être responsables, dans certain cas, du durcissement du matériau [33].

Les dislocations partielles de Frank sont, comme les dislocations stair-rod, sessiles. Cependant leur montée est possible. Elles ont un vecteur de Burgers de type : $\overrightarrow{b} = 1/3[111]$, qui correspond en notation de Thompson à une dislocation $D\delta$. La dislocation partielle de Frank peut se dissocier afin de réduire l'énergie élastique qui lui est associée, en formant une dislocation stair-rod et une dislocation partielle de Shockley. Pour une

dislocation $D\delta$, cette réaction s'écrit :

$$\begin{array}{ccccc} \frac{1}{3}[111] & \rightarrow & \frac{1}{6}\left[0\bar{1}\bar{1}\right] & + & \frac{1}{6}\left[\bar{2}\bar{1}\bar{1}\right], \\ D\delta & \rightarrow & \beta\delta & + & D\beta \end{array} \tag{I.2}$$

I.1.3.2 Maclage mécanique dans les matériaux CFC

Le maclage est un autre mécanisme élémentaire permettant de déformer plastiquement un matériau. Dans les matériaux CFC, le maclage est régi par le glissement de partielles de Shockley sur des plans {111} adjacents. Les matériaux CFC peuvent être décrits comme un empilement de plans compacts {111} de trois types (A, B et C) correspondant à trois positions différentes, que l'on écrit : $-\ ABCABCABCABC\ -$ (figure I.8.a.i). Lorsqu'une partielle de Shockley glisse au sein de cet empilement, elle change les types des plans situés au-dessus de son plan de glissement selon les relations, $A \rightarrow B$, $B \rightarrow C$ et $C \rightarrow A$, en laissant derrière elle un défaut d'empilement intrinsèque, correspondant localement à deux empilements de type hexagonal compact (HC), $-\ BCBC\ -$ (figure I.8.a.ii).

Si une deuxième partielle de Shockley de même vecteur de Burgers glisse dans un plan {111} adjacent à celui de la première, il y aura de nouveau un décalage. L'empilement devient alors : $-\ ABCABCBABCAB\ -$. Le défaut d'empilement alors formé est dit extrinsèque ; il est composé de deux empilements HC séparés par un empilement CFC. Ce défaut volumique peut être assimilé à une macle dont les joints de macles sont les deux plans atomiques «fautés» (figure I.8.a.iii). Cette macle est la plus petite macle possible pour la structure CFC. Le passage d'autres dislocations partielles de Shockley le long d'un ou des deux joints de macle entraîne leur propagation et la croissance de la macle (figure I.8.a.iv et I.8.a.v).

La formation de ces défauts d'empilement induit une augmentation de l'énergie totale du système par rapport à un cristal (CFC) parfait. On définit alors γ_{ISF}, l'énergie d'excès du défaut d'empilement intrinsèque. Si l'on considère la dissociation d'une dislocation parfaite en deux partielles de Shockley (équation I.1), γ_{ISF} agit comme force de rappel entre ces deux dislocations partielles qui bornent le défaut. Il est également possible de définir la barrière d'énergie nécessaire pour former un défaut d'empilement intrinsèque, à partir d'un empilement CFC parfait. Cette énergie est notée γ_{USF} (pour «unstable stacking fault»). Pour déterminer ces deux grandeurs, on regarde le profil énergétique lorsque l'on déplace le cristal le long du vecteur de Burgers d'une dislocation partielle de Shock-

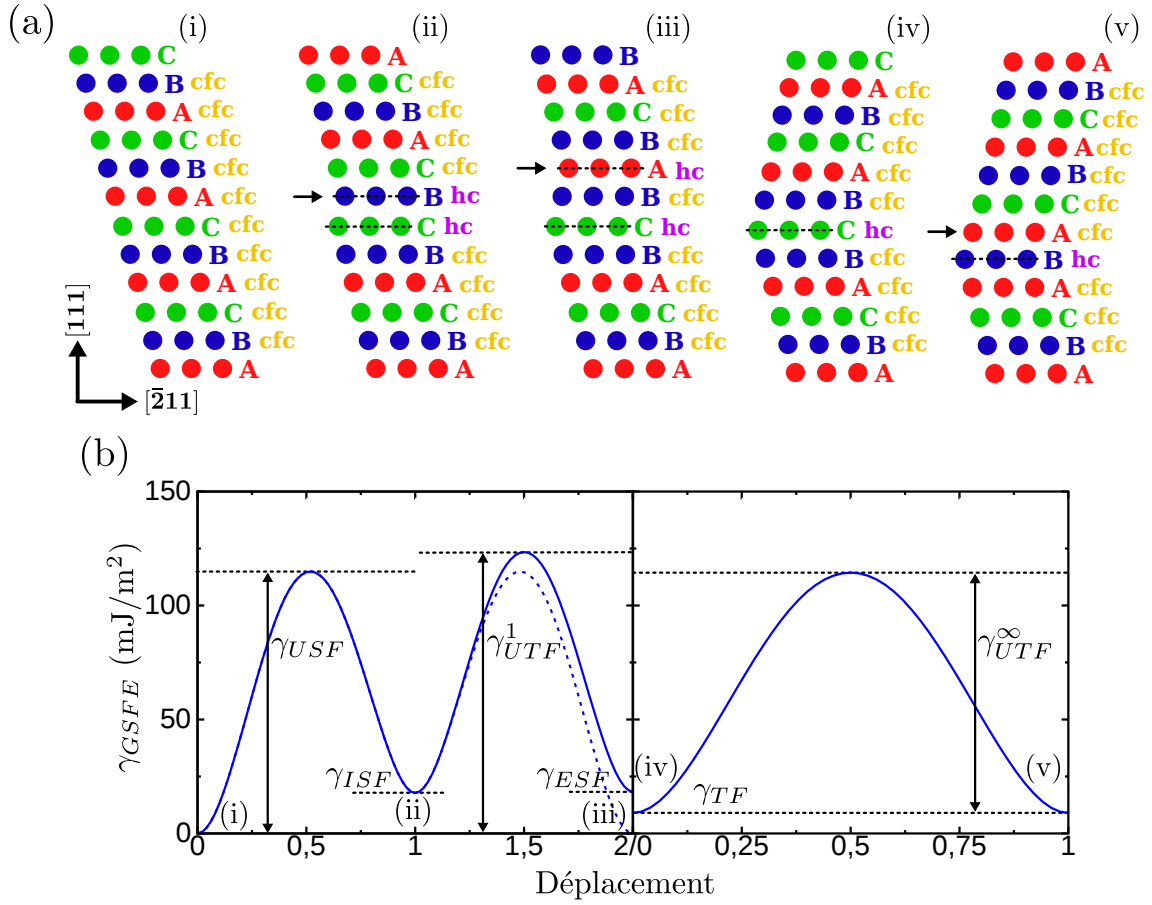

Figure I.8 – (a) Représentation de l'évolution de l'empilement des plans compacts {111} pour plusieurs étapes du maclage. Les trois types de plan (A, B et C) correspondant à trois positions différentes le long de [11$\bar{2}$], sont marqués par trois couleurs différentes. Le type de structure (CFC ou HC), correspondant à l'empilement de trois plans atomiques, est également indiqué. Les flèches noires indiquent le passage d'une dislocation partielle de Shockley. (b) Profil énergétique associé au passage successif sur des plans {111} adjacents de partielles de Shockley de même vecteur de Burgers 1/6⟨112⟩ (lignes pleines). Ces courbes mettent en évidence les énergies de défaut d'empilement γ_{ISF}, γ_{ESF} et γ_{TF}, ainsi que les barrières énergétiques γ_{USF}, γ^1_{UTF} et γ^∞_{UTF}. La ligne en pointillé correspond au passage d'une dislocation partielle de queue.

ley (1/6⟨112⟩), associée au passage d'une configuration CFC parfaite à une configuration contenant un défaut d'empilement intrinsèque (figure I.8.b de i à ii). Si l'on s'intéresse plus particulièrement au maclage, il est nécessaire de prendre en compte les énergies de

défaut d'empilement généralisé qui comprennent les barrières d'énergie associées au maclage [36, 37]. Dans cette thèse, nous avons repris les notations introduites par Jin et al. [38]. Ainsi, γ_{ESF} est l'énergie d'excès associée à un défaut d'empilement extrinsèque et γ^1_{UTF}, le maximum d'énergie pour passer d'un cristal contenant un défaut d'empilement intrinsèque à un défaut d'empilement extrinsèque. Pour évaluer ces deux grandeurs, on regarde le profil énergétique associé au passage d'une partielle de Shockley sur un plan {111} adjacent à un défaut d'empilement intrinsèque (figure I.8.b de ii à iii). γ^∞_{UTF} correspond à la barrière d'énergie à franchir pour faire croître une macle d'épaisseur infinie d'un plan atomique. L'énergie d'un joint de macle est quant à elle notée γ_{TF} [5]. Ces deux dernières grandeurs peuvent être déterminées en calculant le profil énergétique associé au passage d'une partielle de Shockley sur un plan {111} adjacent à un joint de macle (figure I.8.b de iv à v).

Dans les matériaux CFC, les valeurs des énergies de défaut d'empilement sont très faibles si on les compare à d'autres défauts planaires comme un joint de grain ou bien une surface. Pour autant, ce sont des paramètres clés lorsque l'on s'intéresse à la plasticité, et plus particulièrement à la formation de macles. En effet, connaissant la valeur de ces énergies, il est possible d'estimer la propension qu'a un matériau à se déformer plastiquement par maclage mécanique ou par glissement pur. En première approximation, on considère généralement qu'un matériau est propice au maclage quand γ_{ISF} est faible (ce qui est le cas du cuivre et de l'argent). En effet, plus le défaut d'empilement induit par le passage d'une partielle de Shockley est de faible énergie et plus la force de rappel exercée sur cette dernière sera faible. Dans ce cas, la nucléation des partielles de Shockley sera favorisée et, par conséquent, on peut estimer que le maclage le sera également. Cependant, en considérant seulement γ_{ISF}, on ne tient pas du tout compte des différentes barrières d'énergie γ_{USF}, γ^1_{UTF} ou γ^∞_{UTF}, pour passer d'une configuration à une autre. Ainsi, on peut examiner $\gamma^1_{UTF} - \gamma_{ISF}$, qui n'est autre que la barrière d'énergie à franchir pour former une nano-macle à partir d'un défaut d'empilement intrinsèque (figure I.8.b). Là encore, on peut considérer que plus cette barrière est faible, plus le matériau sera propice au maclage. Cependant, on omet dans ce cas la possibilité de nucléation d'une partielle de queue associée à la barrière d'énergie $\gamma_{USF} - \gamma_{ISF}$ (courbe en pointillé sur la figure I.8.b de ii à iii).

Partant de ce constat, plusieurs groupes ont tenté de déterminer un paramètre com-

5. Toutes ces définitions ne sont pas limitées au cas des matériaux CFC.

binant toutes ces grandeurs énergétiques et permettant de définir la «maclabilité» d'un matériau. En 2003, à partir d'une analyse sur la propension à émettre des macles ou des dislocations depuis un front de fissure [39], Tadmor et Hai proposent un paramètre adimensionnel, défini de façon générale :

$$M = \lambda_{crit}\sqrt{\frac{\gamma_{USF}}{\gamma^1_{UTF}}}, \tag{I.3}$$

avec λ_{crit} une fonction du rapport $\gamma_{ISF}/\gamma_{USF}$. En faisant intervenir le ratio $\gamma_{USF}/\gamma^1_{UTF}$, ce paramètre met en opposition la propension d'un matériau à former soit une dislocation, soit une nano-macle. Si $M > 1$ le matériau est propice au maclage ; à l'inverse, si $M < 1$ le matériau est propice à la formation de dislocations parfaites [40]. À partir de cette définition générale, il est possible de considérer plusieurs type de fonctions pour λ_{crit}, impliquant différentes formes de M correspondant à des orientations cristallographiques et des conditions de chargement différentes. Plus tard, Bernstein et Tadmor donneront une forme générale de λ_{crit} [41] :

$$M_{BT} = \left[1,136 - 0,151\frac{\gamma_{ISF}}{\gamma_{USF}}\right]\sqrt{\frac{\gamma_{USF}}{\gamma^1_{UTF}}}, \tag{I.4}$$

où les coefficients 1,136 et 0,151 sont des constantes associées à la structure CFC. Par la suite, Asaro et Suresh proposent d'appliquer le paramètre M aux nano-structures CFC, en considérant que l'émission d'une dislocation ou d'une macle depuis un joint de grain est similaire à celle depuis un front de fissure [42]. Ils redéfinissent ainsi ce paramètre :

$$M_{AS} = \sqrt{\frac{3\gamma_{USF} - 2\gamma_{ISF}}{\gamma^1_{UTF}}} \tag{I.5}$$

Enfin, en partant du constat que, dans les matériaux CFC, $\gamma_{USF} \simeq \gamma^1_{UTF} - 1/2\gamma_{ISF}$, Jin et al. reprennent le paramètre de «maclabilité» de Asaro et Suresh pour l'exprimer seulement en fonction du rapport $\Lambda = \gamma_{ISF}/\gamma_{USF}$, obtenant ainsi [43] :

$$M_J \simeq \sqrt{\frac{3 - 2\Lambda}{1 + \frac{\Lambda}{2}}}. \tag{I.6}$$

Dans les CFC, ces paramètres permettent donc d'évaluer le mode de déformation préféren-

tiel d'un matériau : soit par maclage mécanique soit par glissement pur. Ils ne constituent cependant que des estimations. Leurs valeurs numériques pour les différents potentiels interatomiques utilisés dans cette thèse sont données dans le chapitre II.

I.1.3.3 Nucléation et croissance

Le maclage mécanique est un mécanisme de plasticité, étroitement lié à la cinétique des dislocations partielles de Shockley, qui opère en trois étapes : la *nucléation* de la macle, sa *propagation* dans le matériau et sa *croissance* (ou *extension*).

La nucléation peut être soit *homogène*, avec la première dislocation partielle de Shockley qui se forme dans une région du cristal parfait, soit *hétérogène*, avec la partielle nucléée à partir d'un défaut. La nucléation homogène d'une dislocation partielle de Shockley requiert un très haut niveau de contrainte en comparaison de celui nécessaire à la nucléation depuis un défaut. C'est pourquoi elle n'est que très rarement observée. Dans le cas d'une nucléation hétérogène, plusieurs défauts, agissant alors comme sites préférentiels de nucléation, peuvent être considérés. Il existe une multitude de modèles impliquant différents types de défauts et entraînant la nucléation ainsi que l'extension de macles. Nous détaillerons, dans les paragraphes suivants, les premiers mécanismes qui ont permis d'expliquer la formation de macles, puis nous intéresserons aux mécanismes les plus fréquemment observés.

L'un des premiers mécanismes proposé est un mécanisme polaire. D'abord décrit pour les structures cubique centrée [44] et hexagonale compacte [45], le mécanisme polaire est repris par Venables [46] pour expliquer le maclage mécanique dans le cas des matériaux CFC. Ce mécanisme fait intervenir une dislocation parfaite ancrée en deux points dans un plan (a) (figure I.9.a), qui se dissocie pour former une partielle de Frank et une partielle de Shockley (figure I.9.b). Cette dernière, lorsqu'elle effectue une rotation complète (figure I.9.c), se recombine avec la partielle de Frank formant un cran qui, par glissement prismatique, permet la formation d'une seconde partielle de Shockley sur un plan {111} adjacent (figure I.9.d). En répétant ce mécanisme, une macle est alors obtenue.

D'autres mécanismes, proposant également une dislocation comme source de macle, ont été introduits pour justifier la formation ultra-rapide de micro-macles dans certains matériaux. Le mécanisme de Cohen et Weertman [47] faisant intervenir un verrou de Lomer-Cottrell en est un exemple (figure I.10.a). On y considère une accumulation de

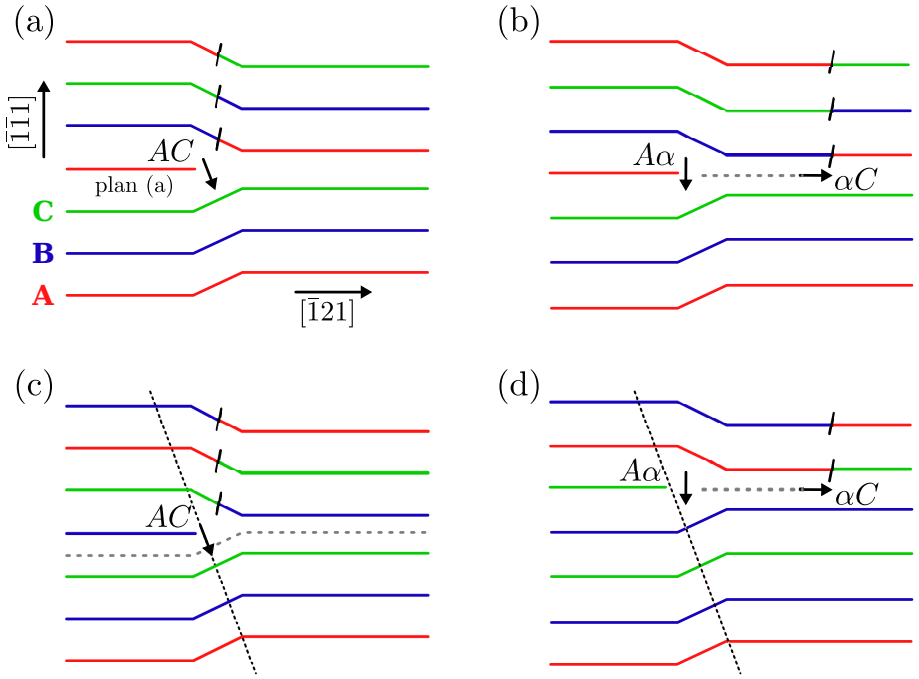

Figure I.9 – Mécanisme de formation d'une macle décrit par Venables [46]. (a) dislocation parfaite AC ancrée dans un plan (a). (b) Dissociation de la dislocation parfaite AC en une partielle de Frank $A\alpha$ et une partielle de Shockley αC. (c) Recombinaison des dislocations $A\alpha$ et αC, après un révolution complète de la partielle de Shockley autour de l'axe contenant la direction $[0\bar{1}1]$ (ligne en pointillé noire). (d) Glissement prismatique de la dislocation parfaite AC le long de la direction $[0\bar{1}1]$, suivi de sa dissociation dans le plan $\{111\}$ adjacent.

plusieurs dislocations parfaites, dissociées en partielles de Shockley et bloquées par un verrou de Lomer-Cottrell. Ces partielles de Shockley vont ensuite par glissement dévié entraîner la formation d'une dislocation stair-rod et d'une partielle de Shockley glissile dans un autre plan $\{111\}$:

$$\begin{array}{ccccc} \frac{1}{6}\left[\bar{2}\bar{1}\bar{1}\right] & \rightarrow & \frac{1}{6}\left[\bar{1}01\right] & + & \frac{1}{6}\left[\bar{1}\bar{1}\bar{2}\right], \\ \beta D & \rightarrow & \beta\gamma & + & \gamma D \end{array} \tag{I.7}$$

Ce mécanisme peut se produire pour chacune des partielles $D\beta$ bloquée près du verrou, sur des plans $\{111\}$ adjacents, formant ainsi une macle.

Un autre mécanisme, que l'on qualifie «de rebond» ou «de réflexion», fait intervenir

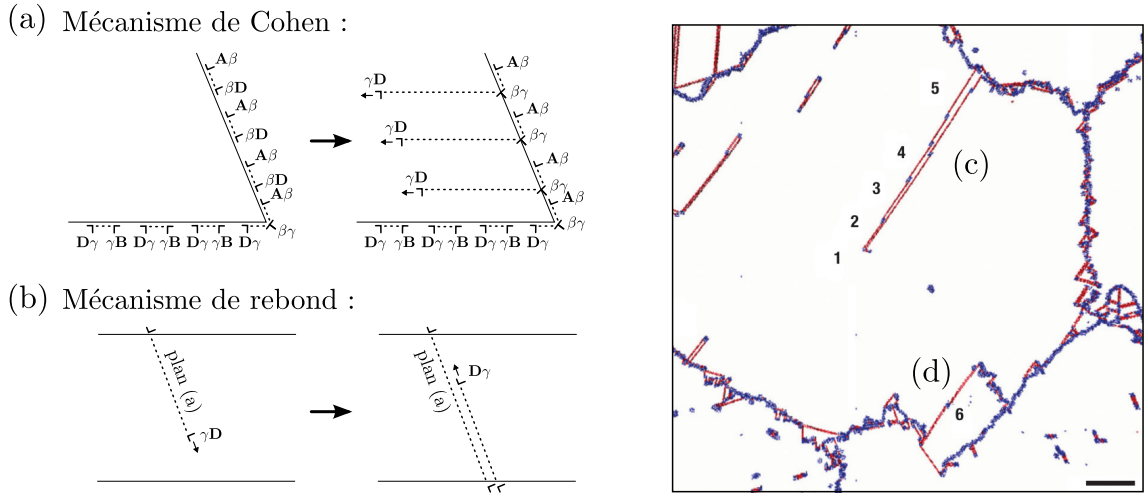

Figure I.10 – Mécanismes de nucléation de macles à partir de différents types de défauts. (a) Mécanisme de Cohen expliquant la formation de macles à partir d'un verrou de Lomer-Cottrell. (b) Mécanisme de «rebond» ou «réflexion» opérant à partir d'une interface (surface, joint de grains, ...). (c) Nucléation d'une macle à partir de la formation simultanée de plusieurs partielles de Shockley (indiquées par les numéros 1,2,3,4 et 5) sur des plans {111} adjacents depuis un joint de grains. Image extraite de [48]. (d) Formation d'une macle (indiquée par le numéro 6) à partir de la migration d'un joint de grain (en bleu).

des dislocations se déplaçant à grande vitesse et un défaut plan tel qu'une surface, un joint de grain ou d'autres types d'interface (figure I.10.b). Pour ce mécanisme on considère dans un premier temps une dislocation partielle de Shockley glissant sur un plan (a) et laissant derrière elle un défaut d'empilement. Lorsque cette dislocation arrive à l'interface avec une vitesse suffisante, elle entraîne la nucléation d'une (voire dans certains cas de deux) partielles de Shockley de vecteur de Burgers opposé à la première, sur un plan adjacent, conduisant à la formation d'une macle. Suivant ce même mécanisme, la macle peut continuer de croître par «rebond» ou «réflexion» à partir d'une interface opposée à la première (figure I.10.b). La possibilité de «rebond» aux interfaces a d'abord été indiquée par Franck, pour des dislocations parfaites [49]. Lorsque la dislocation arrive sur une surface, elle conduit à la formation d'une marche de surface servant alors de site de nucléation pour une seconde dislocation parfaite, de vecteur de Burgers opposé, sur le même plan de glissement [49]. Ce mécanisme a ensuite été étendu au cas des dislocations partielles de Shockley et suggéré pour la formation de macles, en considérant des

plans {111} adjacents, par Christian [50]. Depuis, les mécanismes de «rebond» aux interfaces ont été étudiés à plusieurs reprises, notamment à l'aide de simulations numériques dans lesquelles ce mécanisme peut être directement observé [51]. Li et al. ont notamment montré, dans le cas d'une surface, l'existence pour ce mécanisme d'une vitesse critique associée à la première dislocation partielle de Shockley. Cette vitesse est de l'ordre de 90% de la vitesse transverse du son [52]. On comprend alors que ce type de mécanisme ne peut opérer que dans des conditions de chargement extrême (c'est le cas notamment des simulations atomistiques). Expérimentalement, ce mécanisme n'a jamais été observé directement, mais il a été considéré à plusieurs reprises pour expliquer la formation de macles, le mécanisme opérant alors à partir d'un joint de grain [53].

Une macle peut être également formée directement à partir de la nucléation simultanée de plusieurs dislocations partielles de Shockley depuis un défaut source, sur des plans {111} adjacents. Si la présence du défaut induit une concentration de contrainte suffisamment importante, ce mécanisme peut être observé. C'est le cas par exemple pour des joints de grains de grand angle, où des valeurs élevées de contraintes peuvent être atteintes à cause d'une incompatibilité plastique (et donc une accumulation locale de dislocations) ou d'une incompatibilité élastique (figure I.10.c) [54]. Les surfaces sont également des sites propices à la nucléation de dislocations, car elles contiennent un très grand nombre de défauts, comme des marches vicinales ou des marches résultant du passage d'une dislocation. Tous ces défauts induisent sous chargement une concentration de contrainte pouvant conduire à la nucléation simultanée de dislocations et donc de macles.

Nous pouvons finalement mentionner un dernier mécanisme qui ne met pas en jeu de dislocations partielles de Shockley mais qui fait intervenir la migration d'un joint de grain sous contrainte. Dans ce mécanisme, deux joints de macle sont formés suite à la migration d'une portion d'un joint de grain formant ainsi une grande portion maclée (figure I.10.d) [48, 55, 56].

I.2 Maclage à l'échelle nanométrique - nano-macles

En général, le maclage demeure assez anecdotique en comparaison du glissement pur et est le plus souvent observé dans les matériaux de faible énergie de défaut d'empilement. Cependant, dès que la taille des systèmes considérés approche l'échelle du nanomètre, le maclage mécanique semble se produire plus fréquemment et ce même dans des matériaux

de forte énergie de défaut d'empilement, tel que l'aluminium.

I.2.1 Maclage mécanique dans les nano-objets monométalliques

Pour des nano-objets ou nano-systèmes, le maclage tend à se produire plus fréquemment et à prendre une part plus importante dans la déformation plastique [57]. Cette tendance peut s'expliquer assez facilement. La surface des défauts d'empilement générés étant plus faible du fait de la proximité des surfaces ou de la faible taille de grain, les partielles de Shockley sont plus stables que dans des échantillons de plus grandes dimensions. Leur formation est donc facilitée. Ainsi la proportion de partielles de Shockley augmente et le maclage se produit plus fréquemment. Plusieurs études confirment cette tendance. Il a notamment été montré dans le cas de nano-films d'or que plus l'épaisseur du film diminue, plus la densité de macles augmente (figure I.11.a) [58]. Deux autres études montrent la présence de nano-macles formées après déformation dans des nano-cristaux de nickel et d'aluminium de haute pureté (figure I.11.b et I.11.c). Ces deux matériaux sont pourtant réputés, à l'état massif, difficiles à déformer plastiquement par maclage, du fait de leurs hautes énergies de défaut d'empilement intrinsèque [59, 60].

A cette échelle, le maclage intervient suivant les mêmes processus que ceux décrits dans la partie I.1.3.3. Cependant la fréquence d'apparition de ces mécanismes dans les nano-matériaux diffère de celle dans les matériaux massifs. En effet, les mécanismes comme ceux de Venables ou de Cohen, faisant intervenir des dislocations comme sites de nucléation sont ici très peu fréquents, les dislocations générées étant rapidement éliminées aux proches surfaces, joints de grains et/ou autres puits de dislocations. Dans ces systèmes, bon nombre d'études en simulation numérique ont montré que le maclage se déclenche principalement à partir des joints de grains dans le cas des matériaux nano-cristallins [48, 54, 56] et/ou des surfaces dans le cas des nano-objets [61, 62, 63, 64].

Du fait de la plus grande occurrence du maclage dans les systèmes de taille nanométrique, ces derniers peuvent avoir des propriétés différentes de celles de leurs homologues sous forme massive. Contrairement au glissement pur, le maclage permet d'accommoder une partie de la déformation élastique emmagasinée par une simple réorientation locale du cristal. Ainsi plusieurs études ont montré qu'il est possible de déformer par maclage un matériau sur une très grande plage de déformation sans le rompre. On parle alors de «super-plasticité» [63, 65, 66, 67].

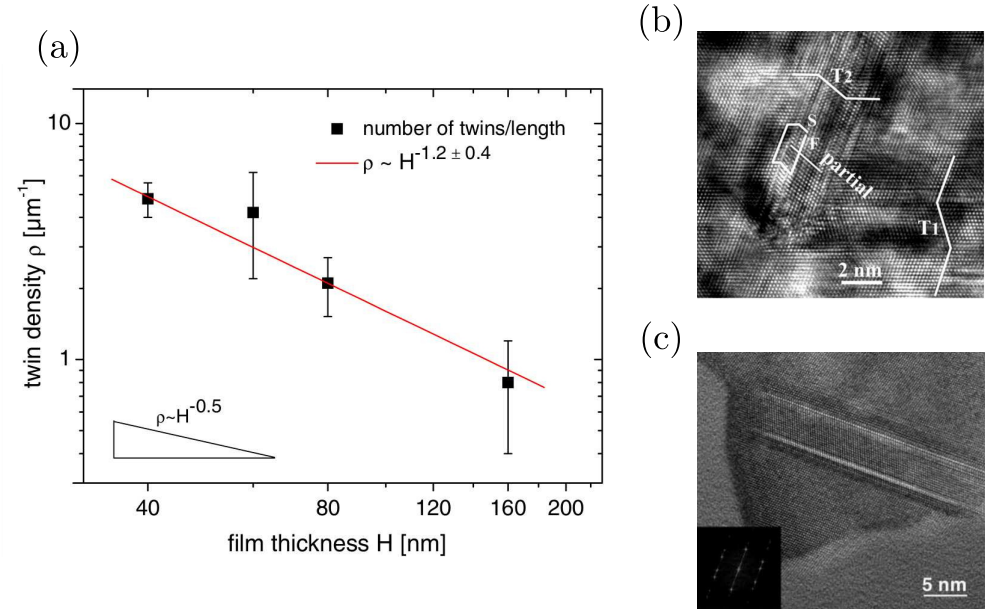

Figure I.11 – (a) Évolution de la densité de macles dans un nano-film d'or en fonction de son épaisseur. Image extraite de [58]. (b) et (c) Observation en microscopie électronique en transmission de macles de déformation dans des nano-cristaux de nickel et d'aluminium de haute pureté. Images extraites de [60] et [59].

Le maclage mécanique est également réversible. En effet, si une macle croît d'un plan atomique lorsqu'une dislocation partielle glisse sur un plan {111} adjacent au joint de macle, elle décroît également d'un plan atomique lorsqu'une partielle de queue est formée ou lorsqu'une partielle de Shockley de vecteur de Burgers opposé est formée sur le plan du joint de macle. Des études menées sur des nano-piliers et des nano-fils ont mis en évidence un caractère pseudo-élastique de ces nano-objets, lié notamment au maclage/démaclage [68, 69]. Sous chargement cyclique tension-compression, une macle se forme permettant ainsi d'accommoder la contrainte appliquée ; puis lorsque le chargement s'inverse la contrainte est relaxée par annihilation de la macle initialement formée. La forme initiale du nano-objet est alors restaurée. Une autre étude, mettant également en évidence cette pseudo-élasticité liée au maclage mécanique, précise que, lors de la décharge de l'échantillon, une température critique est nécessaire pour activer le démaclage [70].

I.2.2 Cas des matériaux bimétalliques multicouches

Dans d'autres types de nano-structures plus complexes, tels que les matériaux bimétalliques nano-lamellaires, cette tendance au maclage est également observée. Ces matériaux sont principalement étudiés pour leur résistance aux contraintes mécaniques élevées, leur bonne stabilité thermique et leur résistance aux irradiations importante [3, 71]. Ces propriétés découlent généralement de l'interaction de certains défauts avec les interfaces. Sous contrainte mécanique par exemple, la réponse plastique de ces matériaux est en grande partie contrôlée par les interfaces, ces dernières étant d'autant plus importantes que l'on s'approche de l'échelle nano-métrique. Ces matériaux sont la plupart du temps élaborés par des procédés de déformation plastique sévère (DPS). Ces procédés introduisent une grande quantité de déformation au sein du matériau, qui est en majeur partie relaxée par maclage mécanique. Plusieurs études [7, 9, 72] ont montré la présence de macles de déformation à la fin du procédé d'élaboration, notamment dans des systèmes bimétalliques Cu/Nb, Cu/Au et Cu/Ag (figure I.12.a).

Dans ces matériaux, les interfaces peuvent jouer un rôle crucial pour la nucléation de macles de déformation [73, 74], de même que la structure de l'interface peut jouer un rôle clef sur leur transmission (figure I.12.b) [9] et être modifiée suite au maclage (I.13) [8]. Selon son type, l'interface entre les deux phases du système bimétallique peut intervenir comme source directe pour la formation de macles ou indirecte par transmission d'une couche à l'autre de la macle. Elle peut aussi agir comme barrière forte au mouvement des dislocations et donc à la propagation de macles [75, 76, 77].

I.2.3 Macles de croissance

Nous avons évoqué dans la partie I.1.1, la possibilité de former des macles de croissance. De nombreuses études ont montré la possibilité de former des matériaux CFC nano-maclés par dépôt électrolytique (figure I.14) [15] ou par dépôt physique en phase vapeur (par exemple en pulvérisation magnétron, figure I.15) [78, 79]. On constate que la microstructure induite par le procédé d'élaboration est différente selon la méthode utilisée. Par dépôt électrolytique, les grains sont orientés de manière aléatoire et la taille des macles formées est très variable. Par dépôt physique en phase vapeur, les grains ont une forme colonnaire et les macles ont une taille plus régulière. Pour cette dernière méthode, la présence de macles de croissance peut s'expliquer par une tendance particulière des plans

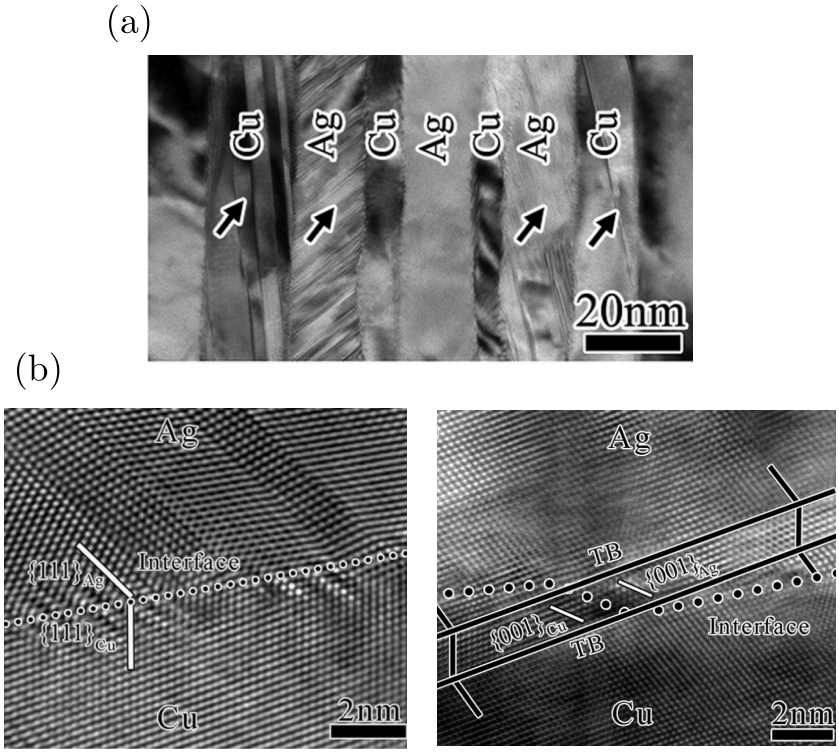

Figure I.12 – (a) et (b) Observation en microscopie électronique en transmission de macles de déformation dans des matériaux bimétalliques nano-lamellaires de cuivre et d'argent. (b) Les macles sont soit stoppées (image de gauche) soit transmises (image de droite) à l'interface. Images extraites de [9].

denses {111} à s'aligner parallèlement au substrat lors de la croissance du film mince. Elle peut être d'autant plus facilitée si l'on considère un matériau avec de faibles énergies de défaut d'empilement. La structure du matériau peut ensuite être pilotée en faisant varier les paramètres tels que la vitesse de dépôt. Une vitesse élevée induit une densité de macles ou de défauts d'empilement élevée [11].

I.3 Propriétés des matériaux nano-maclés

La présence de macles au sein d'un matériau a deux conséquences : la première est une réorientation locale du réseau cristallographique et la seconde est l'introduction de joints de macle séparant le cristal maclé du cristal parent. On a vu dans la section I.2.1 qu'une

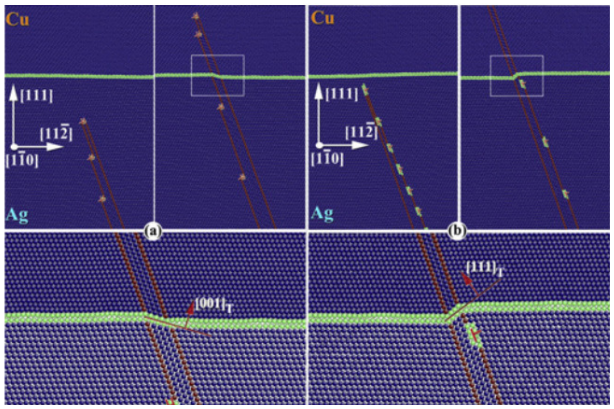

Figure I.13 – Simulation atomistique de la transimission d'une macle à travers une interface bimétallique Cu/Ag. Deux macles sont alors considérées, une première formée à partir de partielles de Shockley 30° et une seconde formée à partir de partielles de Shockley 90°. Ces deux macles conduisent à la réorientation de l'interface en respectivement une interface de type {100} et une interface de type {111}. Image extraite de [8].

réorientation locale du réseau permet de conférer de nouvelles propriétés mécaniques à un matériau (super-plasticité, pseudo-élasticité). Dans cette section, nous allons aborder en détail l'impact des joints de macle sur les propriétés du matériau et plus particulièrement sur les propriétés mécaniques.

I.3.1 Propriétés mécaniques

L'intérêt d'introduire plusieurs joints de macle dans un matériau porte principalement sur l'amélioration des propriétés mécaniques. Tout comme un joint de grain, un joint de macle est considéré comme un obstacle fort au glissement des dislocations [67]. Cependant, les matériaux nano-maclés ont de bien meilleures propriétés mécaniques que celles des matériaux nano-cristallins [13], avec en général une excellente ductilité et une limite d'élasticité bien supérieure [15, 80]. Ceci découle de la capacité d'un joint de macle à bloquer d'une part la propagation des dislocations dans le matériau, ce qui conduit à des effets de durcissement, et à absorber d'autre part, une partie de la déformation appliquée via la nucléation de partielle de Shockley sur des plans adjacents aux joints de macles, conduisant à augmenter la ductilité du matériau [12]. Les matériaux nano-cristallins, quant à eux, ont tendance à présenter également une bonne résistance aux contraintes

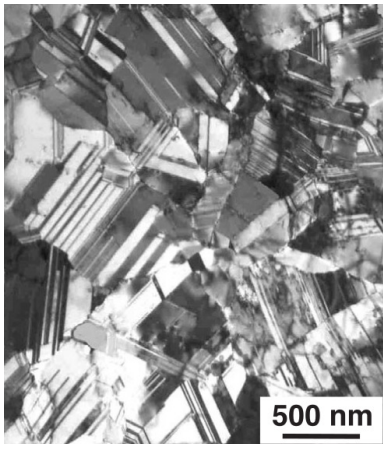

Figure I.14 – Matériau nano-maclé obtenu par dépôt électrolytique. Image extraite de [15].

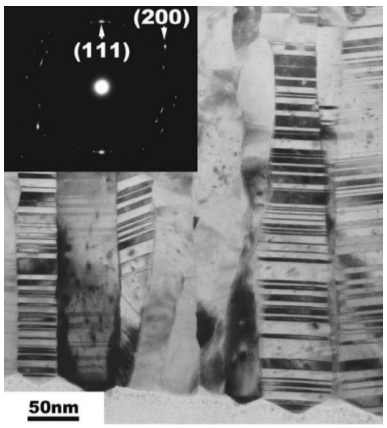

Figure I.15 – Matériau nano-maclé obtenu par dépôt physique en phase vapeur. Image extraite de [78].

mécaniques mais au détriment d'une perte de la ductilité [80]. Lu et al. [81] ont étudié en détail l'influence de l'épaisseur moyenne des nano-macles sur la ductilité et la limite d'élasticité de ces matériaux. Ils montrent principalement que, dans le cas du cuivre, la ductilité ne cesse d'être améliorée lorsque l'espace entre deux joints de macle diminue (figure I.16). Si les macles sont suffisamment petites, elle peut même devenir meilleure que pour le même matériau comportant des grains de grande taille. Ils mettent également en évidence la présence d'une épaisseur critique de macle, autour de 15nm, pour laquelle la présence d'une macle n'a plus d'effet bénéfique sur la limite d'élasticité du matériau (figure I.16). Le même constat a été obtenu pour des simulations atomiques de grandes échelles [82, 83].

D'autres études menées sur des nano-fils nano-maclés sont arrivées au même constat, la présence de très petites macles ne semble plus bénéfique pour améliorer les propriétés mécaniques dans ces nano-objets [84]. En effet, quand l'épaisseur des macles devient suffisamment faible, la plasticité semble beaucoup plus localisée, ce qui entraîne l'apparition d'une striction dans les nano-fils à de plus faibles valeurs de déformation [14, 85].

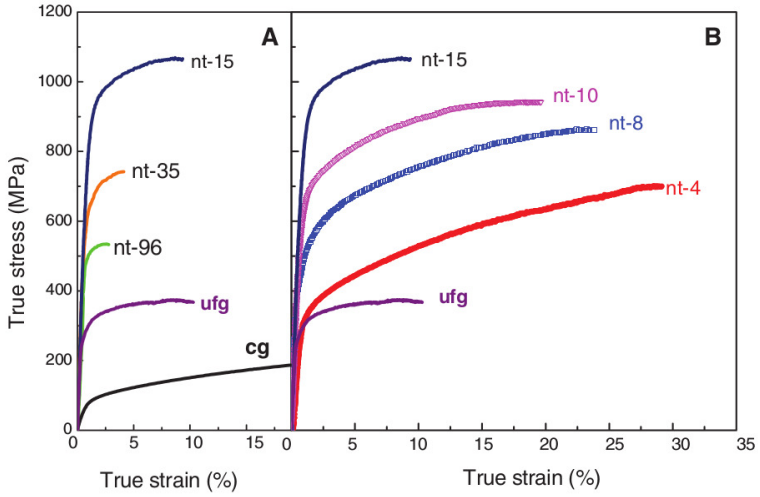

Figure I.16 – Courbes contrainte-déformation obtenues pour des matériaux nano-maclés dont l'épaisseur moyenne des macles varie. Image extraite de [81].

I.3.2 Interactions dislocations - joint de macle

Les macles sont considérées comme de forts obstacles au glissement de dislocations. L'étude des mécanismes d'interaction entre dislocation et joint de macle commence dès 1973, lorsque Mahajan et Chin publient plusieurs mécanismes d'interaction dislocation-macle et macle-macle [86]. L'étude de ces mécanismes est toujours autant d'actualité, surtout depuis les récents travaux sur les matériaux nano-maclés.

Contrairement à un joint de grain, un joint de macle ne peut pas être considérée comme un puits de dislocation. Si une dislocation est stoppée à un joint de macle elle sera stockée et ne pourra être éliminée, alors que cette dislocation pourrait être absorbée par le joint de grain, réduisant ainsi son énergie. Sur ce fait, Cao et al. ont mis en évidence ce qui se passe localement lorsqu'un grand nombre de dislocations est stoppé à un joint de macle [87]. Ils montrent notamment que l'accumulation de ces dislocations peut provoquer (pour des macles de petite taille) une suppression totale de la macle et former à la place un joint de grain. De même, pour des macles de grande taille, une accumulation de dislocations sur le joint de macle peut entraîner une modification de ce dernier en joint de grain, la relation entre les orientations des deux cristaux initiaux n'étant plus nécessairement celle d'une macle.

Si globalement un joint de macle agit comme un obstacle aux dislocations, il existe

des configurations pour lesquelles une dislocation peut être transmise soit directement soit indirectement, à travers celui-ci. Zhu et al. ont recensé théoriquement et suivant des considérations énergétiques, tous les mécanismes de transmission possibles à travers un joint de macle en considérant la plupart des dislocations des matériaux CFC [88]. Plusieurs mécanismes de transmission sont envisagés tels que le glissement dévié (s'accompagnant généralement de la formation de dislocations stair-rod) ou une transmission directe de la dislocation considérée (s'ajoutant ou non la formation d'une dislocation résiduelle au joint de macle). Zhu et al. montrent que seule une dislocation parfaite purement vis peut être transmise à travers le joint de macle sans apport supplémentaire d'énergie. Une observation direct de ce mécanisme de transmission a put être obtenue en microscopie électronique en transmission (MET) *in situ* par Chassagne et al.. Les mêmes auteurs mettent en évidence une contrainte critique (fonction des énergies de défaut d'empilement) pour que le mécanisme opère [89]. Selon l'orientation de la contrainte appliquée, deux mécanismes sont alors considérés : soit la dislocation parfaite glisse dans la partie maclée, soit elle se dissocie suivant le plan de macle participant ainsi à l'extension de la macle [38].

Un autre mécanisme possible qui n'est pas évoqué par Zhu et al., mais cependant constaté à plusieurs reprises avec des simulations à l'échelle atomique, fait intervenir une dislocation parfaite transmise dans la partie maclée dans un plan de glissement {100} [10, 33, 78, 90, 91]. En effet, lorsqu'une dislocation parfaite mixte est stoppée et stockée à un joint de macle, cette dernière peut réagir pour former une partielle de Shockley glissile le long du joint de macle et une dislocation parfaite glissile sur un plan {100} (dislocation de Lomer, voir section I.1.3.1 et figure I.17). La réaction associée à ce mécanisme est la suivante :

$$\begin{array}{ccccccccc} \frac{1}{6}[112] & + & \frac{1}{6}\left[\bar{1}21\right] & \rightarrow & \frac{1}{2}[011] & \rightarrow & \frac{1}{6}\left[\bar{1}2\bar{1}\right] & + & \frac{1}{2}\left[\bar{1}\bar{1}0\right], \\ D\gamma & + & \gamma B & \rightarrow & DB & \rightarrow & A\delta & + & (CD)^T, \end{array} \tag{I.8}$$

l'exposant T signifiant que le vecteur est exprimé suivant les orientations de la partie maclée.

Ces mécanismes étant très locaux et opérant sur de très courtes plages de temps, il est pratiquement impossible de pouvoir les observer expérimentalement. C'est pourquoi la plupart des études sur les interactions dislocation-joint de macle sont réalisées en si-

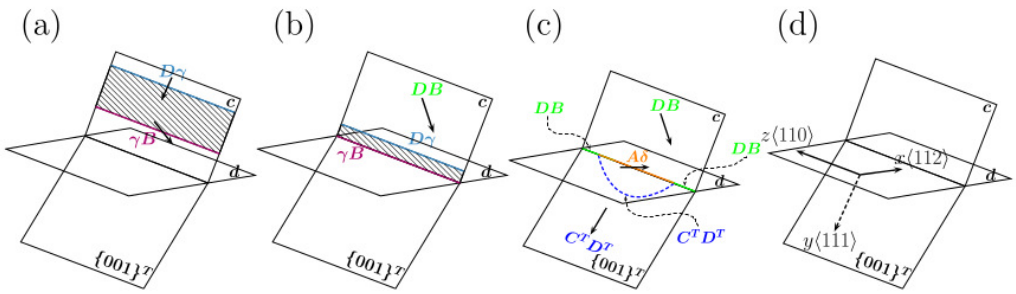

Figure I.17 – Mécanisme de formation d'une dislocation de Lomer à partir d'un joint de macle. Image extraite de [33]. (a) Ce mécanisme fait intervenir deux dislocations partielles de Shockley ($D\gamma$ et γB), (b) qui se recombinent au joint de macle pour donner une dislocation parfaite (DB). (c) Cette dislocation parfaite se dissocie ensuite en une partielle de Shockley ($A\delta$), glissant le long du joint de macle, et une dislocation de Lomer (C^TD^T), glissant sur un plan $(001)^T$ dans la partie maclée.

mulation atomistique. Cependant, l'analyse de ces mécanismes fondamentaux permet de faciliter la compréhension des matériaux nano-maclés et même d'anticiper leur réponse sous chargement mécanique.

I.3.3 Autres propriétés

En plus d'avoir de très bonnes propriétés mécaniques, les matériaux nano-maclés présentent une bonne stabilité thermique et une bonne conductivité électronique [15, 16]. Dans les matériaux nano-cristallins les joints de grain agissent comme des barrières à la mobilité des électrons (figure I.18). Ainsi, si la densité de joints de grains augmente, la résistivité aussi. Contrairement au joint de grain, la structure ordonnée d'un joint de macle permet de ne pas altérer la conductibilité électronique. Chen et al. [17] ont même montré que la résistivité tend à diminuer également avec l'épaisseur des nano-macles. Ainsi, tout comme les propriétés mécaniques, la conductivité électronique est améliorée lorsque la densité de macles est importante, ce qui est tout à fait inédit et propre aux matériaux nano-maclés.

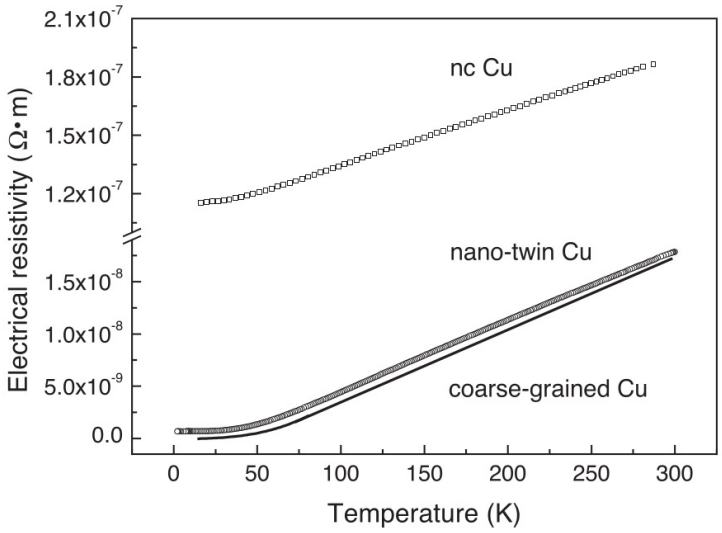

Figure I.18 – Évolution de la résistivité électrique dans le Cu en fonction de la température, pour différentes structures (nano-cristalline, nano-maclée et une microstructure à grande taille de grains). Image extraite de [15].

Chapitre II

Modèles et méthodes

Sommaire

II.1 Les simulations atomistiques 34
II.1.1 Potentiels semi-empiriques EAM 34
II.1.2 Calcul des positions atomiques 36
II.1.2.1 Minimisation de l'énergie 37
II.1.2.2 Dynamique moléculaire 40
II.1.3 Analyse 45
II.2 Calcul des énergies de défaut d'empilement 48
II.2.1 Systèmes monométalliques 48
II.2.2 Système bimétallique 51
II.3 Modèle étudié 53

II.1 Les simulations atomistiques

Il existe plusieurs méthodes de simulations numériques capables de décrire, sous chargement, la réponse mécanique d'un matériau. Ce sont notamment les simulations atomistiques, la dynamique des dislocations et les méthodes par éléments finis. Ces méthodes se différencient essentiellement par la façon plus ou moins fine de discrétiser la matière ; les échelles de temps et d'espace alors simulées diffèrent significativement d'une méthode à l'autre. Pour ce travail de thèse, nous avons choisi d'utiliser des simulations atomistiques, bien adaptées pour l'étude des mécanismes élémentaires de plasticité.

II.1.1 Potentiels semi-empiriques EAM

Les simulations atomistiques regroupent toutes les méthodes numériques discrétisant la matière à l'échelle de l'atome. Dans cette grande famille, on peut distinguer plusieurs techniques qui se différencient principalement par la façon de calculer les interactions entres atomes. Pour cette étude, nous avons utilisé des calculs dits «classiques» où les interactions entre les atomes sont décrites par des potentiels interatomiques semi-empiriques. Ces potentiels sont des modèles approchés de la réalité ; ils sont ajustés soit sur des valeurs expérimentales, soit sur des calculs *ab initio* et peuvent être de formes diverses. Si l'on compare à des calculs de type *ab initio*, où les interactions entre les atomes sont déterminées à partir de la structure électronique d'une configuration atomique donnée, la méthode «classique» est moins précise. Cependant, du fait de leur complexité (nécessité de calculer la structure électronique), les calculs de type *ab initio* nécessitent d'importantes ressources informatiques pour des systèmes ne pouvant excéder quelques centaines d'atomes, là où les calculs «classiques» sont beaucoup moins gourmands et permettent de réaliser des simulations sur des systèmes de quelques millions d'atomes.

Une des principales limites de la méthode «classique» réside dans la capacité des potentiels semi-empiriques à reproduire le plus fidèlement possible l'énergie associée aux interactions entre atomes (V). Pour déterminer V, le plus simple est de lui associer une somme d'interactions de paires d'atomes :

$$V = \sum_i \sum_{j>i} \phi(|\overrightarrow{r_i} - \overrightarrow{r_j}|). \tag{II.1}$$

$\overrightarrow{r_i}$ (respectivement $\overrightarrow{r_j}$) étant le vecteur position de l'atome i (respectivement j). Cependant, ce modèle d'interaction par paire relativement simple échoue assez rapidement pour décrire des systèmes plus complexes, comme la plupart des métaux et des semi-conducteurs, où des concepts de densité électronique et de coordination doivent être pris en compte [92].

C'est dans les années 80, avec l'arrivée de potentiels capables de modéliser des interactions à N-corps que certains métaux (notamment les métaux de structure cristalline CFC) ont commencé à être modélisés assez fidèlement [92, 93]. Dans notre travail, nous avons utilisé essentiellement des potentiels de type *Embedded Atom Method* (EAM) car ils permettent de modéliser correctement la plupart des propriétés mécaniques et physiques des métaux CFC considérés. Ce type de potentiel repose sur la combinaison de deux termes : un terme d'interaction de paire et un terme *d'entourage* ou *d'immersion*. L'énergie potentielle totale V pour un potentiel de ce type s'écrit sous sa forme générale de la façon suivante :

$$V = \sum_i \left[\frac{1}{2} \sum_{j \neq i} \phi(r_{ij}) + F\left(\sum_{j \neq i} \rho(r_{ij}) \right) \right], \tag{II.2}$$

avec r_{ij} la distance entre un atome i et son voisin j. Le premier terme est le potentiel de paire et modélise l'interaction coulombienne répulsive entre deux noyaux, écrantée par leur environnement électronique. Une fonctionnelle F est introduite dans le deuxième terme ; cette fonctionnelle, dite *d'entourage* ou *d'immersion*, décrit comment l'énergie de l'atome i varie lorsqu'il se déplace au sein de la densité électronique locale $\sum_{j \neq i} \rho(r_{ij})$. Ce deuxième terme est donc utilisé pour modéliser les interactions attractives à N-corps. Les trois fonctions ρ, F et ϕ, peuvent prendre différentes formes mathématiques et peuvent être ajustées soit sur des calculs *ab initio* soit sur des valeurs expérimentales.

Lors de cette étude, nous avons également été amenés à considérer des systèmes bimétalliques. Dans ce cas, la forme du potentiel doit être légèrement modifiée pour prendre en compte les interactions entre atomes de différents types [94]. Si on considère deux types d'atomes A et B, l'énergie potentielle totale V pour des alliages binaires devient :

$$V = \sum_i \left[\frac{1}{2} \sum_{j \neq i} \phi_{\alpha_i \beta_j}(r_{ij}) + F_{\alpha_i}\left(\sum_{j \neq i} \rho_{\alpha_j}(r_{ij}) \right) \right], \tag{II.3}$$

α_i et β_j correspondant respectivement au type des atomes i et j et F_A et F_B étant les fonctions d'immersion pour les atomes de type A et B respectivement. $\phi_{AA}(r_{ij})$ et $\phi_{BB}(r_{ij})$ sont les potentiels de paires pour des atomes de même de type et $\phi_{AB}(r_{ij})$ est le potentiel croisé pour des atomes de différents types.

Dans cette étude nous avons utilisé deux potentiels EAM pour l'aluminium (Al) : le potentiel de Ercolessi et Adams[1] (EA-Al) [95] et le potentiel d'Aslanides et Pontikis (AP-Al) [96]. Le premier a été principalement utilisé, car le deuxième, plus lourd dans sa forme mathématique, et avec un rayon de coupure plus important, induit des temps de calcul plus longs. Il semble également sous estimer les énergies de surface par rapport aux valeurs expérimentales (tableau II.1), plus que le potentiel EA-Al. Ce potentiel a donc été principalement utilisé pour valider certains des mécanismes observés. Pour le cuivre (Cu) et l'argent (Ag), nous avons testé deux potentiels EAM permettant de prendre en compte les interactions croisées entre des atomes de cuivre et d'argent. Le premier est le potentiel de Williams et Mishin (WM-Cu et WM-Ag) [97]. Ce potentiel reprend notamment la forme décrite par Mishin pour le cuivre seul [98]. Nous l'avons utilisé pour l'étude de systèmes bimétalliques et dans sa forme simple pour des systèmes monométalliques de cuivre ou d'argent. Le deuxième, le potentiel de Wu et Trinckle (WT) [99], a également été testé. Ce potentiel reprend exactement la même forme que le potentiel de Williams et Mishin pour décrire les interactions Ag-Ag, seul les potentiels de paire Cu-Cu et Cu-Ag ont été modifiés. Cependant par rapport au potentiel WM, le potentiel WT semble moins bien reproduire certaines grandeurs physiques, notamment les coefficients d'élasticité associés au cuivre. De même, il sous estime considérablement les énergies de surface associées au cuivre. Dans la section II.2, nous reviendrons sur le choix des potentiels au regard des énergies de défauts d'empilement pour les systèmes monométalliques, et de l'énergie de l'interface, ainsi que des γ-surfaces (définies précisément dans la section II.2.2) le long de l'interface pour le système bimétallique Cu/Ag.

II.1.2 Calcul des positions atomiques

En simulation atomistique, deux grands types de calcul peuvent être réalisés. Le premier correspond à la minimisation de l'énergie potentielle du système. Dans ce cas, on cherche à déterminer une configuration du système correspondant à un minimum local

1. Version aux 10èmes voisins.

		a_o	C_{11}	C_{12}	C_{44}	E_{100}	E_{110}	E_{111}
Al	EA-Al	4,032	117,9	62,1	36,6	942	1036	869
	AP-Al	4,020	116,5	61,0	29,6	790	859	766
	EXP	4,05[1]	108,2[2]	61,3[2]	28,5[2]	980[3] · 1143[4] · 1160[4]		
Cu	WM-Cu	3,615	169,9	122,6	76,2	1348	1478	1240
	WT-Cu	3,492	119,4	89,9	49,6	1020	1131	929
	EXP	3,615[1]	168,4[2]	121,4[2]	75,4[2]	1790[4] · 1825[4]		
Ag	WM-Ag	4,090	124,4	93,9	46,4	942	1018	863
	EXP	4,09[1]	124,0[2]	93,4[2]	46,1[2]	1140[2] · 1246[4] · 1250[4]		

Tableau II.1 – Tableau récapitulatif des grandeurs calculées avec les différents potentiels utilisés. a_o : le paramètre de maille en Å, C_{11}, C_{12} et C_{44} : les constantes élastiques en GPa et E_{100}, E_{110} et E_{111} : les énergies en $mJ.m^{-2}$ associées à trois surfaces de bas indices de Miller (aucune reconstruction de surface n'est considérée dans le calcul). [1] Extrait de [100], [2] extrait de [101], [3] extrait de [102] et [4] extrait de [103].

d'énergie. Le deuxième type de calcul, la dynamique moléculaire, permet de réaliser une simulation en température avec une évolution au cours du temps. Le système peut alors évoluer hors équilibre. Nous présentons dans cette partie ces deux méthodes de calcul ainsi que nos choix pour certains paramètres cruciaux.

II.1.2.1 Minimisation de l'énergie

Les méthodes de minimisation permettent de trouver le minimum local d'énergie d'une fonction à N variables, en ajustant à chaque itération les coordonnées de chaque atome, jusqu'à ce que les forces s'exerçant sur chacun des atomes soient nulles ou inférieures à un critère choisi par l'utilisateur. Dans cette thèse, le critère d'arrêt choisi est de 10^{-5} eV/Å. Dans ce type de calcul, la force sur un atome i dérive directement de l'énergie potentielle :

$$\overrightarrow{F_i} = -\nabla_i V(\overrightarrow{r_1} \cdots \overrightarrow{r_N}), \tag{II.4}$$

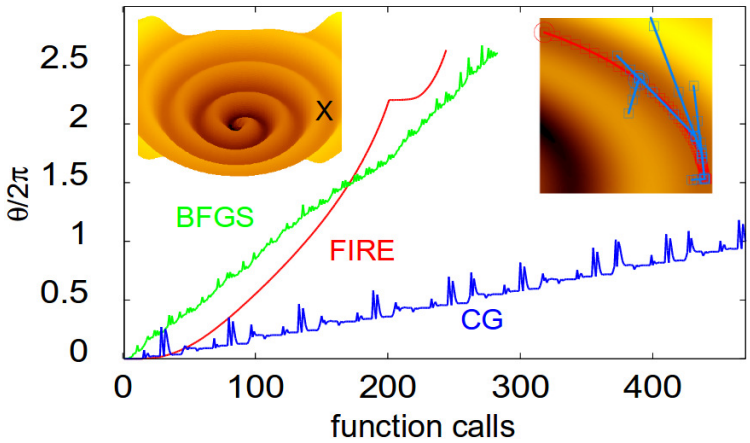

Figure II.1 – Recherche du minimum d'énergie d'un potentiel en forme de spirale. L'évolution de l'azimut θ est tracée en fonction du nombre d'appels à la fonction réalisés par l'algorithme, ici CG, FIRE et L-BFGS. Dans ce cas, la méthode FIRE est la plus rapide à atteindre le minimum du potentiel correspondant à $2,7.\theta/2\pi$. On voit également qu'après 500 pas d'intégration, la méthode des gradients conjugués n'a toujours pas convergé. Image extraite de [104].

$\overrightarrow{r_k}$ étant le vecteur position de l'atome k. Lorsque le critère est respecté, le calcul est stoppé et le système est considéré comme étant dans un minimum local d'énergie. Plusieurs algorithmes de minimisation existent. Ils sont, la plupart du temps, évalués en fonction de leur capacité à atteindre précisément un minimum local d'énergie en un minimum de temps de calcul. Deux algorithmes, du fait de leurs performances, ont principalement été utilisés dans le cadre de cette thèse : la méthode FIRE et la méthode des gradients conjugués. En fonction du type de calcul à effectuer, les deux algorithmes ont dans un premier temps été testés pour vérifier l'accord des résultats générés. Puis, suivant leur rapidité, l'une des deux méthodes a été choisie.

Gradients conjugués (CG) La méthode des gradients conjugués est très souvent utilisée du fait de sa fiabilité dans bon nombre de problèmes. Cette méthode est implémentée dans le code de calcul LAMMPS [105], sous la version décrite par Polak-Ribière [106]. Pour cette méthode, on définit à l'étape s un déplacement $\alpha_s.\overrightarrow{D_s}$ dans une direction $\overrightarrow{D_s}$ ($\overrightarrow{D_s}$ est un vecteur de dimension 3N de l'espace des configurations, avec N le nombre d'atomes). Le paramètre α_s est déterminé de telle façon qu'il permette au système de se

trouver dans un minimum d'énergie dans la direction $\overrightarrow{D_s}$ de l'espace des configurations. À l'étape suivante $(s+1)$, les coordonnées du système dans l'espace des configurations deviennent alors :

$$\overrightarrow{r_{s+1}} = \overrightarrow{r_s} - \alpha_s.\overrightarrow{D_s}. \tag{II.5}$$

Avec cette méthode, la direction de recherche future $\overrightarrow{D_{s+1}}$ est la direction conjuguée de la direction précédente qui, contrairement à l'algorithme de gradient simple, n'est pas la direction opposée au gradient d'énergie le plus élevé. $\overrightarrow{D_{s+1}}$ est définie comme :

$$\overrightarrow{D_{s+1}} = \nabla \overrightarrow{F}(\overrightarrow{r_{s+1}}) + \gamma_{s+1}\overrightarrow{D_s}. \tag{II.6}$$

$\overrightarrow{F}$ étant la fonction à minimiser, ici la somme des forces associées à chaque atome. Dans la version de Polak-Ribière, γ_s est définit de la façon suivante :

$$\gamma_{s+1} = \frac{(\nabla \overrightarrow{F}(\overrightarrow{r_{s+1}}) - \nabla \overrightarrow{F}(\overrightarrow{r_s}))^T.\nabla \overrightarrow{F}(\overrightarrow{r_{s+1}})}{|\nabla \overrightarrow{F}(\overrightarrow{r_s})|^2}. \tag{II.7}$$

Fast Inertial Relaxation Engine (FIRE) La deuxième méthode, FIRE, est très souvent utilisée pour son efficacité et sa rapidité à atteindre un minimum local d'énergie (figure II.1). Cette méthode est elle aussi implémentée dans le code de calcul LAMMPS, sous la version décrite par Bitzek [104]. Cette méthode passe par une modification des vitesses pour réajuster la trajectoire des atomes. Elle s'apparente donc à un calcul dynamique, bien que l'objectif ne soit pas ici de suivre la trajectoire «réelle» du système au cours du temps. L'algorithme commence par initialiser la vitesse de chaque atome à 0. Puis (grâce à n'importe quel intégrateur de dynamique moléculaire), les coordonnées des atomes $(\overrightarrow{r_n})$, leur vitesse associée $(\overrightarrow{v_n})$, ainsi que les forces $\overrightarrow{F_n}$ sont calculées pour l'itération n. Pour ajuster la trajectoire de l'atome, la puissance $P_n = \overrightarrow{F_n} \cdot \overrightarrow{v_n}$ est calculée. La vitesse est alors modifiée de la façon suivante (si $P_n > 0$) :

$$\overrightarrow{v_{n+1}} = (1-\alpha)\overrightarrow{v_n} + \alpha\frac{\overrightarrow{F_n}}{|\overrightarrow{F_n}|}|\overrightarrow{v_n}|, \tag{II.8}$$

α et le pas de temps Δt de l'intégrateur de dynamique moléculaire étant traités comme des quantités variables ajustées au cours du calcul de la façon suivante :

- Si $P_n > 0$ et que le nombre d'itérations $(n-p)$ est inférieur à un nombre N_{min}, p correspondant à la dernière itération où la puissance est négative, le système évolue dans la bonne direction. Le pas de temps Δt est alors augmenté et le paramètre α diminué.
- Si $P_n \leq 0$, les vitesses sont gelées, $\overrightarrow{v_{n+1}} = \overrightarrow{0}$, le pas de temps est réduit et α est fixée à sa valeur initiale (α_{start}).

L'algorithme passe ensuite à l'itération suivante, en calculant les nouvelles coordonnées atomiques.

II.1.2.2 Dynamique moléculaire

Avec la dynamique moléculaire (DM), il est possible de traiter l'évolution d'un système au cours du temps. Une vitesse est alors attribuée aux atomes. Ici, on prend en compte l'énergie potentielle V des atomes, mais également leur énergie cinétique K.

En DM, on intègre les équations du mouvement par rapport au temps afin de déterminer la position et la vitesse des atomes. Dans le code LAMMPS, l'algorithme de Verlet est utilisé pour cet intégration [107]. Cet algorithme se base sur des développements de Taylor à l'ordre trois des positions atomiques aux instants $t+\Delta t$ et $t-\Delta t$, ce qui donne pour un atome i :

$$\overrightarrow{r_i}(t+\Delta t) = \overrightarrow{r_i}(t) + \overrightarrow{v_i}(t)\Delta t + \frac{1}{2}\overrightarrow{a_i}(t)\Delta t^2 + \frac{1}{6}\frac{\partial^3 \overrightarrow{r_i}}{\partial t^3}(t)\Delta t^3 + O(\Delta t^4), \tag{II.9}$$

$$\overrightarrow{r_i}(t-\Delta t) = \overrightarrow{r_i}(t) - \overrightarrow{v_i}(t)\Delta t + \frac{1}{2}\overrightarrow{a_i}(t)\Delta t^2 - \frac{1}{6}\frac{\partial^3 \overrightarrow{r_i}}{\partial t^3}(t)\Delta t^3 + O(\Delta t^4), \tag{II.10}$$

avec $\overrightarrow{r_i}(t)$ le vecteur position de l'atome i à l'instant t et Δt le pas de temps entre 2 itérations, fixé par l'utilisateur.

En additionnant les équations II.9 et II.10, il est possible d'exprimer le vecteur position de l'atome i à l'instant $t+\Delta t$ en fonction de $\overrightarrow{r_i}(t+\Delta t)$ et $\overrightarrow{r_i}(t-\Delta t)$:

$$\overrightarrow{r_i}(t+\Delta t) = 2\overrightarrow{r_i}(t) - \overrightarrow{r_i}(t-\Delta t) + \overrightarrow{a_i}(t)\Delta t^2 + O(\Delta t^4). \tag{II.11}$$

Cette équation fait intervenir l'accélération $\overrightarrow{a_i}(t)$ de l'atome i, qui peut être calculée

simplement à partir de la deuxième loi de Newton :

$$\overrightarrow{a_i}(t) = -\frac{1}{m_i}\nabla V(\overrightarrow{r_1}(t)\cdots\overrightarrow{r_N}(t)), \tag{II.12}$$

avec m_i la masse de l'atome i. Ainsi, il est possible de connaître à chaque itération la position des N atomes pris en compte dans le système.

Le choix du pas de temps Δt est primordial. En effet, s'il est choisi trop grand, la trajectoire calculée des particules s'écarte de la trajectoire réelle et l'énergie du système risque de dériver. À l'inverse, s'il est pris trop faible, le temps de calcul peut devenir inutilement long. Pour choisir ce paramètre, nous effectuons, sur un cristal parfait sans défaut ($\sim$ 500 atomes), des relaxations à différentes températures durant un temps de 15 ps sans contrôler ni la température, ni la pression. Le système évolue alors dans l'ensemble microcanonique, à énergie constante (NVE). Plusieurs pas de temps sont testés et celui qui permet de limiter les variations d'énergie totale du système (à 300K, $E_{max} - E_{min} < 10^{-5}$ eV/atome) est retenu (figure II.2.a). Enfin, on réalise un ultime test avec le pas de temps choisi, toujours dans l'ensemble microcanonique et pour une température initiale de 300 K. Le test est réalisé sur un temps de simulation très long (1 ns), afin de voir si l'énergie du système diverge (figure II.2.b). Pour le potentiel EA-Al présenté sur la figure II.2, le choix du pas d'intégration s'est porté sur $\Delta t = 10^{-15}$ s.

Les grandeurs thermodynamiques, telles que la température ou l'énergie cinétique, sont ensuite calculées à partir des vitesses associées aux atomes. Ces dernières peuvent être déterminées à partir d'une combinaison des équations (II.9) et (II.10), ce qui donne pour un atome i :

$$\overrightarrow{v_i}(t) = \frac{\overrightarrow{r_i}(t+\Delta t) - \overrightarrow{r_i}(t-\Delta t)}{2\Delta t} + O(\Delta t^2). \tag{II.13}$$

L'énergie cinétique du système est obtenue par sommation à l'instant t :

$$K(t) = \frac{1}{2}\sum_i m_i \left[v_i(t)\right]^2, \tag{II.14}$$

puis la température peut être déterminée à partir de l'énergie cinétique :

$$T(t) = \frac{2K(t)}{3Nk_B}, \tag{II.15}$$

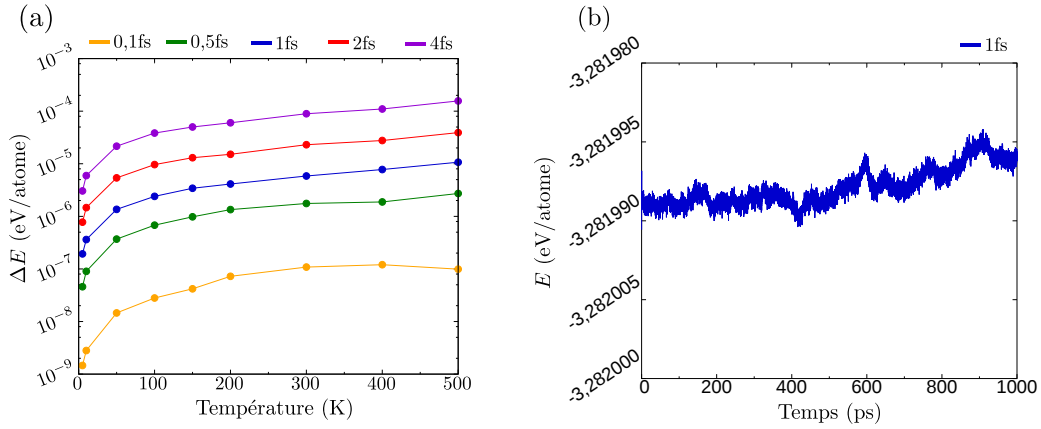

Figure II.2 – Tests du pas de temps Δt, pour le potentiel d'Ercolessi et Adams (EA-Al). (a) Variations maximales d'énergie pour différentes températures imposées et différents pas de temps, le système évoluant dans l'ensemble microcanonique (NVE) pendant 15 ps. (b) Évolution de l'énergie d'un cristal d'aluminium pour une température imposée de 300K, dans l'ensemble thermodynamique NVE.

avec N le nombre d'atomes dans le système considéré et k_B la constante de Boltzmann.

Dans nos simulations, le système va être amené à évoluer, soit dans un ensemble statistique canonique NVT, où le nombre de particules N, le volume V et la température T sont des grandeurs constantes, soit dans un ensemble isotherme-isobare NPT, où le volume est libre et la pression P maintenue à une valeur constante. Il est donc nécessaire de pouvoir contrôler la pression ou la température du système, pour simuler un thermostat, un barostat ou les deux.

Thermostat En DM, la température peut être maintenue constante via un thermostat dit de Nosé-Hoover [108], permettant de placer le système dans les conditions NVT. Une force de couplage artificielle est alors introduite directement dans les équations du mouvement :

$$m_i \overrightarrow{a_i}(t) = \overrightarrow{F_i} - m_i \xi \overrightarrow{v_i}(t), \tag{II.16}$$

pour un atome i. Le coefficient de friction ξ permet de diminuer l'accélération si la température du système est supérieure à celle du thermostat ($\xi > 0$), ou à l'inverse, de l'augmenter si la température est plus faible ($\xi < 0$). L'évolution temporelle de ce coef-

ficient ξ est régi par un paramètre de couplage Q_T entre le système et le thermostat, de telle sorte que :

$$\dot{\xi} = \frac{K(t) - K_{cible}}{Q_T}. \tag{II.17}$$

Ici, $K(t)$ est l'énergie cinétique calculée à partir de l'équation II.14 et K_{cible} est l'énergie cinétique associée à la température cible du thermostat (T_{cible}). Dans LAMMPS, la température cible (T_{cible}) et le coefficient de couplage (Q_T) sont fixés par l'utilisateur, le paramètre Q_T étant contrôlé par le temps de relaxation de la température (Tdamp). Dans cette thèse, le temps de relaxation de la température a été testé pour obtenir une efficacité optimale du thermostat. Pour cela, la température imposée par le thermostat est augmentée de 100 K tout les 10000 Δt (dans l'ensemble NVT) pour une valeur fixe du temps de relaxation de la température. On regarde la rapidité du système à atteindre la température cible sans oscillations thermiques exagérées. Sur la figure II.3, on voit que pour une valeur de $10\Delta t$ (Δt étant le pas de temps d'intégration), les variations de température sont très vite accommodées par le système (ce qui n'est pas le cas pour une valeur $1\Delta t$) et les oscillations thermiques sont plus faibles par rapport aux valeurs $100\Delta t$ et $1000\Delta t$. Notre choix s'est donc porté sur cette valeur de $10\Delta t$.

Barostat De façon similaire, il est possible, dans LAMMPS, de maintenir une pression constante sur chacune des faces de la boîte de simulation via un barostat. Ce barostat est généralement couplé à un thermostat (tel que décrit précédemment), permettant ainsi de placer le système dans les conditions NPT. Ici encore, une force de couplage est introduite dans les équations du mouvement :

$$m_i \overrightarrow{a_i}(t) = \overrightarrow{F_i} - m_i(\xi - \eta)\overrightarrow{v_i}(t). \tag{II.18}$$

Cette force de couplage dépend du volume V de la boîte de simulation, qui devient une variable du système :

$$\eta = \frac{\dot{V}}{3V} \tag{II.19}$$

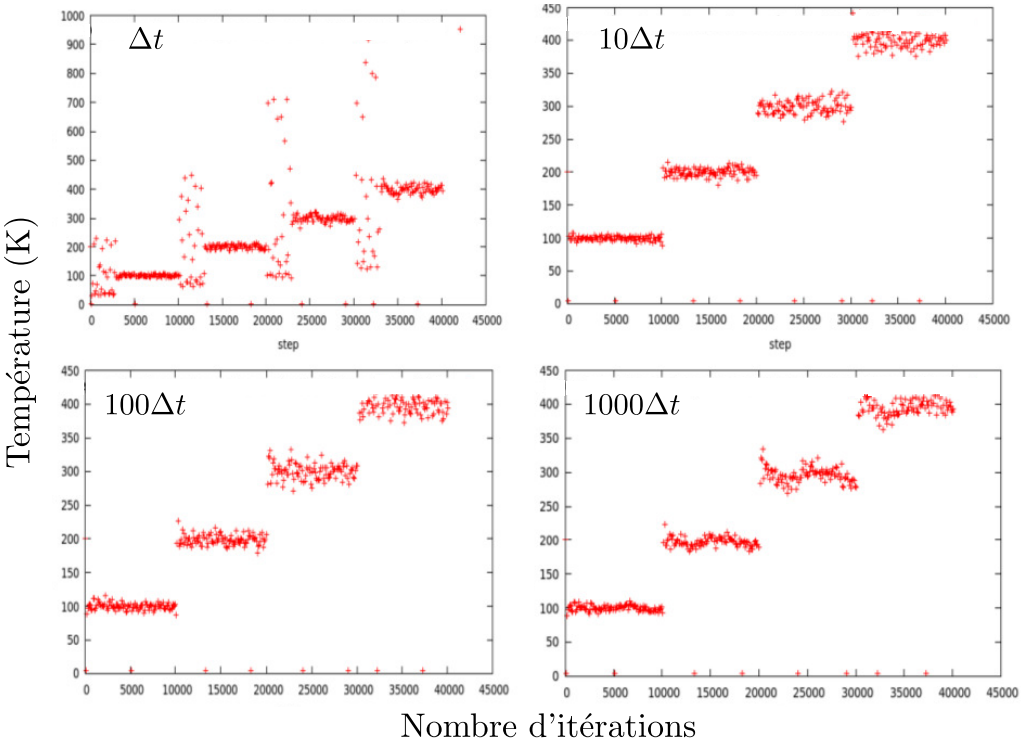

Figure II.3 – Tests du temps de relaxation de la température (Tdamp), du thermostat de Nosé-Hoover, avec le potentiel d'Ercolessi et Adams (EA-Al). Ici, quatre valeurs de ce paramètre ont été testées, 1.Δt, 10.Δt, 100.Δt et 1000.Δt, avec Δt le pas de temps d'intégration. Pour ce test la température imposée par le thermostat est augmentée de 100K tout les 10000 Δt, la température initiale étant 100K et la température finale 400K. Ces calculs ont été réalisés seulement avec le potentiel EA-Al.

L'évolution au cours du temps du paramètre η est alors régie par un paramètre de couplage Q_P entre la pression du système et la pression cible du barostat (P_{cible}) :

$$\dot{\eta} = \frac{P(t) - P_{cible}}{Q_P^2 k_B T}. \tag{II.20}$$

Le paramètre Q_P a également été testé, ce paramètre étant contrôlé dans LAMMPS par le temps de relaxation de la pression (Pdamp). On procède de façon analogue à celle décrite pour le paramètre Tdamp. La température est augmentée de 100 K tous les 20 ps, avec une pression cible de 0 GPa sur chaque face de la boîte. Puis on regarde la rapidité du barostat à accommoder une variation de volume du système. Sur la figure II.4, il apparaît

très clairement que seule la valeur de Pdamp de $5000\Delta t$ le permet, c'est pourquoi cette valeur a été choisie pour nos simulations.

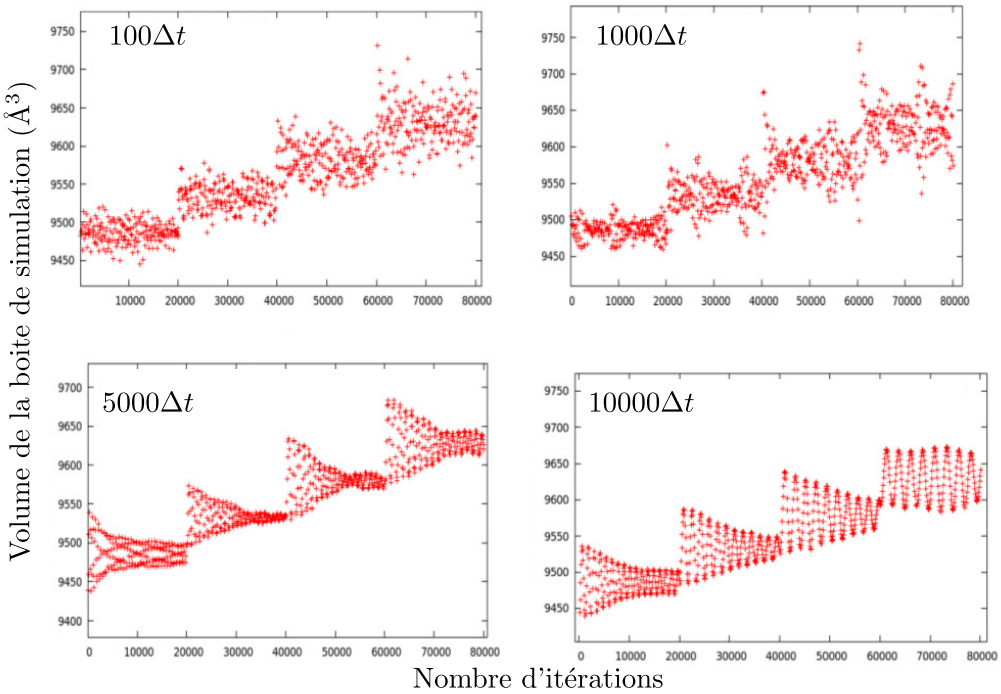

Figure II.4 – Tests du temps de relaxation de la pression (Pdamp) du barostat, avec le potentiel d'Ercolessi et Adams (EA-Al). Quatre valeurs de ce paramètre ont été testées, $100.\Delta t$, $1000.\Delta t$, $5000.\Delta t$ et $10000.\Delta t$. La température est imposée de façon similaire à celle décrite pour la figure II.3. Ces calculs ont été réalisés seulement avec le potentiel EA-Al.

II.1.3 Analyse

Pour le traitement et l'analyse des données, plusieurs outils ont été utilisés. Pour la visualisation, nous avons utilisé le logiciel OVITO [109], qui permet la visualisation de la structure simulée et propose un très grand nombre d'outils pour l'analyse des défauts. Dans cette étude portée essentiellement sur les matériaux CFC, nous avons surtout utilisé le paramètre CNA (Common Neighbor Analysis) permettant d'identifier la structure cristalline locale autour d'un atome, et ainsi de repérer les différents défauts d'empilement (de structure HC localement). Nous avons utilisé ce paramètre, dans la version proposée

dans LAMMPS décrite par Faken [110] et dans la version adaptée pour OVITO (a-CNA), décrite par Stukowski [111] (figure II.5.a). Le paramètre de centrosymétrie (CS) permet également d'identifier la structure locale. Nous avons utilisé ce paramètre dans la version décrite par Kelchner [112] (figure II.5.b). Les deux paramètres CS et a-CNA ont principalement été utilisés pour l'analyse des systèmes bimétalliques, car à la différence du paramètre CNA, leur détermination ne nécessite pas de rayon de coupure, dépendant du paramètre de maille du matériau étudié. Pour l'analyse des dislocations, nous avons utilisé l'algorithme d'extraction des dislocations (DXA) développé par Stukowski [113, 114]. Cet outil permet l'analyse des vecteurs de Burgers des dislocations formées et permet de suivre l'évolution de la densité de dislocations au cours de la simulation (figure II.5.c). Enfin, le dernier outil que nous avons utilisé est un algorithme de détection de macles (TwinID) qui a été développé durant cette thèse. Cet algorithme permet d'identifier les atomes appartenant à une même macle et ceux localisés à un joint de macle (figure II.5.d). Il permet ainsi un suivi au cours du temps de la quantité et de la taille des macles formées. Il est décrit en détail dans l'annexe A.

Durant la simulation plusieurs grandeurs caractéristiques sont extraites, notamment la température, les énergies potentielle, cinétique et totale du système, ainsi que la contrainte globale dans le système. Cette contrainte est déterminée à partir du tenseur des contraintes locales associé à chaque atome. Dans LAMMPS, il est calculé selon la méthode décrite par Thompson et al. permettant de considérer des potentiels d'interaction à plusieurs corps [115]. La somme sur tout les atomes du système, de la composante yy (y la direction de déformation) de ce tenseur des contraintes locales, est alors effectuée pour obtenir la composante yy de la contrainte globale. Il faut cependant noter que la quantité calculée par LAMMPS est une contrainte multipliée par un volume ; cette quantité doit donc être divisée par un volume atomique, dans le cas d'une contrainte locale associée à un atome, ou par le volume global du système, dans le cas d'une contrainte globale associée au système entier.

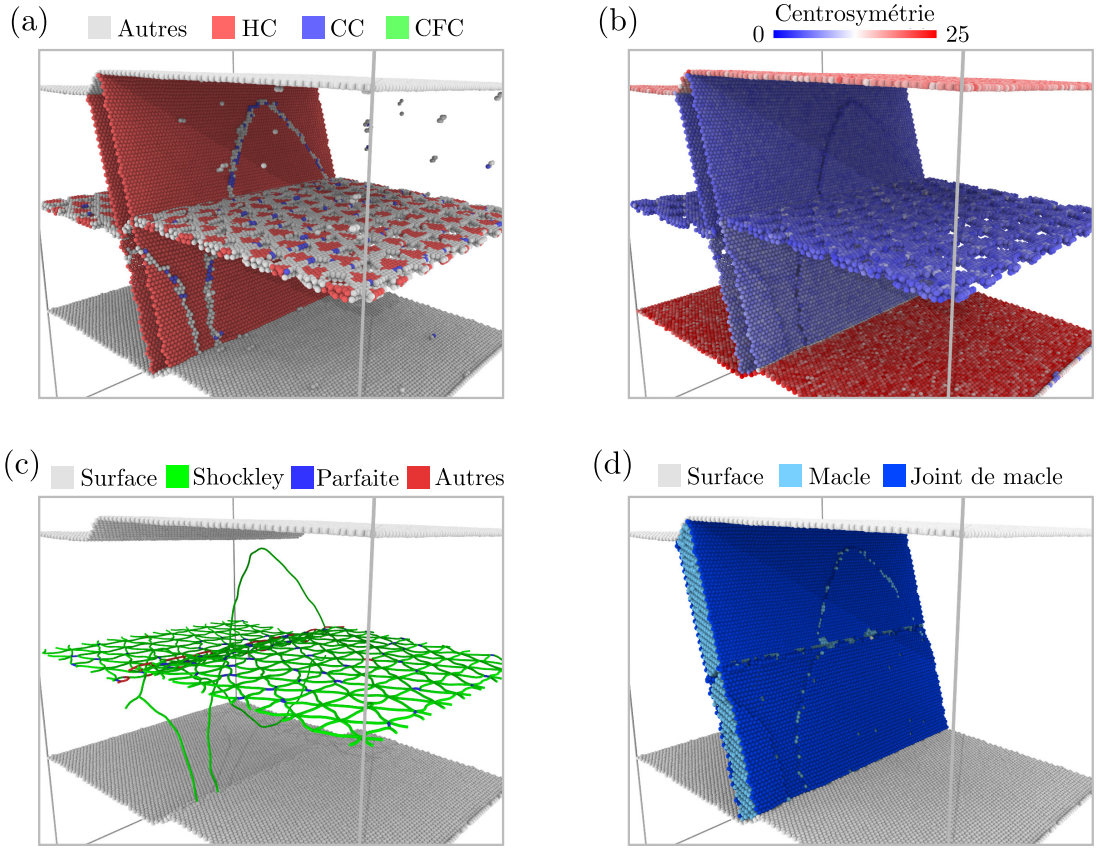

Figure II.5 – Visualisation d'une macle dans un film mince bimétallique Cu/Ag suivant différentes méthodes. (a) Coloration des atomes à partir du paramètre a-CNA, les atomes appartenant à la structure CFC ayant été effacés. La macle est ici repéré grâce à ses deux joints de macle (en rouge) et l'interface bimétallique par le réseau triangulaire (en blanc et rouge). (b) Coloration des atomes à partir du paramètre CS, les atomes dont la valeur de ce paramètre est inférieure à 4 ayant été effacés. La macle repérée grâce à ses deux joints de macle (en bleu) et l'interface bimétallique par le réseau triangulaire (en bleu). (c) Identification des dislocations avec l'algorithme DXA (lignes vertes) mettant en évidence le réseau triangulaire de dislocations d'épitaxie à l'interface bimétallique. (d) Coloration des atomes à partir du paramètre TwinID ; la macle est alors mise en évidence avec les atomes en bleu ciel et les joints de macle avec les atomes en bleu foncé. Ici, l'interface n'est pas visible.

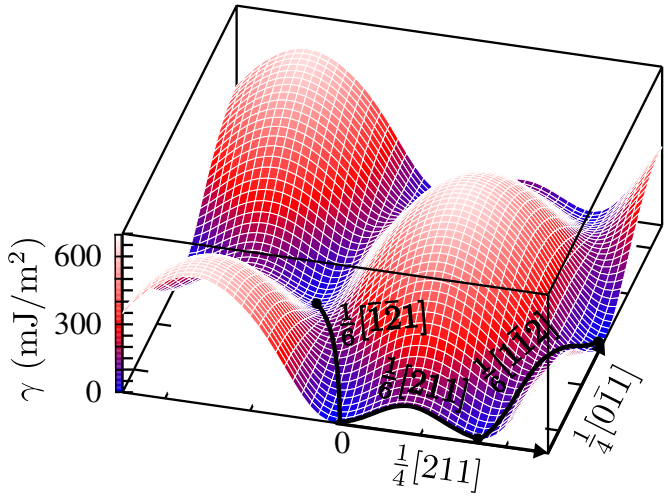

Figure II.6 – Cartographie énergétique de défaut d'empilement généralisé pour le cuivre (potentiel WM). Les lignes noires correspondent aux profils énergétiques associés aux déplacements suivant les trois vecteurs de Burgers des partielles de Shockley contenues dans le plan de coupure $(1\bar{1}\bar{1})$.

II.2 Calcul des énergies de défaut d'empilement

II.2.1 Systèmes monométalliques

Comme nous l'avons vu dans le chapitre I, le passage d'une dislocation partielle de Shockley crée un défaut dans l'empilement des plans {111}, auquel sont associées une énergie γ_{ISF} et une barrière d'énergie γ_{USF} pour former le défaut. De même, la formation d'une macle introduit des joints de macle, auxquels il est possible d'associer une énergie. Si l'on s'intéresse à la plasticité, et en particulier au maclage mécanique, il est crucial de reproduire le plus fidèlement possible ces grandeurs avec les potentiels interatomiques utilisés.

Pour déterminer en simulation atomistique les énergies de défaut d'empilement ainsi que les barrières d'énergie définies dans le chapitre I (figure I.8), on procède de la façon suivante. On considère deux parties d'un cristal parfait, séparées par un plan {111}, et on déplace rigidement l'une des parties du cristal parfait le long d'un vecteur dit vecteur de faute appartenant au plan {111}. On calcule alors l'énergie associée à ce vecteur. En balayant le vecteur de faute dans le plan de coupure, il est possible d'obtenir une

cartographie du paysage énergétique, appelée surface d'énergie de défaut d'empilement généralisé (ou γ-surface selon V. Vitek [116], figure II.6). On détermine γ_{ISF} et γ_{USF} en traçant le profil énergétique suivant le vecteur de Burgers $1/6\langle 112\rangle$ d'une partielle de Shockley. Pour déterminer les énergies γ_{ESF} et γ^{1}_{UTF}, à partir de la configuration de départ contenant le défaut d'empilement intrinsèque, on déplace alors rigidement l'une des parties du cristal jouxtant le défaut d'empilement intrinsèque suivant ce même vecteur. Pour déterminer γ_{TF} et γ^{∞}_{UTF}, on procède de façon analogue en déplaçant une partie du cristal contiguë à un joint de macle présent dans la configuration de départ. Pour calculer toutes ces énergies, le système peut être relaxé en laissant les atomes bouger suivant la direction normale au plan $\{111\}$. C'est ce type de calcul qui a été réalisé et dont les résultats sont présentés dans le tableau II.2.

Nous avons calculé ces énergies relaxées pour chacun des potentiels utilisés et cités en section II.1.1 ; les valeurs sont données dans le tableau II.2. Nous avons également comparé nos valeurs à celles calculées par Z.H. Jin et al. [43] à partir de calculs *ab initio* utilisant la méthode Nudged Elastic Band et celles obtenues par Bernstein et Tadmor utilisant un modèle de liaisons fortes [41]. Pour l'énergie γ_{ISF} et γ_{TF}, nos valeurs ont également pu être comparées à des valeurs obtenues expérimentalement [41]. Pour l'aluminium, on peut constater que le potentiel d'Aslanides et Pontikis surestime la plupart de ces énergies par rapport aux données obtenues en DFT, alors que le potentiel de Ercolessi et Adams reproduit plus fidèlement ces grandeurs. En revanche, si on les compare aux données expérimentales, on observe le contraire. Pour le cuivre, le potentiel de Wu et Trinckle, contrairement au potentiel de William et Mishin, sous-estime les barrières d'énergie γ_{USF}, γ^{1}_{UTF} et γ^{∞}_{UTF} et aussi les énergies γ_{ISF}, γ_{ESF} et γ_{TF}, par rapport au calcul DFT. Pour l'argent, le potentiel WM-Ag donne des résultats proches des énergies déterminées par l'expérience et par le calcul DFT (surtout pour γ_{ISF}, γ_{ESF} et γ_{TF}).

À partir de ces données, nous avons calculé les différents paramètres de «maclabilité» présentés dans le chapitre précédent, pour chaque potentiel utilisé (tableau II.3). De manière générale, on constate que l'aluminium semble peu propice au maclage ($M < 1$), contrairement au cuivre ou à l'argent. On constate également que le classement ne change pas en fonction du paramètre M choisi, à savoir AP-Al < EA-Al < WM-Cu < WT-Cu < WM-Ag [2], avec les potentiels considérés. L'argent est alors attendu comme le matériau le plus propice au maclage. Cependant, ce classement se trouve complètement

2. Le symbole < signifiant «moins propice au maclage que».

(mJ/m^2)	γ_{ISF}	γ_{ESF}	γ_{TF}	γ_{USF}	γ^1_{UTF}	γ^∞_{UTF}
EA-Al	105	116	58	128	169	54
AP-Al	150	140	70	175	234	85
Al (DFT-ciNEB) [43]	112	112	50	140	196	85
Al (TB) [41]	99	94	41	164	207	
Al (exp) [41]	167± 33	180	90± 45			
WM-Cu	44	44	22	162	183	139
WT-Cu	30	30	15	122	135	105
Cu (DFT-ciNEB) [43]	36	40	18	158	179	143
Cu (TB) [41]	64	65	30	200	236	
Cu (exp) [41]	61± 17		24			
WM-Ag	18	18	9	115	123	105
Ag (DFT-ciNEB) [43]	16	12	8	91	108	85
Ag (TB) [41]	18	20	12	93	105	
Ag (exp) [41]	18± 3		8			

Tableau II.2 – Tableau récapitulatif des énergies de défaut d'empilement généralisé calculées pour les différents potentiels utilisés. Les positions des atomes suivant la direction normale au plan de cisaillement sont libres de bouger.

perturbé si l'on considère seulement la barrière énergétique γ^1_{UTF}-γ_{ISF} comme critère (tableau II.3). Dans ce cas là, le classement devient WM-Cu < WM-Ag = WT-Cu < AP-Al < EA-Al et le matériau semblant le plus propice au maclage devient l'aluminium. Le critère γ^1_{UTF}-γ_{ISF} est déterminant si on considère un système où la formation de la partielle de queue est limitée, par exemple par une orientation géométrique peu (ou moins) favorable (ce qui sera le cas dans nos systèmes). Dès lors, la «maclabilité» d'un matériau peut différer selon le système considéré et sa capacité à activer certains mécanismes de plasticité plutôt que d'autres, indépendamment du matériau/potentiel considéré.

Dans cette thèse, nous avons donc fait le choix d'utiliser essentiellement le potentiel de Ercolessi et Adams pour l'aluminium, car en plus des raisons évoquées dans la sec-

	γ^1_{UTF}-γ_{ISF}(mJ/m^2)	M_{BT} (éq.I.4)	M_{AS} (éq.I.5)	M_J (éq.I.6)
EA-Al	64 (1)	0,881 (4)	1,015 (4)	0,982 (4)
AP-Al	84 (2)	0,870 (5)	0,981 (5)	0,949 (5)
WM-Cu	139 (5)	1,030 (3)	1,475 (3)	1,471 (3)
WT-Cu	105 (3-4)	1,045 (2)	1,506 (2)	1,495 (2)
WM-Ag	105 (3-4)	1,076 (1)	1,585 (1)	1,579 (1)

Tableau II.3 – Paramètres de «maclabilité» calculés, à partir des énergies de défaut d'empilement obtenues pour les potentiels utilisés (tableau II.2). Les nombres entres parenthèses correspondent au classement du matériau le plus propice au maclage (1) au moins propice (5), selon le paramètre de «maclabilité» considéré.

tion II.1.1, il reproduit correctement les valeurs des énergies de défaut d'empilement par rapport aux calculs *ab initio*. Pour le cuivre et l'argent, le potentiel de William et Mishin a été utilisé exclusivement pour décrire ces deux matériaux seuls. En effet, le potentiel de Wu et Trinckle échoue à reproduire des grandeurs cruciales comme les constantes élastiques (tableau II.1) et dans une moindre mesure les énergies de défaut d'empilement (tableau II.2).

II.2.2 Système bimétallique

Dans les matériaux nano-lamellaires bimétalliques, l'interface joue un rôle crucial sur la plasticité. Il est donc important de tester les potentiels dont nous disposons par rapport aux grandeurs caractéristiques de l'interface bimétallique.

Pour cette thèse, nous avons considéré deux interfaces, l'interface COC correspondant aux orientations $[\bar{2}11](111)_{\mathrm{Cu}}\|[\bar{2}11](111)_{\mathrm{Ag}}$ et l'interface HT correspondant aux orientations $[\bar{2}11](\bar{1}\bar{1}\bar{1})_{\mathrm{Cu}}\|[\bar{2}11](111)_{\mathrm{Ag}}$ (voir le chapitre IV pour une description complète de ces interfaces). Dans un premier temps, nous avons calculé l'énergie associée à chaque interface pour les deux potentiels utilisés (tableau II.4). D'après les valeurs calculées, le potentiel de William et Mishin semble très mal reproduire cette grandeur, l'énergie de l'interface étant négative. En revanche la valeur obtenue avec le potentiel de Wu et Trinckle semble raisonnable. En effet, nous le verrons dans le chapitre IV, la structure de l'interface HT

est très similaire à un joint de macle auquel se superpose un réseau de dislocations d'épitaxie[3] (voir le chapitre IV.1). L'énergie de l'interface doit donc être comparable à celle d'un joint de macle cohérent (voir γ_{TF} dans le tableau II.2) ajoutée à l'énergie de cœur des dislocations d'épitaxie.

(mJ/m^2)	E_{COC}	E_{HT}	$\gamma_{01\bar{1}}^{COC}$	$\gamma_{\bar{2}11}^{COC}$	$\gamma_{01\bar{1}}^{HT}$	$\gamma_{\bar{2}11}^{HT}$
WM	-156,6	-156,5	153,9	149,7	152,7	149,3
WT	345,3	345,7	552,0	553,2	615,5	607,5

Tableau II.4 – Tableau récapitulatif des énergies d'interface E_{COC} et E_{HT} et des barrières d'énergies ($\gamma_{01\bar{1}}^{COC}$, $\gamma_{\bar{2}11}^{COC}$, $\gamma_{01\bar{1}}^{HT}$ et $\gamma_{\bar{2}11}^{HT}$) associées à deux interfaces bimétalliques Cu/Ag (l'interface COC et l'interface HT, voir le chapitre IV pour une description complète de ces interfaces), calculées avec les potentiels WM et WT.

Un autre paramètre d'interface important est la γ-surface, associée au glissement en bloc d'un matériau par rapport à l'autre le long de l'interface. En effet, au cours de l'essai de déformation les dislocations d'épitaxie peuvent être amenées à glisser le long de l'interface. Li et al. montrent notamment, via des simulations atomistiques pour des matériaux nano-lamellaires, que l'interface est susceptible de flamber sous contrainte mécanique suite au glissement des dislocations d'épitaxie [117]. La γ-surface le long de l'interface est calculée de façon similaire à ce qui a été présenté dans la partie II.2.1. On considère ici un cristal de cuivre et un cristal d'argent, séparés par une interface bimétallique (COC ou HT). L'une des parties est ensuite déplacée le long du plan de l'interface d'un vecteur de faute. À partir de cette γ-surface, il est possible de calculer la barrière énergétique à franchir pour que l'interface glisse le long d'une direction $\langle 110 \rangle$ ou d'une direction $\langle 112 \rangle$. Les γ-surfaces calculées avec les deux potentiels pour l'interface COC sont présentées sur la figure II.7, et les valeurs calculées pour les deux interfaces sont répertoriées dans le tableau II.4. On constate qu'avec le potentiel de Wu et Trinckle les grandeurs $\gamma_{01\bar{1}}$ et $\gamma_{\bar{2}11}$ sont nettement plus grandes, quelle que soit l'interface, et bien supérieures aux valeurs de γ_{USF} pour des systèmes monométalliques (tableau II.2). Le glissement le long de l'interface semble donc peu favorable avec ce potentiel, ce qui n'est pas le cas pour le potentiel de William et Mishin qui donne des valeurs du même ordre de grandeurs que γ_{USF}.

3. Ces dislocations sont parfois appelées dislocations d'interface dans la littérature.

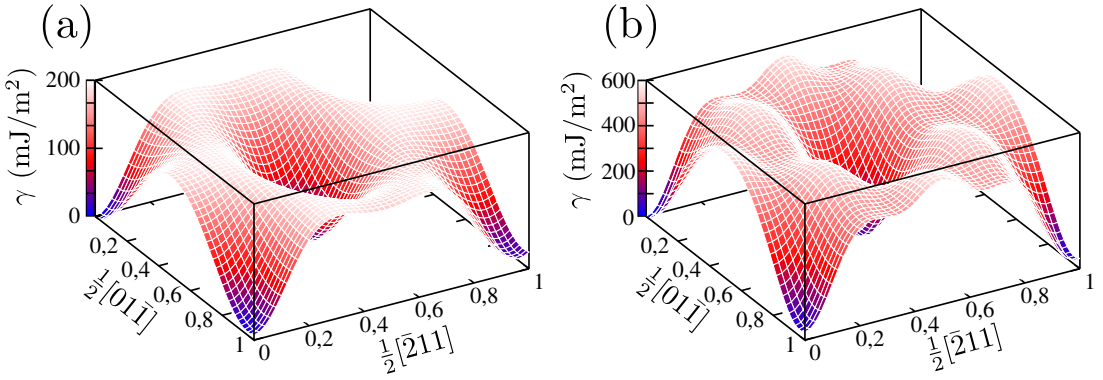

Figure II.7 – Cartographie énergétique de défaut d'empilement généralisé obtenue le long d'une interface bimétallique Cu/Ag : $[\bar{2}11](111)_{\mathrm{Cu}}\|[\bar{2}11](111)_{\mathrm{Ag}}$, (a) avec le potentiel de William et Mishin et (b) avec le potentiel de Wu et Trinckle.

Malgré une énergie d'interface négative, le potentiel de William et Mishin a principalement été utilisé pour l'étude des systèmes bimétalliques. En effet, si l'énergie de l'interface joue un rôle important lors de la décohésion du film, ce mécanisme semble très peu probable dans nos systèmes. Nous avons donc privilégié la possibilité du glissement le long de l'interface, mécanisme plus attendu lors de la mise sous contrainte de tels systèmes. De plus, comme nous l'avons évoqué précédemment, le potentiel de Wu et Trinckle échoue à reproduire plusieurs grandeurs importantes pour la plasticité et le maclage mécanique.

II.3 Modèle étudié

De manière générale, tout calcul en dynamique moléculaire nécessite de respecter un protocole assez précis. Le nôtre comporte cinq étapes : la construction du modèle de simulation, une minimisation initiale, une procédure de mise en température avec stabilisation du système à la consigne fixée, **l'essai de déformation** et enfin un post-traitement pour identifier les défauts créés lors de la simulation.

Pour cette étude sur le maclage, nous avons créé un modèle de simulation qui est propice à la formation de macles de déformation. Plusieurs modèles de simulation, correspondant à plusieurs types de nano-objet, peuvent être considérés. Dans la littérature on trouve des nano-fils (ou nano-piliers), des nano-grains (multicouche, colonnaire ou 3D) et des films minces. Dans cette thèse nous avons réalisé des simulations de la déformation

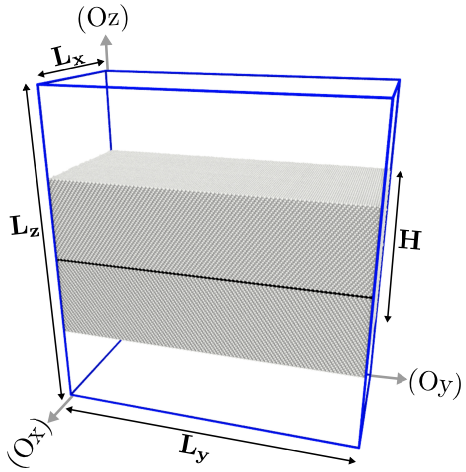

Figure II.8 – Représentation 3D du modèle de film mince utilisé.

d'un film mince autoporté, contenant ou non un joint de macle, constitué d'un seul matériau CFC (chapitre III) ou de deux matériaux CFC différents (chapitre IV). Le film mince autoporté a été choisi comme configuration modèle, le but étant d'identifier facilement les mécanismes de plasticité.

Pour notre modèle de film mince autoporté, des conditions aux limites périodiques ont été appliquées suivant deux directions de l'espace ((Ox) et (Oy) sur la figure II.8) et suivant la direction (Oz) (sur la figure II.8) des surfaces libres ont été introduites. Les conditions aux limites périodiques reviennent à répéter à l'infini le système suivant la direction de la boîte de simulation considérée. Quelques tests ont également été réalisés avec d'autres conditions aux limites, comme décrit dans l'annexe B. Les dimensions de la boîte de simulation standard L_x, L_y et L_z ont été choisies de manière à optimiser le temps de calcul (annexe B) et correspondent à 17,1 nm $\times$ 39,0 nm $\times$ 42,0 nm pour le système monométallique ($\sim$ 868800 atomes). L'épaisseur du film H est égale à la moitié de la dimension L_z, soit 21,0 nm. L'épaisseur de vide le long de (Oy) est donc également de 21 nm. Pour le système bimétallique les dimensions du film sont 18,4 nm $\times$ 29,2 nm $\times$ 16,7 nm ($= H$), correspondant à approximativement 783000 atomes.

L'orientation du cristal influe énormément sur le maclage mécanique. En 1926, Georges Friedel souligne l'importance de cette orientation pour engendrer le maclage mécanique. Il évoque le cas de la calcite, qui lorsqu'elle est sollicitée suivant la «bonne» direction, peut être entièrement déformée par maclage mécanique, alors qu'elle est très cassante pour une

quelconque autre direction [4] [20]. Ce constat fait par Friedel il y a plusieurs années est d'autant plus vrai dans les nano-objets où deux paramètres, l'axe de déformation et la nature des surfaces en présence, influent sur le maclage. Comme décrit dans l'annexe C, nous avons considéré plusieurs orientations cristallines pour notre modèle de film mince, et identifié une orientation à la fois propice au maclage et permettant l'introduction de défauts choisis. Le choix retenu correspond à des cristaux orientés de telle façon que les directions cristallographiques $\langle 01\bar{1}\rangle$, $\langle \bar{2}11\rangle$ et $\langle 111\rangle$ soient alignées respectivement suivant les directions (Ox), (Oy) et (Oz) de la figure II.8. Cette orientation permet l'introduction de plusieurs défauts, tels que des marches monoatomiques de surface le long de la direction (Ox) et un joint de macle ou une interface bimétallique de normale (Oz).

Après avoir construit le système, nous avons effectué une minimisation des forces appliquées aux atomes suivant l'une des deux méthodes décrites précédemment (en fonction du système considéré, voir section II.1.2.1). La température est ensuite introduite en deux temps. Dans un premier temps, une vitesse est attribuée à chaque atome, suivant une distribution statistique de Maxwell-Boltzmann, de façon à reproduire la température désirée (T_o). Cette mise en température induit des contraintes d'origine thermique. Une relaxation dynamique dans les conditions NPT est alors effectuée, avec comme température cible T_o et comme pression cible 0 GPa sur chaque face de la boîte de simulation. Cette étape est réalisée sur un temps simulé de 20 ps et permet de relâcher les contraintes thermiques, tout en maintenant la température constante (figure II.9). Sauf mention contraire, la température T_o utilisée dans nos simulations est de 300 K.

Dans notre modèle la déformation est appliquée de manière homogène dans le système, en compression suivant la direction (Oy). Pour cela, la taille de la boîte est modifiée suivant la direction (Oy) et les positions atomiques sont ajustées proportionnellement à la nouvelle taille de boîte, sans aucune modification de leur vitesse. La taille de la boîte est modifiée à chaque pas de temps ce qui permet une vitesse de déformation constante. Dans notre cas, une vitesse de déformation de 10^8 s^{-1} a été utilisée. Cette vitesse de déformation peut paraître excessive si on la compare à celles typiques des essais de déformations expérimentaux ($\sim 10^{-3}$ s^{-1}). Cependant en dynamique moléculaire, il est impossible d'approcher ces vitesses expérimentales car cela entraînerait un coût numérique exorbitant. Cepen-

4. Le lecteur est invité à regarder la vidéo : https://www.eng-atoms.msm.cam.ac.uk/VideoFolder/Calcite, réalisée par S. Lainé, R. Muñoz-Moreno, et L.R. Owen. Elle illustre parfaitement nos propos, basés sur l'expérience du minéralogiste allemand Heinrich Baumhauer réalisée sur de la calcite en 1879.

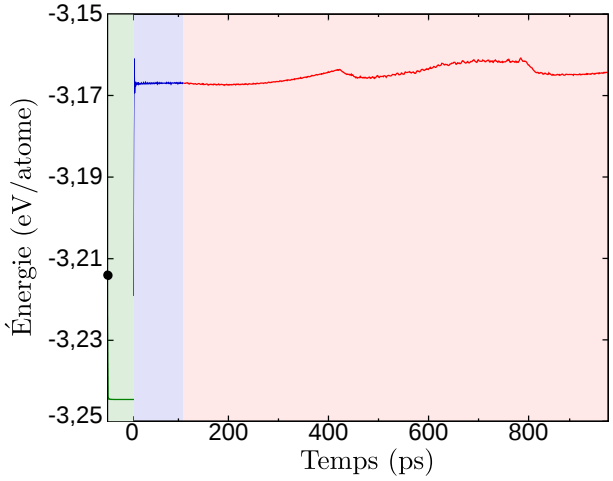

Figure II.9 – Évolution de l'énergie moyenne par atome d'un film mince d'aluminium (potentiel EA) en fonction du temps de simulation. La configuration de départ correspond au point noir. La partie de la courbe verte correspond à l'étape de minimisation, la partie bleue à la thermalisation du système et la partie rouge à la simulation de l'essai de déformation.

dant, nous avons testé plusieurs vitesses de déformation, $\dot{\varepsilon} = 10^9$, $\dot{\varepsilon} = 10^8$ et $\dot{\varepsilon} = 10^7$ s^{-1}, afin de pouvoir dégager des tendances. Les résultats correspondants sont décrits dans le chapitre III.

Il est important de réaliser qu'en utilisant des conditions aux limites périodiques, la direction de la contrainte appliquée peut évoluer au cours du temps. En effet, lorsqu'une macle est formée, les conditions de continuité en bord de boîte imposent une rotation globale du système. D'autres méthodes de déformation, avec des conditions aux limites différentes suivant la direction (Oy), ont donc été testées de sorte à empêcher cette rotation globale. Ces tests sont présentés dans l'annexe B. Enfin, suivant la direction (Ox), deux méthodes ont été utilisées pour tenir compte ou pas de la déformation induite par effet Poisson (cet effet n'est pas pris en compte dans la plupart de nos simulations). Les résultats sont également décrits dans l'annexe B.

Chapitre III

Systèmes monométalliques

Sommaire

III.1 Influence des défauts de surface sur le maclage 58
III.1.1 Cas d'une surface parfaite 58
III.1.2 Introduction d'un dipôle de marches 59
III.1.3 Discussion 63
III.2 Maclage en présence d'un joint de macle 65
III.2.1 Nucléation et extension de macles 66
III.2.2 Dislocations de Lomer 70
III.3 Multiples marches de surface 77
III.3.1 Influence sur la nucléation de dislocations 77
III.3.2 Influence d'un joint de macle préexistant 79
III.4 Discussion 82
III.4.1 Autres matériaux CFC 82
III.4.2 Rôle de la vitesse de déformation 91
III.5 Conclusion 93

Dans ce chapitre, nous présentons l'étude d'un film mince d'aluminium contenant un ou plusieurs défauts. Dans le chapitre précédent, à partir des énergies de défaut d'empilement, nous avons calculé la maclabilité d'un matériau suivant plusieurs critères. Or dans notre modèle les orientations choisies sont telles que la nucléation de dislocations partielles de Shockley de queue est très peu probable. Le matériau le plus favorable au maclage mécanique semble alors être l'aluminium à cause de sa faible barrière d'énergie γ^1_{UTF}-γ_{ISF}. C'est pourquoi nous avons réalisé notre étude en considérant dans un premier temps ce matériau. Dans ce chapitre, nous mettrons d'abord en évidence l'influence d'un défaut de surface sur le maclage. Puis nous introduirons un joint de macle afin d'examiner la formation de macles secondaires [1] et par conséquent les interactions macle-macle. Ensuite, la reproductibilité des mécanismes observés sera testée en faisant varier la densité de défauts à la surface du film, le matériau et la vitesse de déformation. Nous verrons également si ces mécanismes interviennent pour d'autres matériaux CFC, le cuivre et l'argent.

III.1 Influence des défauts de surface sur le maclage

Dans les films minces, la nucléation de dislocations est généralement localisée aux surfaces, et notamment aux défauts de surface qui peuvent concentrer localement la contrainte. Dans notre modèle, nous avons fait le choix d'introduire un dipôle de marches monoatomiques. Ce type de défaut est connu pour être un site favorable à la nucléation de dislocations [118, 119].

III.1.1 Cas d'une surface parfaite

Pour souligner l'importance des défauts de surface sur le mécanisme de maclage mécanique, nous allons dans un premier temps, comparer deux configurations : avec et sans défauts de surface. Cette dernière configuration est nettement moins réaliste, mais elle sera considérée ici comme un cas de référence.

Dans ce type de configuration, le premier mécanisme de plasticité se produit pour une déformation moyenne [2] de 6,8%. Cet événement est caractérisé par une chute importante

1. Les macles secondaires sont des macles formées à l'intérieur d'autres macles.
2. Les valeurs moyennes (des déformations) sont calculées à partir de plusieurs simulations réalisées

de contrainte dans le système, visible sur la courbe contrainte-déformation (figure III.1.a). Cet événement correspond à la nucléation quasi-simultanée de plusieurs dislocations partielles de Shockley (βD) depuis un site aléatoire de l'une des deux surfaces. Toutes ces dislocations partielles sont nucléées sur des plans $(\bar{1}11)$ adjacents. Elles forment alors une nano-macle, progressant dans le film suivant leur plan de glissement commun (figure III.2.i). Rapidement après, d'autres systèmes de glissement sont activés, notamment des dislocations parfaites (BD) glissant dans des plans $(1\bar{1}1)$ et $(11\bar{1})$ (figure III.2.ii-iv). La formation de macles secondaires est également observée dans la macle nouvellement formée (figure III.2.iii-iv). Toutes ces dislocations, issues de l'activation d'autres systèmes de glissement, traversent le film mince jusqu'à ce qu'elles soient arrêtées puis stockées aux joints de la première macle formée (figure III.2.ii-iv). Plusieurs dislocations s'amassent donc aux joints de macle, bloquant ainsi les partielles de macle qui continuent à se former. L'extension de la première macle est alors rapidement stoppée et des réarrangements atomiques locaux entraînent une destruction partielle du joint de macle (figure III.2.iii-iv). La macle initialement formée s'apparente alors plus à un grain, considéré ici comme un domaine cristallin contenant plusieurs défauts (figure III.2.iv). Dans le chapitre I, nous avons vu qu'une étude expérimentale relatait ce genre de mécanisme pour lequel lorsqu'un très grand nombre de dislocations s'accumule sur des macles de petites tailles, ces dernières sont détruites pour former un joint de grain [87].

Tous ces mécanismes de plasticité ont lieu dans un laps de temps très court et correspondent à la même chute de contrainte observée à 6,8% de déformation (figure III.1.a). Pour une déformation appliquée plus importante, d'autres petites chutes de contrainte sont observées sur la courbe contrainte-déformation ; elles sont dues à la nucléation de dislocations parfaites depuis le grain.

III.1.2 Introduction d'un dipôle de marches

Nous avons ensuite introduit sur l'une des deux surfaces un dipôle de marches monoatomiques. Les marches sont construites en supprimant, à la surface du film, une couche atomique sur une portion de la surface. Les deux marches monoatomiques formées à la surface ont leur ligne orientée suivant la direction $[01\bar{1}]$ et sont espacées d'environ 20 nm l'une de l'autre. Ces marches sont géométriquement différentes ; elles vont donc réagir

dans les mêmes conditions mais avec des distributions de vitesses initiales différentes.

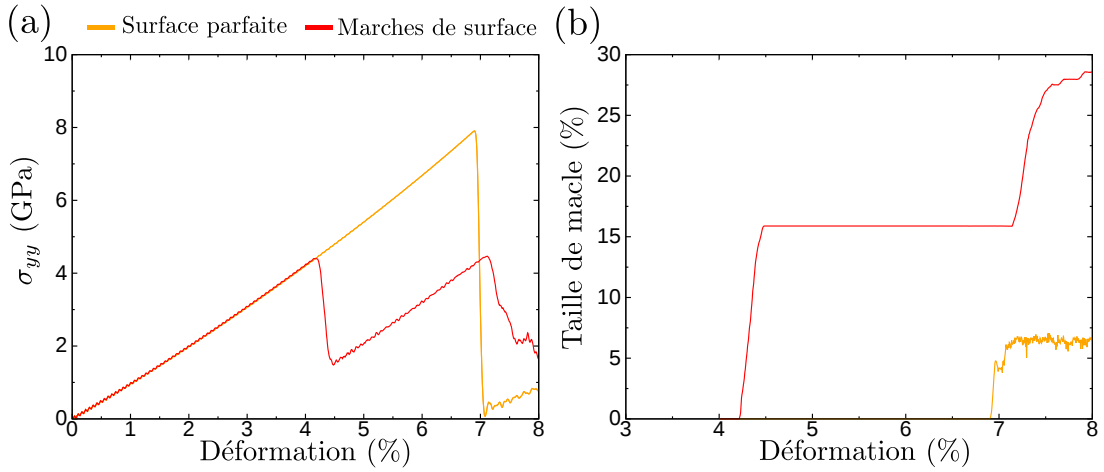

Figure III.1 – (a) Courbes contrainte-déformation représentatives de deux configurations de film mince, l'un contenant un dipôle de marches monoatomiques sur l'une des deux surfaces (courbe rouge) et l'autre sans défaut de surface (courbe jaune). (b) Évolution de la taille de la macle formée au cours de la déformation, pour chacune des deux configurations citées précédement. La taille de la macle est alors donnée comme une proportion par rapport au volume total du système.

différemment à la contrainte appliquée en fonction de son orientation et peuvent conduire ou pas à la nucléation de dislocations [118, 119].

Dans cette configuration, le premier événement de plasticité a lieu pour une déformation moyenne de 4,1% et correspond à la première chute de contrainte observée sur la courbe contrainte-déformation (figure III.1.a). Ce premier événement de plasticité correspond à la nucléation, depuis la marche de surface activée [3], d'une dislocation partielle de Shockley (βD)(figure III.3.i). Cette dernière traverse le film en laissant derrière elle un défaut d'empilement intrinsèque. Lorsque la dislocation βD atteint la surface opposée, elle entraîne via un mécanisme de rebond (voir section I.1.3.3 page 22) la nucléation de deux dislocations partielles de Shockley sur des plans ($\bar{1}11$) adjacents au défaut d'empilement intrinsèque. Ces deux dislocations ont un vecteur de Burgers opposé à la première et entraînent la formation d'une nano-macle (flèches noires sur la figure III.3.ii). La macle s'étend alors avec la nucléation de plusieurs dislocations partielles de Shockley sur des plans ($\bar{1}11$) adjacents, toujours suivant un mécanisme de rebond (figure III.3.ii-iii). Sur la

3. Marche dont la géométrie permet le déclenchement de la plasticité par rapport à la direction de la contrainte appliquée. On parlera dans la suite de marche activable.

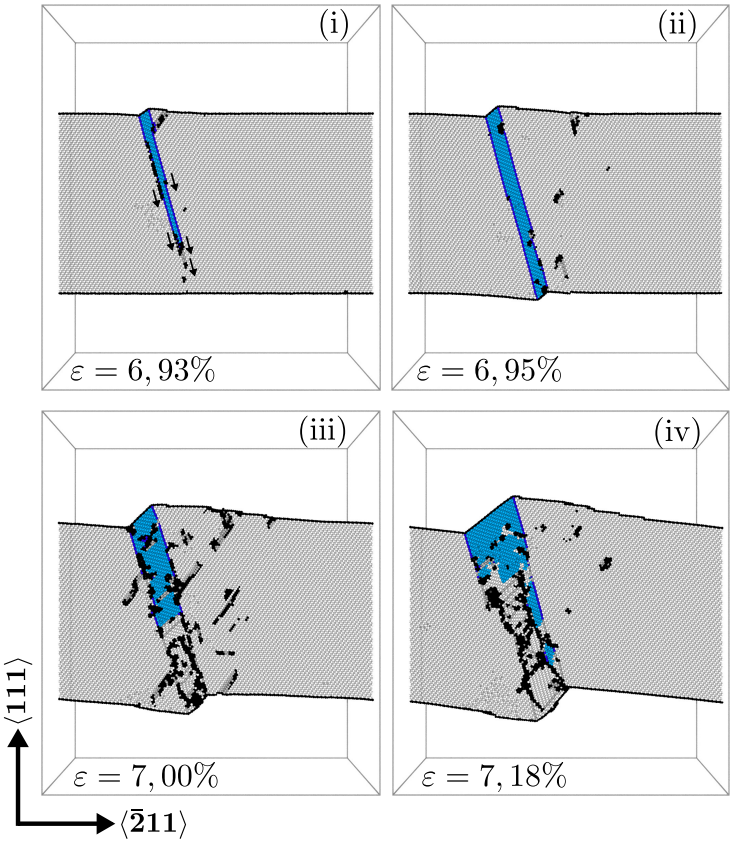

Figure III.2 – Vue en coupe de la nucléation d'une macle dans un film mince sans défaut de surface en compression. (i) Nucléation simultanée depuis la surface, de plusieurs dislocations partielles indiquées par les flèches noires (ii) suivie de l'extension de la macle formée et de la nucléation de dislocations parfaites. (iii) Accumulation de dislocations aux joints de la macle nouvellement formée. (iv) Destruction partielle de la macle initialement formée. Les atomes sont grisés selon le paramètre CNA : les atomes en noir appartiennent à une surface ou une ligne de dislocation, les atomes appartenant à un défaut d'empilement intrinsèque sont en gris foncé et les atomes dans un arrangement de cristal CFC parfait en gris clair. Un deuxième code couleur s'ajoute au premier, avec les atomes appartenant à une macle ou aux joints de macle associés colorés grâce à notre algorithme d'identification de macles (TwinID, voir annexe A).

figure III.1.b, nous avons reporté l'évolution du volume total de macles (calculé comme une proportion par rapport au volume total du système) au cours de la déformation. Sur cette courbe, le mécanisme de rebond est caractérisé par une rapide augmentation de la taille de la macle. Des mécanismes de rebond aux surfaces analogues ont déjà été observés

en simulations atomistiques, en particulier pour un film mince d'aluminium très similaire au nôtre mais construit dans des orientations cristallographiques différentes [51]. Comme évoqué dans le chapitre I, ce mécanisme est lié à la vitesse importante à laquelle glissent les dislocations considérées [52].

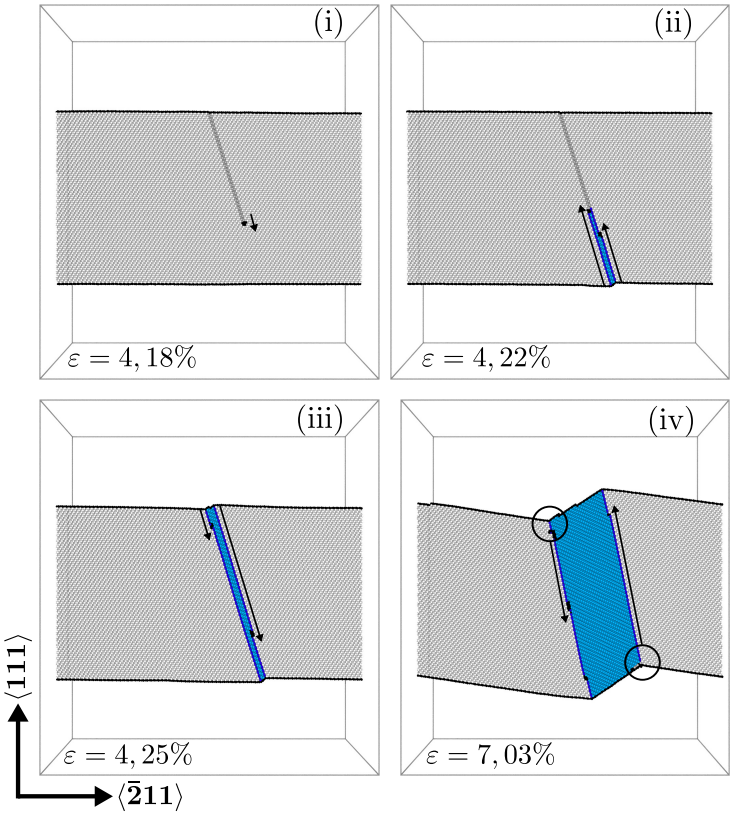

Figure III.3 – Vue en coupe de la nucléation et de l'extension d'une macle dans un film mince contenant un dipôle de marches monoatomiques sur l'une des deux surfaces, sous chargement en compression. (i) Nucléation d'une dislocation partielle de Shockley depuis l'une des deux marches introduites. (ii) Nucléation de deux dislocations partielles de Shockley sur des plans adjacents à la première via un mécanisme de rebond. Ce mécanisme est indiqué par les flèches noires. (iii) Extension de la macle toujours suivant un mécanisme de rebond. (iv) Deuxième mécanisme de maclage, les dislocations partielles de Shockley sont alors formées depuis deux sites particuliers indiqués par les cercles noirs. Le code couleur utilisé ici pour les atomes est le même que celui décrit pour la figure III.2.

Le maclage s'arrête ensuite spontanément pour une déformation de 4,5%. À la fin de

ce premier mécanisme de rebond, l'épaisseur moyenne[4] de la macle est de 56 Å. Puis le système accommode la déformation appliquée élastiquement jusqu'à une déformation moyenne de 7,1%. Cette étape est caractérisée par une augmentation de la contrainte (figure III.1.a) et par un plateau dans l'évolution du volume de macles en fonction de la déformation (figure III.1.b). Le maclage reprend ensuite suivant un second mécanisme d'extension à partir des surfaces, le mécanisme de rebond n'étant plus observé. En effet, les dislocations partielles de Shockley sont alors nucléées à partir de deux sites particuliers correspondant à l'intersection des joints de macle avec les surfaces. Ils sont indiqués par des cercles noirs sur la figure III.3.iv. Elles glissent alors le long des joints de la macle formée permettant ainsi son extension. Une simulation réalisée à une faible température (10K), afin de réduire l'agitation thermique, montre très clairement une concentration de contraintes à l'intersection formée par les joints de macles et les surfaces. Parmi les quatre sites alors considérés, seuls deux indiqués par les cercles noirs sur la figure III.3.iv sont susceptibles d'activer la nucléation de dislocations en compression, de part leur géométrie. Ce deuxième mécanisme d'extension de la macle est caractérisé sur la courbe contrainte-déformation par une rapide chute de la contrainte dans le système (figure III.1.a) et sur la courbe de la figure III.1.b par une deuxième augmentation du volume de la macle.

À une plus forte déformation, d'autres systèmes de glissement sont activés, avec notamment la formation de dislocations parfaites (BD) glissant dans les plans $(1\bar{1}1)$ et $(11\bar{1})$. Le second mécanisme d'extension de la macle s'arrête (voir le plateau observé sur la figure III.1.b, après 7,5% de déformation). L'épaisseur moyenne de la macle est alors de 89 Å. Ce second mécanisme de maclage n'est pas anecdotique puisqu'il contribue à augmenter le volume de la macle d'environ 59%.

III.1.3 Discussion

La comparaison de ces deux cas (surface parfaite et surface avec défauts) souligne le rôle important des défauts de surface sur le processus de maclage.

La première différence que l'on peut relever entre les deux systèmes est la limite d'élasticité[5] qui est atteinte (en moyenne) pour une déformation de 4,1% en présence d'un

4. L'épaisseur de la macle est ici calculée entre les deux positions des joints de la macle, suivant la direction $[\bar{1}11]_T$

5. Elle est définie ici comme la déformation (ou la contrainte) à laquelle le premier événement de plasticité se produit.

dipôle de marches à la surface et pour une déformation de 6,8% dans le cas d'une surface parfaite. Cette différence est principalement causée par une localisation de la contrainte appliquée près des marches de surface, conduisant à la nucléation des dislocations pour une déformation appliquée plus faible [118]. Dans ce cas, la contrainte dans l'ensemble du système est plus faible, moins de systèmes de glissement sont activés, ce qui entraîne moins d'interactions macles-dislocations, qui sont défavorables à l'extension de la macle. À l'inverse, lorsqu'aucun défaut n'est introduit à la surface du film, la haute limite d'élasticité provoque l'activation simultanée de plusieurs systèmes de glissement, avec notamment la formation de dislocations parfaites et la formation de macles secondaires. Dans ce cas, la présence d'un nombre important de dislocations aux joints de la macle freine (voir stoppe) le glissement des partielles de macle et donc l'extension de la macle.

Si l'on trace l'évolution de la densité de dislocations au cours de la déformation (figure III.4), on constate qu'au delà de la limite d'élasticité la densité de dislocations est bien plus importante lorsqu'aucune marche n'est introduite à la surface du film (jusqu'à huit fois supérieure pour les valeurs maximum). Ce constat est directement lié à l'accumulation de dislocations observée aux joints de la macle nouvellement formée. Sur cette même figure, la densité de dislocations partielles de Shockley formées dans le film mince a été tracée au cours de la déformation (courbe verte). Dans le cas où un dipôle de marches est introduit à la surface du film, la densité de dislocations partielles de Shockley augmente d'abord avec un pic correspondant au premier mécanisme de rebond, puis décroît et s'annule lorsque toutes les dislocations partielles de Shockley ont été éliminées aux surfaces du film. Dans le cas d'une surface parfaite, la densité de dislocations partielles de Shockley augmente également rapidement au cours de la formation de la macle, puis chute à partir de 6,9% de déformation lorsque les partielles sont éliminées aux surfaces. Au delà (vers 7% de déformation), les partielles de Shockley ne sont plus éliminées aux surfaces. Les dislocations des autres systèmes de glissement sont bloquées aux joints de macle (courbes bleue, violette, jaune et cyan), empêchant l'extension de la macle. La densité de dislocations partielles de Shockley augmente alors à nouveau légèrement, avant de rediminuer.

Le mécanisme de nucléation et d'extension des macles est également différent. En présence de défauts de surface, le maclage se produit en plusieurs étapes (mécanisme de rebond puis nucléation sans rebond, voir section III.1.2), tandis que dans le cas d'une surface parfaite, la macle est formée en une seule étape impliquant la nucléation simultanée

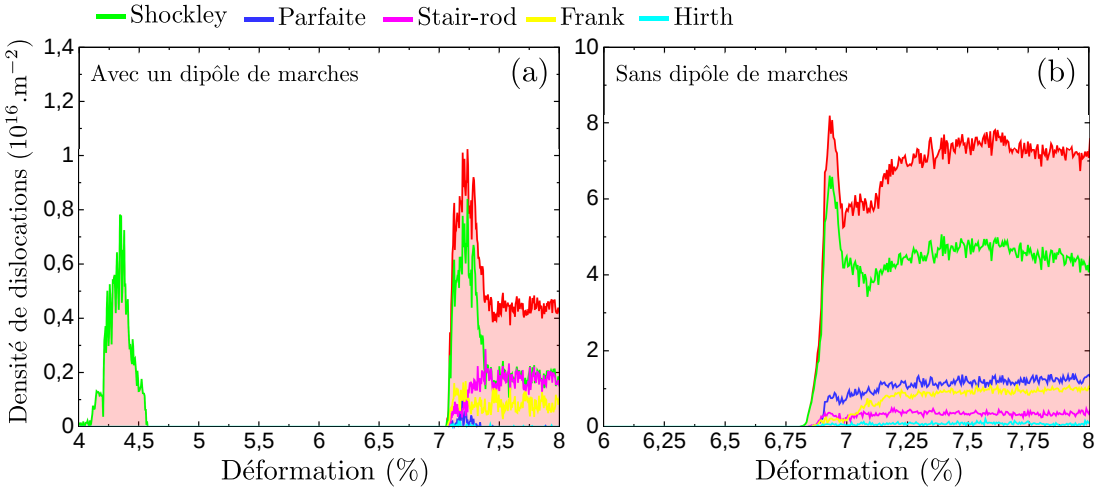

Figure III.4 – Évolution de la densité de dislocations au cours de la simulation pour un film mince (a) contenant ou (b) ne contenant pas un défaut de surface. Les courbes vertes, bleues, violettes, jaunes et cyan correspondent respectivement à la densité de dislocations partielles de Shockley, parfaites, stair-rod, partielles de Franck et stair-rod de Hirth, pour chacunes des deux configurations. Les courbes rouges correspondent à la densité totale de dislocations pour les deux configurations considérées.

de dislocations partielles dans des plans {111} adjacents. Ce phénomène a déjà été observé en simulation dans des grains de taille de l'ordre de quelques centaines de nanomètres [48, 56]. Cependant, les niveaux de contrainte extrêmes mis en jeux ici semblent très peu réalistes d'un point de vue expérimental.

Pour tous les systèmes considérés dans la suite de cette thèse, nous introduirons un ou plusieurs défauts de surface, ce qui diminuera les niveaux de contrainte nécessaires à la nucléation de dislocations et par conséquent le nombre de systèmes de glissements activés.

III.2 Maclage en présence d'un joint de macle

Ici, nous avons introduit un joint de macle cohérent dans le modèle de simulation. Pour cela, on réalise une rotation de 180° autour, soit de la direction normale au joint de macle [111], soit de la direction de déformation $[\bar{2}11]$ [6], de l'une des moitiés du film mince. L'objectif de cette partie est de voir comment une macle en formation interagit avec un

6. Les deux opérations sont équivalentes dans le cas d'une macle composée, voir chapitre I.

joint de macle préexistant.

III.2.1 Nucléation et extension de macles

De la même façon que précédemment, une première dislocation partielle de Shockley (βD) est nucléée à partir de la marche introduite à la surface dans un plan ($\bar{1}11$) (figure III.5.i). Ce premier événement plastique apparaît pour une déformation appliquée moyenne de 4,1% (pic de contrainte sur la figure III.6.a). Cette limite élastique est similaire à celle obtenue sans joint de macle. En effet, les mécanismes de nucléation de dislocations étant très localisés (ici près de la marche de surface), la présence d'un joint de macle cohérent dans le cristal n'influence pas le premier événement de plasticité. La dislocation partielle de Shockley, laissant derrière elle un défaut d'empilement intrinsèque, glisse alors jusqu'au joint de macle introduit où elle est arrêtée et stockée. Plusieurs dislocations partielles de Shockley (βD) sont ensuite formées depuis la surface sur des plans ($\bar{1}11$) adjacents au défaut d'empilement intrinsèque, formant ainsi une macle. Ces dislocations, et par conséquent la propagation de la macle, sont également stoppées au joint de macle (figure III.5.ii). L'extension de la macle formée depuis le défaut de surface s'arrête, pour une épaisseur de la macle de 6,9 Å. Les dislocations partielles de Shockley bloquées au joint de macle interagissent entre elles ce qui conduit à la nucléation d'une dislocation dans la seconde partie du film mince, identifiée comme étant une dislocation de Lomer[7] $(DB)^T$ (figure III.5.ii).

7. Pour rappel, une dislocation de Lomer correspond à une dislocation parfaite (de vecteur de Burgers $1/2\langle 110\rangle$) glissant dans un plan (100).

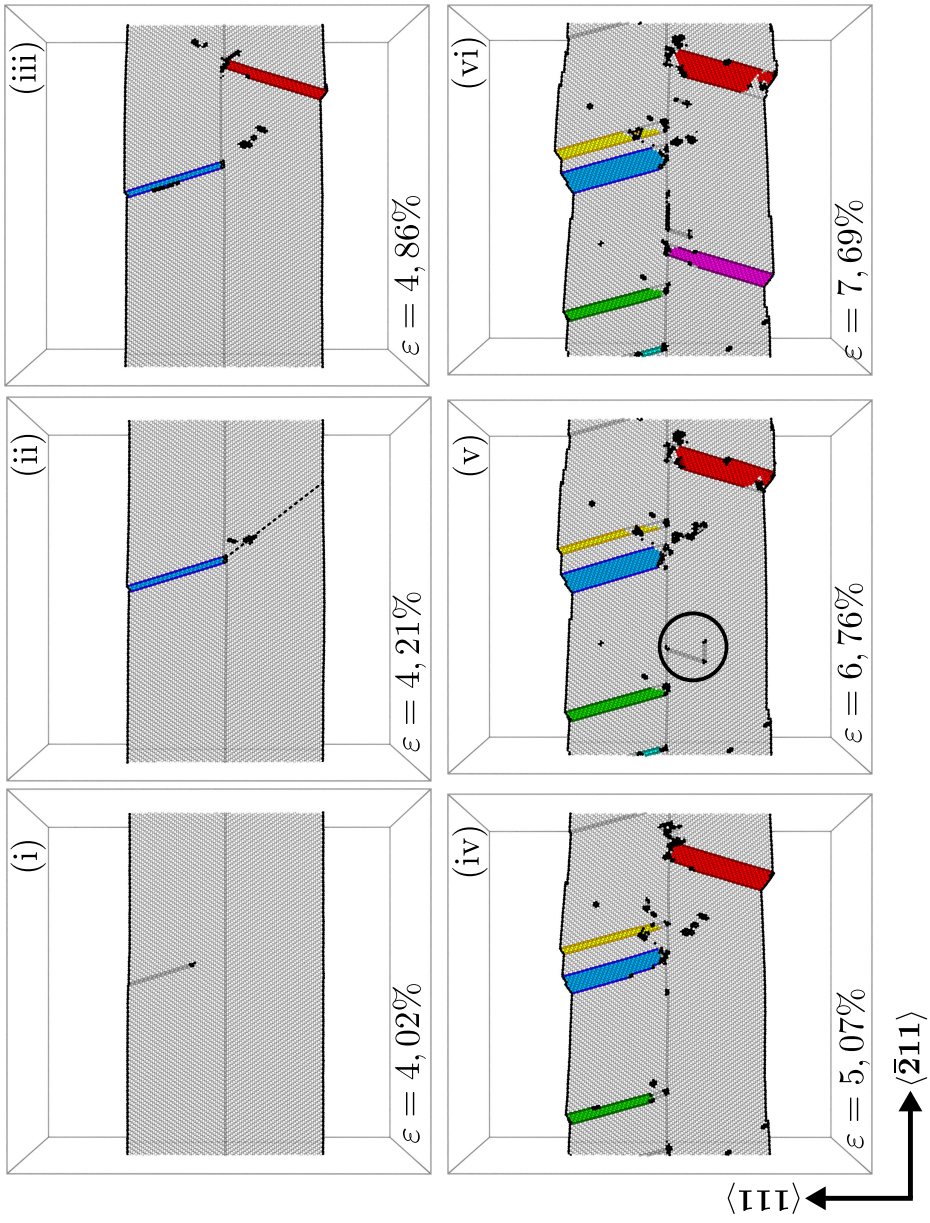

Figure III.5 – Vue en coupe de la nucléation et de l'extension de plusieurs macles dans un film mince contenant un dipôle de marches monoatomiques sur l'une des deux surfaces et un joint de macle à mi-distance des deux surfaces. (i) Nucléation d'une dislocation partielle de Shockley depuis l'une des deux marches introduites. (ii) Nucléation d'une première macle depuis le défaut de surface. Formation d'une dislocation de Lomer dont le plan est indiqué par la ligne en pointillé noire. (iii) Formation d'une seconde macle depuis la marche de surface laissée par la dislocation de Lomer et formation d'une dislocation de Lomer dans la partie supérieure du film mince. (iv) Formation de deux autres macles depuis la surface contenant le défaut initial. (v) Formation d'un verrou de Lomer-Cottrell, indiqué par le cercle noir, à partir d'une dislocation de Lomer. (vi) Formation d'une macle à partir du verrou de Lomer-Cottrell. Le code couleur utilisé ici pour les atomes est le même que celui décrit pour la figure III.2.

Dans le cas présenté en figure III.5, la dislocation de Lomer traverse la seconde partie du film mince et atteint la seconde surface. Elle laisse à cette surface une marche orientée suivant la direction $[01\bar{1}]$, qui est alors susceptible d'engendrer la nucléation de dislocations partielles de Shockley. Tous ces événements de plasticité correspondent à la première chute de contrainte observée à 4,1% de déformation sur la courbe contrainte-déformation (figure III.6.a).

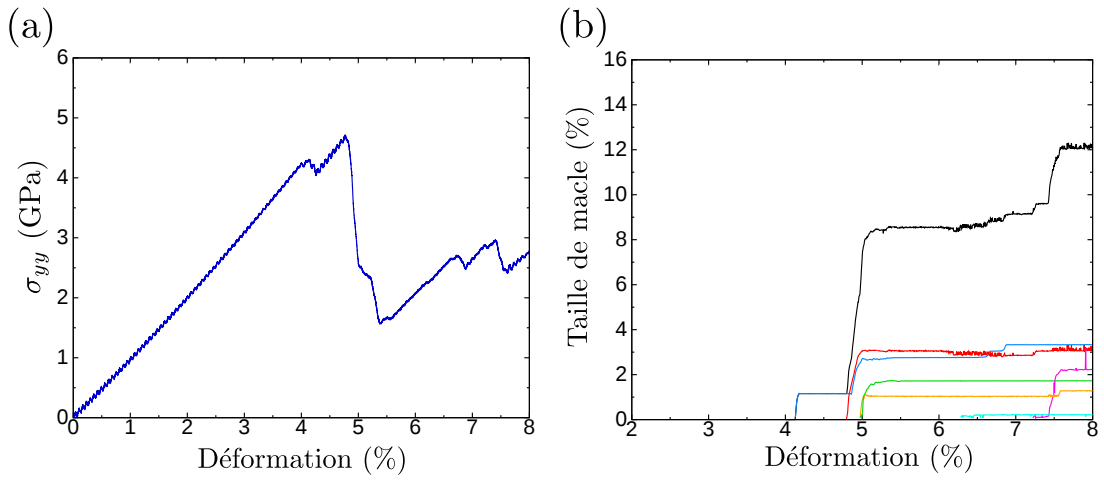

Figure III.6 – (a) Courbe contrainte-déformation pour un film mince contenant un joint de macle initial. (b) Évolution du volume total de macles dans le système au cours de la déformation (courbe noire). Les courbes de couleur corespondent à l'évolution de la taille de chacune des macles du système, les couleurs étant associées aux différentes macles de la figure III.5.

Cette configuration a été testée en considérant plusieurs distributions initiales des vitesses et dans plusieurs cas nous avons identifié deux autres mécanismes susceptibles de se produire à partir de la dislocation de Lomer. Avec une probabilité similaire, nous avons observé la nucléation de boucles isolées de dislocations partielles de Shockley directement à partir de la dislocation de Lomer. Cette dernière atteint ensuite la seconde surface pour y former une marche monoatomique également orientée suivant la direction $[01\bar{1}]$. Une autre possibilité est la dissociation de la dislocation de Lomer en verrou de Lomer-Cottrell. Elle reste cependant moins fréquente puisque, sur dix simulations, elle n'a été observée qu'une seule fois. Nous expliquerons en détail tous ces mécanismes dans la partie suivante (section III.2.2).

Dans le cas présenté ici (figure III.5), à la suite de la sortie de la dislocation de Lomer à la surface, le système arrête de se déformer plastiquement. Par conséquent, la contrainte dans le système croît à nouveau jusqu'à une déformation appliquée de 4,8% (figure III.6.a). Ensuite, la déformation plastique reprend avec la nucléation d'une macle dans la seconde partie du cristal, depuis la marche formée par la dislocation de Lomer (figure III.5.iii). Cette macle induit alors la formation d'une dislocation de Lomer dans la première partie du cristal (figure III.5.iii) qui est à l'origine de deux autres macles (figure III.5.iv). La première (en vert sur la figure III.5.iv) est formée à partir de la marche laissée par la dislocation de Lomer à la surface supérieure. Cette macle entraîne la nucléation d'une dislocation de Lomer dans la partie inférieure du film, qui formera par la suite un verrou de Lomer-Cottrell (entouré en noir sur la figure III.5.v). Une autre macle (en jaune sur la figure III.5.iv) est formée quasi-simultanément par la nucléation homogène de plusieurs partielles de Shockley depuis la surface contenant la marche introduite initialement. Enfin, la macle en bleu clair sur la figure III.5.v résulte de la nucléation d'une boucle de dislocation partielle de Shockley isolée, directement à partir de la dislocation de Lomer. Cette boucle croît, en créant un défaut d'empilement intrinsèque, jusqu'à atteindre d'un côté la surface et de l'autre côté le joint de macle. Une macle est alors formée à partir de ce défaut d'empilement avec la nucléation de dislocations partielles depuis la surface.

À plus forte déformation (à partir de 5%), des dislocations parfaites glissant dans des plans $(1\bar{1}1)$ et $(11\bar{1})$ sont formées. À plus de 6,5% de déformation, on observe également la nucléation de quelques partielles de macle, permettant l'extension de certaines des macles déjà formées (macles bleue, rouge et jaune sur la figure III.5). Puis, le verrou de Lomer-Cottrell formé à partir de la troisième macle (en vert sur la figure III.5), se recombine en une dislocation de Lomer. Cette dernière engendre alors directement la nucléation d'une partielle de Shockley, puis d'une macle (en violet sur la figure III.5.vi) à partir de la surface inférieure.

Nous avons reporté sur la figure III.6.b, l'évolution du volume total de macles dans le film (courbe noire) ainsi que la taille de chacune des macles formées au cours de la déformation (courbes de couleur). Cette figure permet de résumer chronologiquement les mécanismes observés.

- La courbe bleue correspond à la première macle formée depuis la marche introduite à la surface.
- La courbe rouge correspond à la macle formée à partir de la marche générée sur la

surface inférieure par la première dislocation de Lomer.
- La courbe verte correspond à la macle formée à partir de la marche générée par la deuxième dislocation de Lomer.
- La courbe jaune correspond à la macle formée à partir de la nucléation homogène de plusieurs partielles de Shockley directement depuis la surface supérieure.
- La courbe bleu clair correspond à la macle formée à partir de la boucle de dislocation partielle de Shockley issue de la deuxième dislocation de Lomer.
- Enfin, la courbe violette correspond à la macle formée à partir de la boucle de dislocation partielle de Shockley issue de la troisième dislocation de Lomer.

Par rapport au cas sans joint de macle cohérent, on peut constater que le volume total de macle est fortement réduit (comparer la courbe rouge de la figure III.1.b à la courbe noire de la figure III.6.b). Ici, le joint de macle cohérent agit donc comme un frein à l'extension de la macle, en empêchant un possible mécanisme de type rebond depuis l'interface. En effet, un joint de macle cohérent est connu pour constituer une barrière forte aux dislocations [25]. Ici, les macles formées sont complètement arrêtées par le joint de macle et ne peuvent pas atteindre la surface inférieure du film. Les partielles de macles ne sont alors émises que d'un seul côté du film et aucun mécanisme de rebond n'est observé au joint de macle cohérent, ce qui ralentit nettement leur extension.

En revanche, il semble que la présence d'un joint de macle soit favorable à la nucléation de macles. Un plus grand nombre de macles est formé (ici 6 macles ont été formées contre seulement une pour le film mince sans joint de macle initial). Dans nos systèmes, la présence de dislocations de Lomer semble fortement influencer le nombre de macles formées, en agissant comme sources de dislocations partielles de Shockley. Ces dislocations de Lomer font l'objet de la section suivante.

III.2.2 Dislocations de Lomer

Dans cette section, nous allons décrire en détail les mécanismes de formation des dislocations de Lomer et nous montrerons comment elles peuvent être à l'origine de la nucléation de macles de déformation.

III.2.2.1 Nucléation de dislocations de Lomer

Les dislocations de Lomer sont des dislocations parfaites avec un vecteur de Burgers $1/2\langle 110\rangle$, dont le plan de glissement est de type $\{100\}$. Elles ont été observées à plusieurs reprises expérimentalement notamment dans le cuivre et l'aluminiun [32, 120]. Dans les simulations atomistiques, elles sont également observées et il a été constaté qu'elles résultaient généralement de l'interaction d'une dislocation parfaite et d'un joint de macle cohérent [10, 33].

Dans nos systèmes, deux mécanismes sont susceptibles de conduire à la formation de dislocations de Lomer. Le premier est décrit dans le chapitre I (voir équation I.17 page 31). Il a été mis en évidence, par des simulations atomistiques, qu'il faisait intervenir une dislocation parfaite transmise dans la partie maclée dans un plan de glissement $\{100\}$ [10, 33, 78, 90, 91]. Dans nos systèmes, la formation d'une dislocation partielle de tête suivie d'une dislocation partielle de queue entraîne la formation d'une dislocation parfaite mixte stoppée et stockée au joint de macle préexistant. Cette dislocation parfaite forme ensuite une partielle de Shockley glissile le long du joint de macle et une dislocation de Lomer glissile sur un plan $\{100\}$. Ce mécanisme, que nous noterons à partir de maintenant $L_{\langle 110\rangle}$, n'est pas observé dans le cas que nous avons présenté dans la section III.2.1. En effet, la nucléation des dislocations partielles de queue n'étant pas favorable à cause d'un facteur de Schmid faible ($s = 0,16$), la formation de dislocations parfaites et leur interaction avec le joint de macle est très peu probable.

Le mécanisme qui intervient dans le cas présenté dans la partie III.2.1, fait intervenir une faute d'empilement extrinsèque. Cette dernière résulte de la formation de deux dislocations partielles de Shockley sur des plans $(\bar{1}11)$ adjacents et bloquées au joint de macle cohérent. Ces deux dislocations partielles de tête (ici βD) se combinent pour former une super dislocation ($2\beta D$), bloquée au joint de macle. Cette super dislocation se dissocie rapidement en une dislocation stair-rod sessile ($\delta\beta$) au joint de macle et une dislocation de Lomer glissile dans la seconde partie du cristal T (figure III.8), suivant la réaction :

$$\begin{array}{ccccccccc} \frac{1}{6}\left[\bar{2}\bar{1}\bar{1}\right] & + & \frac{1}{6}\left[\bar{2}\bar{1}\bar{1}\right] & \rightarrow & \frac{1}{3}\left[\bar{2}\bar{1}\bar{1}\right] & \rightarrow & \frac{1}{6}\left[0\bar{1}\bar{1}\right] & + & \frac{1}{2}\left[011\right]^T, \\ \beta D & + & \beta D & \rightarrow & 2\,\beta D & \rightarrow & \delta\beta & + & (DB)^T. \end{array} \tag{III.1}$$

Cette réaction est énergétiquement favorable selon le critère de Frank [8] : $b^2_{2\beta D} > (b^2_{\delta\beta} + b^2_{DB})$.

8. J. Bonneville and J.Douin mettent en garde cependant sur la nécessité de prendre en compte

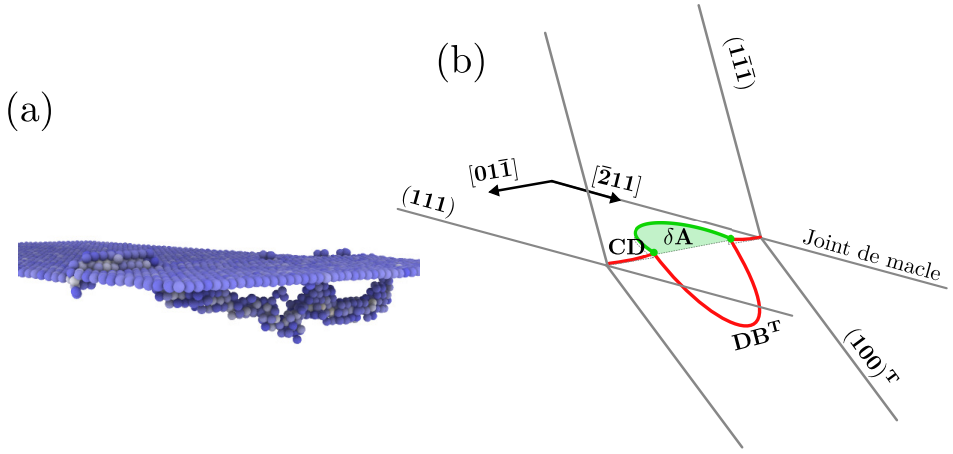

Figure III.7 – (a) Vue 3D et (b) schématique du mécanisme $L_{\langle 110\rangle}$. Sur le schéma les lignes rouges correspondent aux dislocations parfaites et les lignes vertes aux dislocations partielles de Shockley. Les défauts d'empilement correspondent aux zones colorées en vert clair.

Ce mécanisme est noté $L_{2\langle 112\rangle}$.

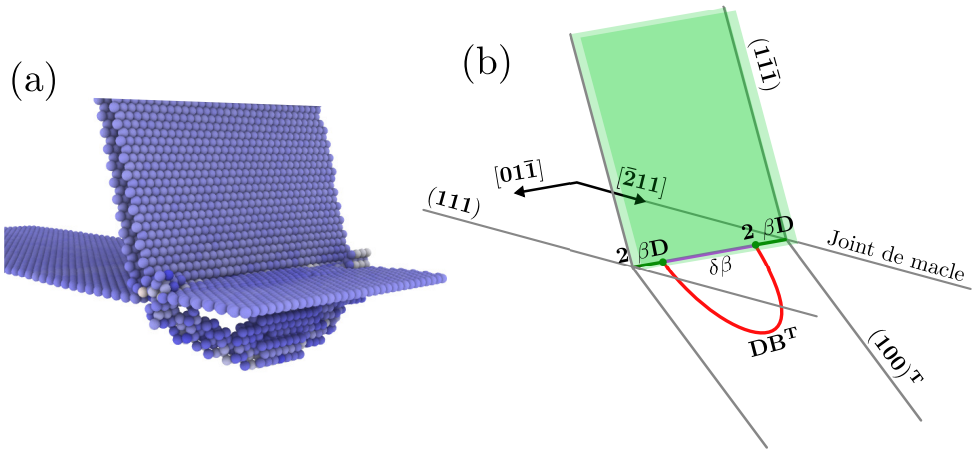

Figure III.8 – (a) Vue 3D et (b) schématique du mécanisme $L_{2\langle 112\rangle}$. Sur le schéma les lignes rouges correspondent aux dislocations parfaites, les lignes vertes aux dislocations partielles de Shockley et la ligne violette à la dislocation stair-rod. Les défauts d'empilement correspondent aux zones colorées en vert clair.

l'énergie de cœur associée à la dislocation de Lomer, qui est à priori plus importante que pour une dislocation parfaite $\langle 110\rangle(111)$ [32].

Notons qu'avec les orientations choisies, le facteur de Schmid est très élevé ($s = 0,47$) pour le système de glissement $\langle 110 \rangle (001)$, favorisant le glissement de la dislocation de Lomer (sous forme de demi-boucle) dans notre système.

III.2.2.2 Formation de verrous de Lomer-Cottrell

Lorsque la dislocation de Lomer glisse sous forme de demi-boucle sur son plan de glissement (100), plusieurs mécanismes sont susceptibles de se produire. Le premier correspond à la dissociation de la dislocation de Lomer en verrou de Lomer-Cottrell, observé par exemple sur la figure III.5.v. Lorsque la demi-boucle de Lomer s'étend, une large portion de la dislocation devient purement coin avec la ligne de la dislocation alignée suivant la direction $[01\bar{1}]$. Cette direction correspond également à l'intersection de deux plans $\{111\}$ (ici les plans (111) et $(\bar{1}11)$, figure III.9.a), permettant à la dislocation de Lomer de se dissocier et former un verrou de Lomer-Cottrell [33, 91].

La formation du verrou s'effectue en deux temps. La première étape consiste en la dissociation de la dislocation de Lomer pour former une dislocation partielle de Frank βB purement sessile et une dislocation partielle de Shockley $D\beta$ glissile dans le plan $(\bar{1}11)$ (figure III.9.b). La réaction est alors la suivante :

$$\begin{array}{ccccc} \frac{1}{2}[011] & \rightarrow & \frac{1}{6}[211] & + & \frac{1}{3}\left[\bar{1}11\right], \\ DB & \rightarrow & D\beta & + & \beta B. \end{array} \tag{III.2}$$

Puis dans un second temps, la dislocation partielle de Frank βB se dissocie en une dislocation partielle de Shockley δB et une dislocation stair-rod $\beta\delta$ (figure III.9.c), suivant l'équation :

$$\begin{array}{ccccc} \frac{1}{3}\left[\bar{1}11\right] & \rightarrow & \frac{1}{6}\left[\bar{2}11\right] & + & \frac{1}{6}[011], \\ \beta B & \rightarrow & \delta B & + & \beta\delta. \end{array} \tag{III.3}$$

Après ces deux réactions de dissociation, une dislocation stair-rod et deux dislocations partielles de Shockley chacune dans un plan de glissement $\{111\}$ différent (ici les plans (111) et $(\bar{1}11)$) sont formées, constituant un verrou de Lomer-Cottrell.

La dislocation stair-rod étant sessile, les verrous de Lomer-Cottrell sont connus pour agir comme des obstacles au mouvement des dislocations. Ils entraînent alors un durcissement du matériau, qui selon Wu *et al*, est également à l'origine des effets de durcissement

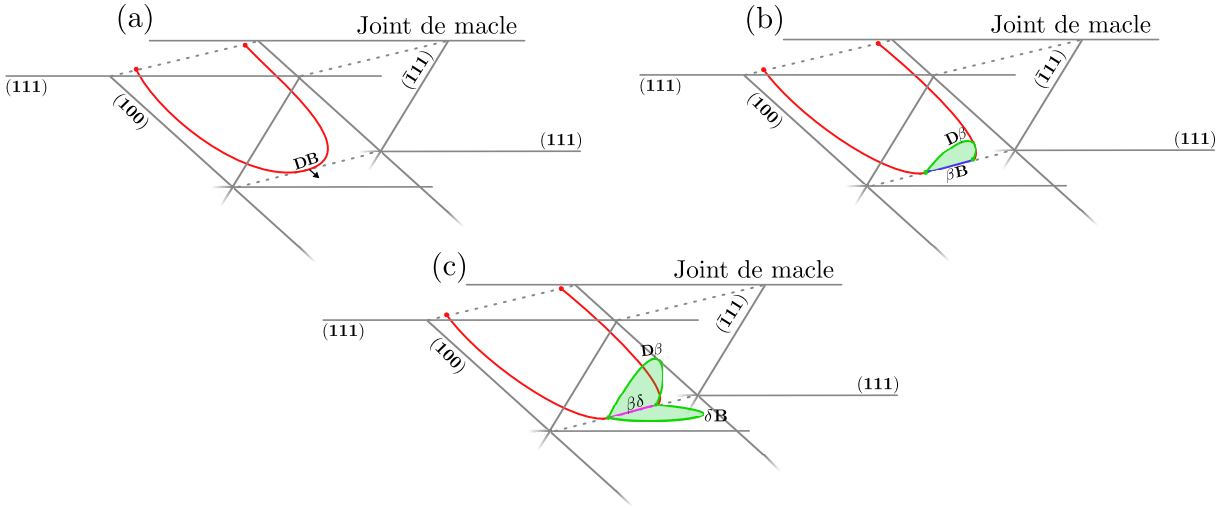

Figure III.9 – Schéma de la dissociation d'une dislocation de Lomer en verrou de Lomer-Cottrell. Sur le schéma les lignes rouges correspondent aux dislocations parfaites, les lignes vertes aux dislocations partielles de Shockley, la ligne violette à la dislocation stair-rod et la ligne bleue à la dislocation partielle de Franck. Les défauts d'empilement correspondent aux zones colorées en vert clair.

observés dans les matériaux nano-maclés [33, 91].

III.2.2.3 Source potentielle de macle

Nous avons vu précédemment que les dislocations de Lomer pouvaient être à l'origine de la nucléation de macles. Dans cette section, nous allons décrire deux mécanismes, l'un aboutissant à la formation directe d'une partielle de Shockley et l'autre de manière indirecte.

Nucléation directe d'une dislocation partielle de Shockley à partir d'une dislocation de Lomer.

Pour rappel, lors du glissement de la dislocation de Lomer, une portion purement coin de cette dernière est alignée suivant une direction $[01\bar{1}]$, contenue à la fois dans le plan $(\bar{1}11)$ et dans le plan (111) (figure III.10.a). Cette configuration permet la dissociation de la dislocation de Lomer suivant, dans un premier temps, la réaction III.2 (figure III.10.b).

La dislocation partielle de Shockley (βD) et la portion non dissociée de la dislocation de Lomer glissent alors dans leurs plans respectifs ($(\bar{1}11)$ et (100)), tandis que la dislocation

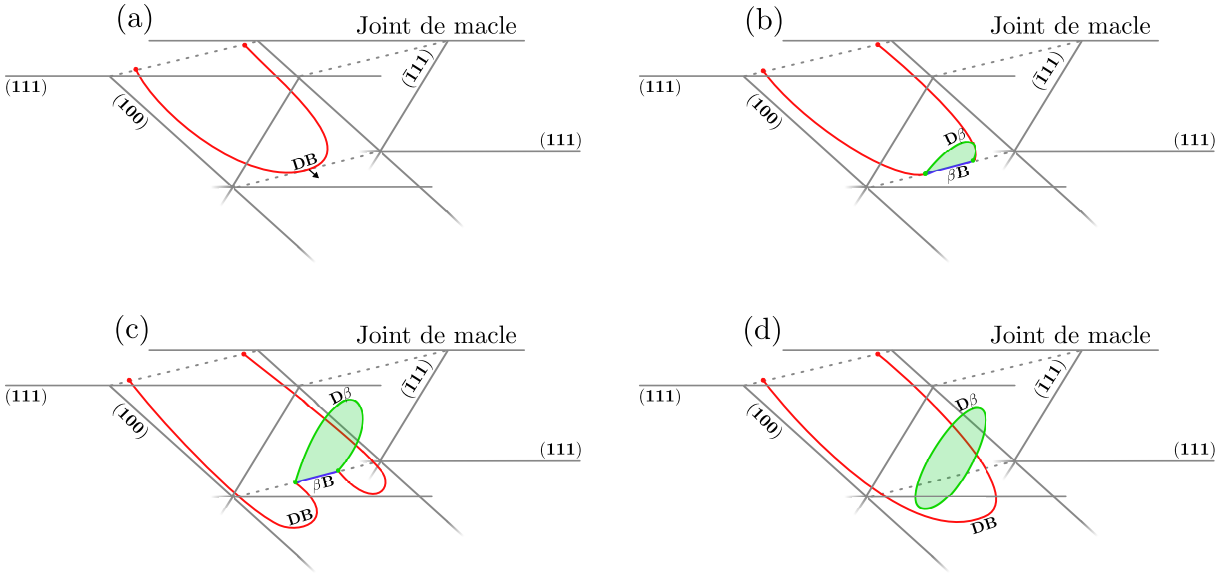

Figure III.10 – Schéma de la formation d'une boucle de dislocation partielle isolée à partir d'une dislocation de Lomer. (b) et (c) Première étape de la dissociation d'une dislocation de Lomer en verrou de Lomer-Cottrell. Sur le schéma les lignes rouges correspondent aux dislocations parfaites, les lignes vertes aux dislocations partielles de Shockley et la ligne bleue à la dislocation partielle de Franck. Les défauts d'empilement correspondent aux zones colorées en vert clair.

partielle de Frank ($B\beta$) est purement sessile (figure III.10.b). Ces trois dislocations se retrouvent épinglées aux deux nœuds triples, formés lors de la dissociation partielle de la dislocation de Lomer. Ces deux nœuds ne sont mobiles que suivant la direction $[01\bar{1}]$. Leur déplacement suit alors l'expansion des segments de la dislocation de Lomer et de la partielle de Shockley. Dans un premier temps, ces deux nœuds s'éloignent l'un de l'autre, augmentant ainsi la taille du segment de la dislocation partielle de Frank $B\beta$ (figure III.10.c). Puis, lorsqu'une portion de la dislocation de Lomer proche de ces nœuds, devient presque vis, la distance entre les deux nœuds se réduit et la taille du segment de la partielle de Frank diminue jusqu'à sa suppression. À la fin de ce mécanisme la dislocation de Lomer est alors complètement continue et une boucle isolée de dislocation partielle de Shockley a été formée (figure III.10.d). Dans ce mécanisme, la dissociation de la dislocation de Lomer en verrou de Lomer-Cottrell est incomplète, seule la première étape de la dissociation (réaction III.2) a lieu.

Ce mécanisme est susceptible de se produire à plusieurs reprises, la dislocation de

Lomer étant reformée à chaque fois. Il est alors possible, si ce mécanisme opère sur des plans adjacents, de former directement une macle.

Nucléation indirecte d'une dislocation partielle de Shockley à partir d'une dislocation de Lomer.

Si dans le cas précédent la dissociation de la dislocation de Lomer en verrou de Lomer-Cottrell est incomplète, il se peut également que la dissociation n'ait pas lieu du tout comme observé sur les figures III.5.ii et III.5.iii. Dans ce cas, elle traverse le cristal jusqu'à ce qu'elle arrive à la surface. Étant une dislocation parfaite du réseau CFC, elle laisse en surface une marche d'une couche atomique de hauteur. Cette dernière est alors orientée suivant une direction $\left[01\bar{1}\right]$, correspondant à l'intersection du plan de glissement de la dislocation de la Lomer (100) et de la surface (111) du film mince (figure III.11.a et III.11.b).

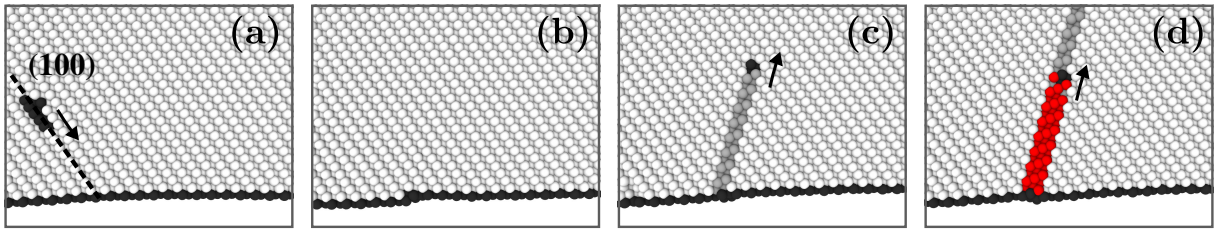

Figure III.11 – Vue en coupe de la nucléation d'une macle depuis la marche de surface laissé par une dislocation de Lomer. (a) et (b) Arrivée de la dislocation de Lomer à la surface et formation d'une marche monoatomique. (c) Nucléation d'une dislocation partielle de Shockley depuis la marche de surface. (d) Formation d'une macle via la nucléation d'une seconde dislocation partielle de Shockley sur un plan adjacent à la première. Le code couleur utilisé ici pour les atomes est le même que celui décrit pour la figure III.2.

Cette marche de surface est similaire à celle introduite initialement dans nos systèmes et elle constitue donc un site favorable à la nucléation de nouvelles dislocations. Sous contrainte, une dislocation partielle de Shockley βD est nucléée depuis cette marche (figure III.11.c) et une macle peut être formée suite à la nucléation d'autres dislocations partielles de Shockley sur des plans adjacents (figure III.11.d et figure III.5.iii).

III.3 Multiples marches de surface

Jusqu'ici, nous avons considéré un seul défaut de surface activable sous contrainte. Nous allons maintenant faire varier la densité de marches de surface introduites à la surface du film, afin de mettre en évidence son influence sur le maclage.

III.3.1 Influence sur la nucléation de dislocations

L'introduction de plusieurs défauts à la surface du film entraîne une modification des premiers événements de plasticité observés.

On constate tout d'abord une légère augmentation de la limite d'élasticité moyenne avec la densité de marches de surface (tableau III.1 et figure III.12). Il apparaît que lorsque des marches de surface sont très proches, les champs de déplacement en surface se superposent, et on observe un étalement des contraintes locales proches d'une marche. Ceci expliquerait la légère augmentation de la limite d'élasticité.

D'autre part, différents mécanismes de nucléation sont observés. Les marches de surface ne sont pas toutes activées non seulement car la moitié d'entre elles correspondent à des marches dont la géométrie n'est pas favorable à la nucléation de dislocations en compression (cf section III.1.2), mais aussi à cause d'une contrainte locale plus faible près de certaines des marches activables. Lorsque la marche de surface est activée, elle engendre toujours dans un premier temps la nucléation d'une première dislocation partielle de Shockley. Deux mécanismes sont alors possibles :

N1 : Le plus fréquemment observé est la formation d'une macle depuis cette marche via la nucléation de dislocations partielles de Shockley sur des plans adjacents

$N_{dipôle}$	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
L_e (%)	4,14	4,14	4,16	4,25	4,25	4,35	4,33	4,39	4,43	4,47
L_e JDM (%)	4,15	4,11	4,17	4,23	4,25	4,32	4,33	4,44	4,35	4,37

Tableau III.1 – Évolution de la limite d'élasticité moyenne calculée sur toutes les simulations effectuées dans les mêmes conditions avec différentes distributions initiales des vitesses, en fonction du nombre de dipôles de marches de surface. L_e : limite d'élasticité pour un film mince sans joint de macle préexistant. L_e JDM : limite d'élasticité pour un film mince avec un joint de macle préexistant.

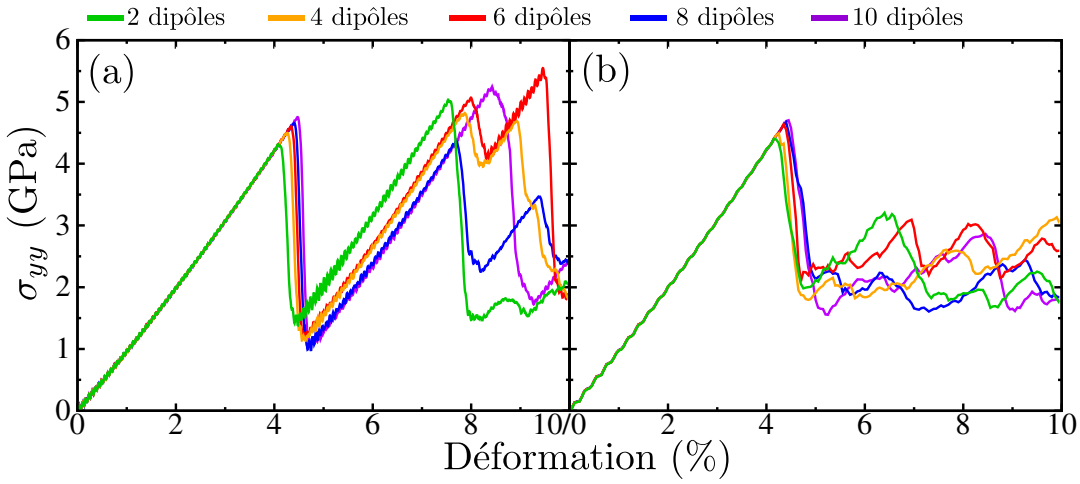

Figure III.12 – Courbes contrainte-déformation pour un film mince (a) contenant ou (b) ne contenant pas un joint de macle initial. Ici, plusieurs dipôles de marche sont introduits sur l'une des deux surfaces.

(figure III.13.a).

N2 : La nucléation d'une dislocation partielle de queue ($C\beta$ ou $A\beta$) après la nucléation de la première dislocation partielle de Shockley est possible. Dans ce cas, la marche de surface est supprimée et plus aucune dislocation ne peut être formée à partir de ce site (figure III.13.b). Ce mécanisme se produit moins souvent, mais est observé dans certains tests.

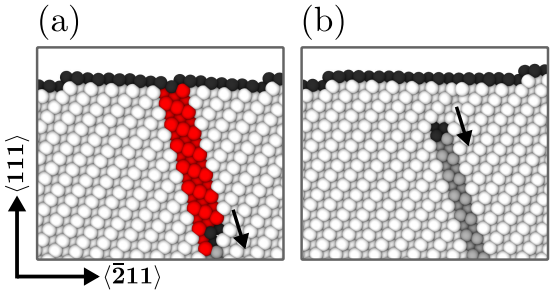

Figure III.13 – Mécanismes possibles après la nucléation d'une première dislocation partielle de Shockley (vue en coupe). (a) Formation d'une macle. (b) Nucléation de la dislocation partielle de queue. (c) Arrêt puis retour de la première dislocation partielle de Shockley à la surface. Le code couleur utilisé ici pour les atomes est le même que celui décrit pour la figure III.2.

III.3.2 Influence d'un joint de macle préexistant

Les mécanismes de nucléation, décrits dans la partie précédente, sont susceptibles d'engendrer par la suite différents scénarios.

Configuration sans joint de macle.
Dans ce cas, le mécanisme N1 induit toujours la formation d'une macle via le mécanisme de rebond, comme décrit dans la section III.1.2. Lorsque le mécanisme N2 intervient, les deux partielles peuvent se recombiner (ou non) en une dislocation parfaite (CD ou AD en fonction de la partielle de queue considérée). Cette dernière forme à la seconde surface une marche orientée suivant la direction $\left[01\bar{1}\right]$. Cependant du fait de sa géométrie cette marche ne permet pas d'induire la nucléation d'une nouvelle dislocation.

Configuration avec joint de macle.
Lorsqu'un joint de macle est introduit dans le système, le mécanisme de formation des dislocations de Lomer va dépendre du type de dislocations interagissant avec le joint de macle. Lorsque le mécanisme N1 opère au préalable, la dislocation de Lomer est formée à partir du mécanisme $L_{2\langle 112\rangle}$, comme vu dans la partie III.2.2.1. Mais le mécanisme N2 est également susceptible de se produire. Dans ce cas, les deux partielles (de tête et de queue) sont stoppées au joint de macle cohérent et se recombinent en une dislocation parfaite (CD ou AD) ; la dislocation de Lomer est alors ensuite formée via le mécanisme $L_{\langle 110\rangle}$.

Taille et nombres de macles formées.
Sur la figure III.14, nous avons reporté la taille moyenne des macles formées (calculée sur cinq simulations effectuées dans les mêmes conditions, figure III.14.a), ainsi que le nombre de macles nucléées (figure III.14.b), après 2% de déformation plastique, en fonction de la distance entre deux marches de surface. Pour un film mince sans joint de macle préexistant, les courbes jaunes montrent clairement que la taille moyenne des macles formées décroît lorsque la densité de marches augmente, alors que le nombre de macles nucléées augmente. Cette corrélation peut être rationalisée à partir des courbes de contrainte-déformation sur la figure III.12. Sur ces courbes, on peut constater que la chute de contrainte associée au premier mécanisme de maclage (rebond) est presque la même quelle que soit la densité de marches de surface. Cette contrainte étant relâchée essentiellement par maclage, si plus de macles sont formées alors leur taille sera nécessairement plus faible. Dans cette

configuration (sans joint de macle), la taille des macles formées est donc directement corrélée à la densité de macles formées, et donc à l'état de surface du film mince.

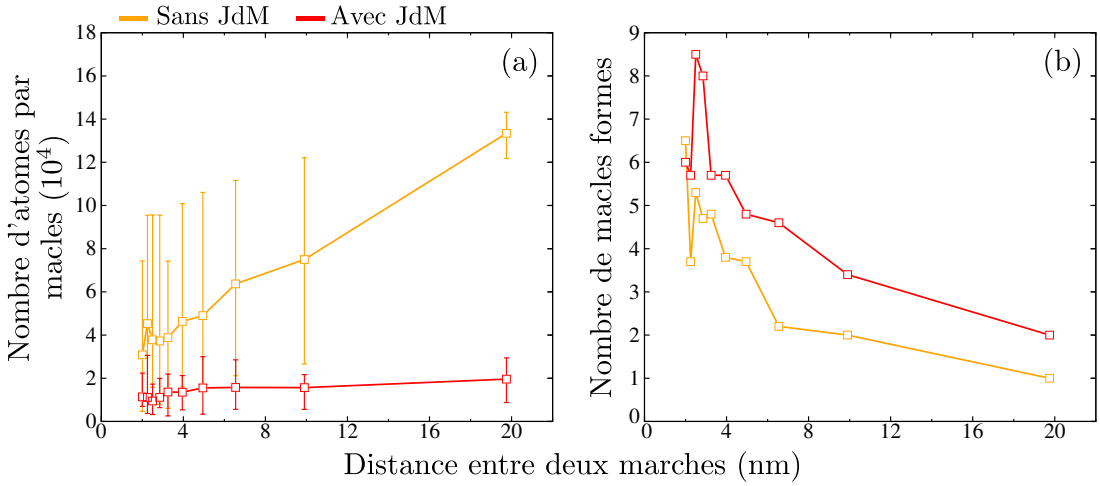

Figure III.14 – (a) Évolution du nombre moyen d'atomes dans une macle et (b) du nombre de macles formées en fonction de la distance entre deux marches introduites à la surface, pour un film mince contenant ou non un joint de macle initial (JdM). Ces quantités ont été calculées après 2% de déformation plastique et à partir de la moyenne sur toutes les simulations réalisées dans les mêmes conditions. Les barres d'erreur correspondent aux valeurs minimales et maximales de la taille des macles obtenues pour des simulations dans les mêmes conditions.

Lorsqu'un joint de macle cohérent est introduit dans le système le nombre de macles nucléées augmente avec la densité de marches de surfaces (courbe rouge sur la figure III.14.b). On constate de plus la formation d'un plus grand nombre de macles que dans la configuration sans joint de macle préexistant, et ce quel que soit le nombre de marches introduites à la surface. La présence de dislocations de Lomer (à l'origine de la nucléation de macles) est principalement responsable de l'augmentation du nombre de macles. Cependant, le nombre de macles formées chute brutalement lorsque la densité de marches de surface devient grande. Par ailleurs, la différence majeure entre le cas avec et sans joint de macle initial est qu'en présence d'un joint de macle préexistant, la taille moyenne des macles formées n'est que très légèrement affectée par la densité de marches de surface et est bien plus faible (courbe rouge sur la figure III.14.a). Ceci est lié au fait que le joint de macle cohérent présent initialement, ralentit voire stoppe l'extension des macles formées. Ainsi l'introduction d'un joint de macle cohérent peut permettre de contrôler la taille des macles

formées.

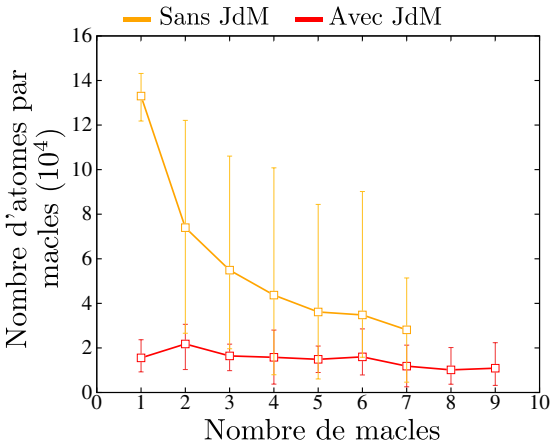

Figure III.15 – Évolution du nombre moyen d'atomes dans une macle par rapport au nombre de macles formées dans le film, et ce indépendamment de la densité de défauts introduits à la surface, pour un système contenant ou non un joint de macle initial (JdM). Les barres d'erreur correspondent aux valeurs minimales et maximales de la taille des macles obtenues.

Ce point est également souligné par la figure III.15, dans laquelle la taille moyenne des macles a été tracée en fonction du nombre de macles nucléées, indépendamment de la densité de marches de surface. Dans le cas sans joint de macle, la taille moyenne des macles décroît lorsque le nombre de macles formées augmente (courbe jaune). En revanche, lorsqu'un joint de macle cohérent est introduit, la taille des macles est presque constante quel que soit le nombre de macles formées. Ceci peut s'expliquer par le fait qu'en présence d'un joint de macle, la contrainte emmagasinée élastiquement n'est pas uniquement relâchée par maclage, d'autres mécanismes de plasticité étant également en jeu, notamment la formation de dislocations de Lomer. Ces mécanismes participent donc à la relaxation d'une partie de cette contrainte, qui n'est plus disponible pour étendre les macles.

III.4 Discussion

III.4.1 Autres matériaux CFC

De manière générale, la plasticité dans les matériaux CFC est très liée aux énergies de défaut d'empilement du matériau. Nous avons donc effectué quelques tests pour le cuivre et l'argent, lesquels possèdent des énergies de défaut d'empilement très différentes de l'aluminium, afin de comparer les résultats.

III.4.1.1 Comparaison

De manière générale, la limite d'élasticité obtenue est plus faible dans le cuivre. En considérant une marche de surface comme site de nucléation d'une dislocation partielle de Shockley, la limite élastique est atteinte pour une déformation moyenne de 3,2% dans le cuivre et 3,3% dans l'argent [9] (figure III.16.a).

Configuration sans joint de macle préexistant : Dans le cuivre et l'argent, les premiers mécanismes de plasticité sont similaires. Dans les deux cas, la dislocation partielle de Shockley (βD) formée depuis la marche de surface traverse tout le cristal jusqu'à la seconde surface à ceux observés dans l'aluminium. Elle entraîne ensuite, via un mécanisme de rebond, la nucléation d'une seconde dislocation partielle de Shockley ($D\beta$) sur un plan ($\bar{1}11$) adjacent, formant ainsi une macle (figures III.17.a.i et III.17.b.i). Cette partielle de macle traverse le film et induit à la première surface (contenant le dipôle de marches) la nucléation d'une troisième dislocation partielle de macle (βD) sur le joint de macle opposé (voir la flèche pleine sur les figures III.17.a.ii et III.17.b.ii). Contrairement au mécanisme de rebond où la seconde partielle macle est formée sur le même joint de macle (voir la flèche en pointillé sur les figures III.17.a.ii et III.17.b.ii), ce mécanisme de maclage fait intervenir les deux joints de macle. Nous l'avons nommé mécanisme de «pseudo-rebond». La macle continue à croître suivant ce mécanisme de pseudo-rebond jusqu'à ce qu'il s'arrête spontanément, pour une déformation moyenne de 3,8% dans le cuivre et 4,7% dans l'argent (ou respectivement 0,6% et 1,4% de déformation plastique) [10].

9. Pour rappel, la limite élastique obtenue dans la même configuration est pour une déformation moyenne de 4,1% dans l'aluminium.

10. Pour rappel, dans l'aluminium le maclage par rebond s'arrête en moyenne pour une déformation plastique de 0,4%.

Sur les courbes contrainte-déformation (figure III.16.a), cette étape correspond à la chute de contrainte observée sur la courbe jaune (cuivre) et au plateau sur la courbe violette (argent). On voit ici que dans l'argent, le maclage par pseudo-rebond suffit à peine à relâcher la contrainte dans le système, qui reste constante durant l'extension de la macle. Sur la figure III.16.b, ce mécanisme de nucléation et d'extension de la macle se caractérise par une augmentation du volume total de macles dans le film. La vitesse de maclage peut être déterminée à partir de la taille de la macle après le mécanisme de «pseudo-rebond» (ou rebond pour l'aluminium) et l'intervalle de déformation pour lequel ce mécanisme opère. On constate que la nature du matériau joue un rôle important sur la vitesse de maclage qui est en moyenne de 0,30 nm.ps^{-1} pour le cuivre et 0,17 nm.ps^{-1} pour l'argent. Dans l'aluminium pour lequel le mécanisme de maclage est légèrement différent (mécanisme de rebond), la vitesse de maclage est de 1,40 nm.ps^{-1}. Dans nos systèmes, deux paramètres peuvent influer sur la vitesse de maclage, la mobilité des dislocations et surtout l'énergie d'activation de la nucléation des dislocations de partielles de macle. Dans l'argent, il semble donc que la mobilité des dislocations partielles de macle soit plus faible et/ou l'énergie d'activation de la nucléation de ces dislocations soit plus grande, par rapport au cuivre et l'aluminium.

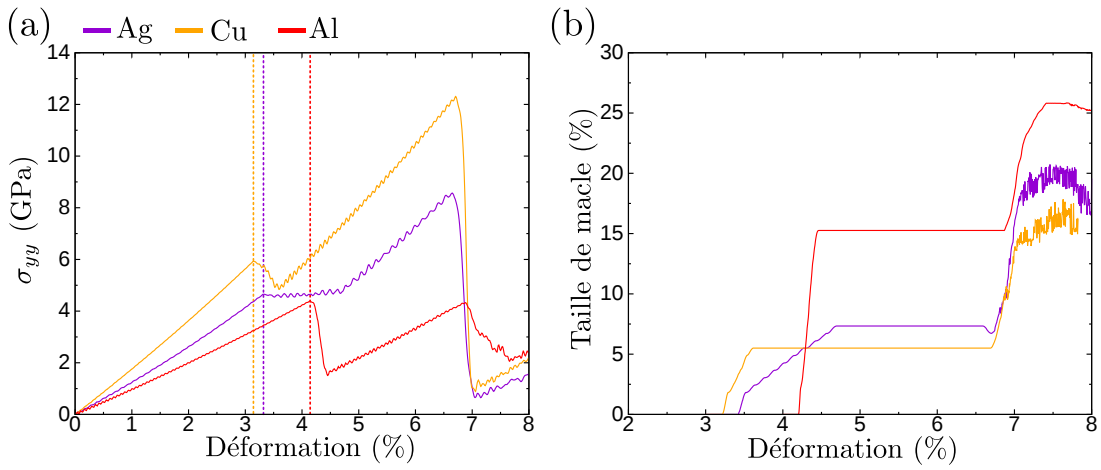

Figure III.16 – (a) Courbes contrainte-déformation représentatives d'un film mince parfait de cuivre, d'argent et d'aluminium contenant un dipôle de marches de surface, sous chargement en compression. Les lignes en pointillé indiquent la limite d'élasticité. (b) Évolution du volume total de macles dans le système au cours de la déformation.

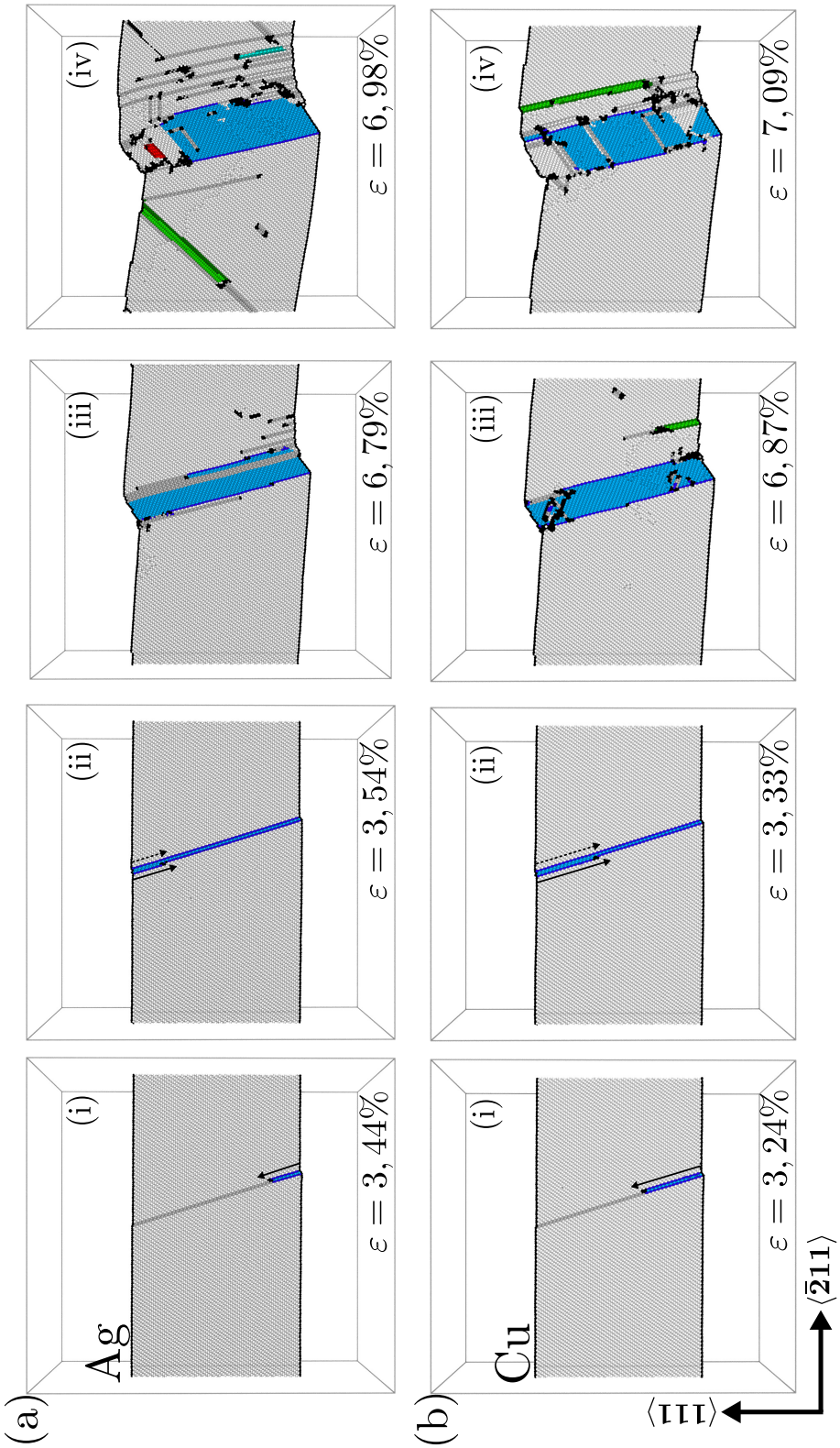

Figure III.17 – Vue en coupe de la nucléation et de l'extension de macles dans un film mince parfait (a) d'argent et (b) de cuivre, sous un chargement en compression. (i) Mécanisme de rebond et (ii) mécanisme de pseudo-rebond indiqué par la flèche noire. La flèche en pointillé noire indique le glissement pour un mécanisme de rebond, non observé ici. (iii) et (iv) Reprise de la plasticité. Le code couleur utilisé ici pour les atomes est le même que celui décrit pour la figure III.2.

La plasticité reprend ensuite pour une déformation appliquée moyenne de 6,8% pour le cuivre et 6,6% pour l'argent. Selon le matériau considéré, les mécanismes de plasticité diffèrent alors.

Dans l'argent, plusieurs dislocations partielles de Shockley ($D\beta$) sont formées simultanément depuis l'une des surfaces (ici la surface du bas sur la figure III.17.a.iii). Certaines de ces dislocations participent à l'extension de la macle, d'autres entraînent la formation de plusieurs petites macles et des défauts d'empilement isolés. D'autres systèmes de glissement sont également activés tels que des dislocations parfaites dans les plans $(1\bar{1}1)$ et $(11\bar{1})$ (figure III.17.a.iv). On peut également constater, la formation d'une macle dans les plans $(11\bar{1})$ (en vert sur la figure III.17.a.iv).

Pour le cuivre, la plasticité reprend avec la nucléation simultanée de plusieurs partielles de macle depuis les surfaces, participant à l'extension de la macle déjà créée (figure III.17.b.iii). Une nouvelle macle est également formée à partir de la surface inférieure (en vert sur les figures III.17.b.iii et III.17.b.iv) via la nucléation simultanée de plusieurs dislocations partielles de Shockley ($D\beta$) sur des plans $(\bar{1}11)$ adjacents. On constate également, à plus forte déformation, la nucléation de plusieurs dislocations partielles de Shockley $(B\delta)^T$ au sein de la première macle formée (figure III.17.b.iv). Ces partielles entraînent dans certains cas la formation de macles secondaires.

Configuration avec joint de macle préexistant : Lorsqu'un joint de macle cohérent est introduit dans le film de cuivre ou d'argent, la dislocation partielle de Shockley (βD) formée depuis la marche de surface glisse dans le film jusqu'à être arrêtée (figures III.18.a.i et III.18.b.i). Cet événement correspond sur les courbes contrainte-déformation à un léger décrochement indiqué par les lignes en pointillé jaune et violet (figure III.19.a). Le système est alors bloqué dans cette configuration, et la contrainte dans le système recommence à croître. Ceci est donc très différent de ce qui a put être observés dans une configuration similaire pour l'aluminium, une macle étant alors rapidement formée depuis la surface (figure III.5.ii).

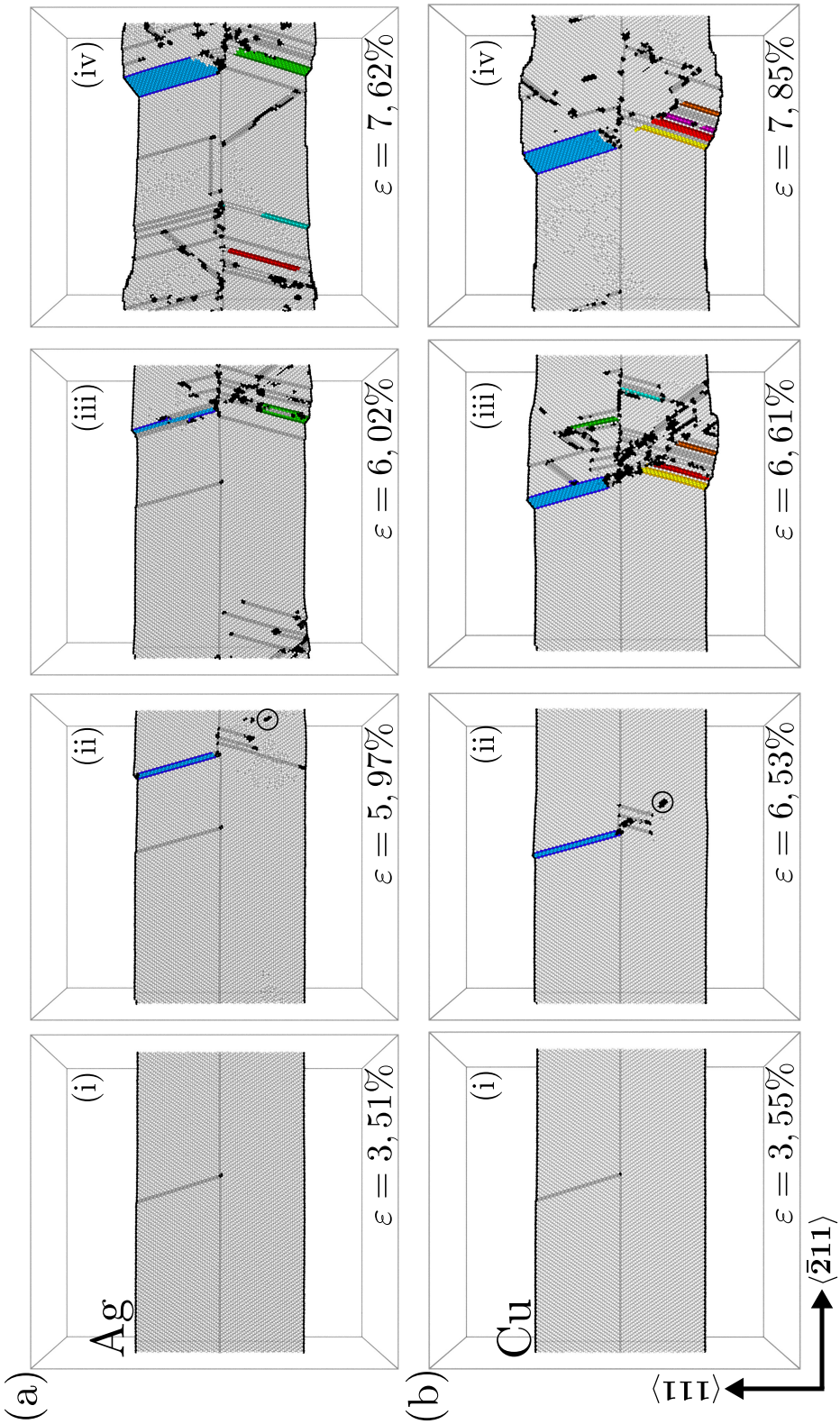

Figure III.18 – Vue en coupe de la nucléation et de l'extension de macles dans un film mince (a) d'argent et (b) de cuivre contenant un joint de macle initial, sous un chargement en compression. (i) Nucléation d'une première dislocation partielle de Shockley. (ii) Reprise de la plasticité et formation de dislocations de Lomer indiquées par les cercles noirs. (iii) et (iv) Formation de macles et de dislocations partielles isolées, à partir de la dissociation partielle de la dislocation de Lomer. Le code couleur utilisé ici pour les atomes est le même que celui décrit pour la figure III.2.

La plasticité reprend ensuite pour une déformation appliquée moyenne de 6,3% pour le cuivre et de 5,8% pour l'argent (figure III.19). Là encore, le mécanisme est légèrement différent selon le matériau.

Dans l'argent, le défaut d'empilement intrinsèque laissé par la première dislocation partielle de Shockley n'est pas un site de reprise de la plasticité. En effet un site quelconque de l'une des deux surfaces est alors activé, avec la nucléation de plusieurs partielles de Shockley sur des plans adjacents formant ainsi une macle (en bleu sur la figure III.18.ii). L'interaction de la macle formée avec le joint de macle cohérent entraîne, suivant le mécanisme $L_{2\langle 112\rangle}$, la formation d'une dislocation de Lomer (figure III.18.a.ii), elle-même à l'origine d'un grand nombre de partielles de Shockley au cours de son glissement dans la seconde partie du film, selon le mécanisme décrit dans la section III.2.2.3. Lorsqu'elles sont nuclées sur des plans adjacents, ces partielles de Shockley forment une macle (macles verte et rouge sur les figures III.18.a.iii et III.18.a.iv). Plusieurs partielles de Shockley isolées sont également formées depuis les surfaces (figures III.18.a.iii et III.18.a.iv).

Dans le cuivre, la plasticité reprend depuis la surface sur des plans adjacents à au défaut d'empilement intrinsèque laissé par la première dislocation partielle de Shockley, formant ainsi une macle. L'interaction de la macle formée avec le joint de macle cohérent entraîne, tout comme dans l'argent, la formation d'une dislocation de Lomer (figure III.18.b.ii). Ici également la dissociation partielle de la dislocation de Lomer conduit à la formation de plusieurs macles (en rouge, jaune, violet et orange sur les figures III.18.b.iii et III.18.b.iv). À la différence de l'argent, les dislocations partielles formées résultent essentiellement de la dislocation de Lomer, très peu de dislocations partielles de Shockley isolées étant observées.

Enfin, un dernier point à souligner par rapport à l'aluminium est l'occurrence des mécanismes associés à la dislocation de Lomer. Pour rappel dans l'aluminium, trois mécanismes ont été identifiés : la formation d'un verrou de Lomer-Cottrell (section III.2.2.2, la nucléation d'une boucle de dislocation partielle de Shockley à partir de la dislocation de Lomer (section III.2.2.3) et la traversée complète de la dislocation de Lomer dans le film sans se dissocier (section III.2.2.3). Dans l'aluminium, les trois mécanismes sont observés, les deux derniers étant les plus fréquents. Dans l'argent et le cuivre, seul le deuxième mécanisme se produit, et plusieurs fois lors de la traversée de la dislocation de Lomer dans le film. Dans certains cas, lorsque ce mécanisme opère sur des plans adjacents, la dislocation de Lomer est directement à l'origine de la formation d'une macle.

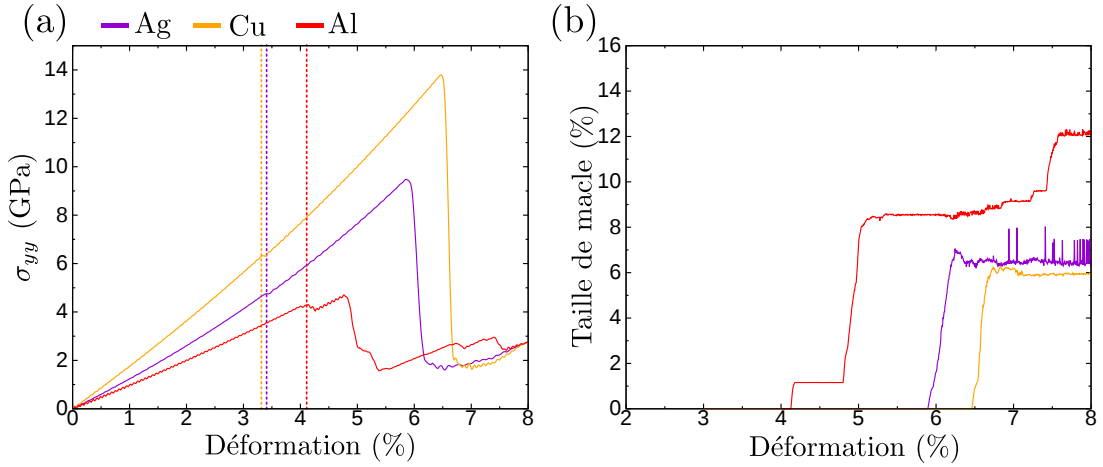

Figure III.19 – (a) Courbes contrainte-déformation représentatives d'un film mince de cuivre, d'argent et d'aluminium, contenant un dipôle de marches de surface et un joint de macle en son volume, sous chargement en compression. Les lignes en pointillé indiquent la limite d'élasticité. (b) Évolution du volume total de macles dans le système au cours de la déformation.

III.4.1.2 Maclabilité

En comparant ces trois matériaux (Ag, Cu et Al), on constate que la formation et l'extension de macles semblent moins favorables dans le cuivre et encore moins dans l'argent par rapport à l'aluminium (figure III.19.b et III.19.b).

De manière générale, nous avons également pu remarquer que la formation de dislocations partielles de Shockley isolées semble plus favorisée par rapport au maclage dans le cuivre et l'argent que dans l'aluminium. Pour mettre en évidence ce phénomène, on a introduit deux grandeurs :

- P_{macle} la proportion totale d'atomes appartenant à une macle (courbe rouge sur la figure III.20),
- P_{ISF} la proportion d'atomes appartenant à un défaut d'empilement intrinsèque (sur la figure III.20).

Grâce à ces deux grandeurs, il est possible de faire la distinction entre une dislocation partielle de Shockley isolée dans le cristal et les partielles de macle qui contribuent au maclage. Sur la figure III.20, on a reporté ces deux grandeurs au cours de la déformation d'un film mince contenant un joint de macle, pour les trois matériaux considérés.

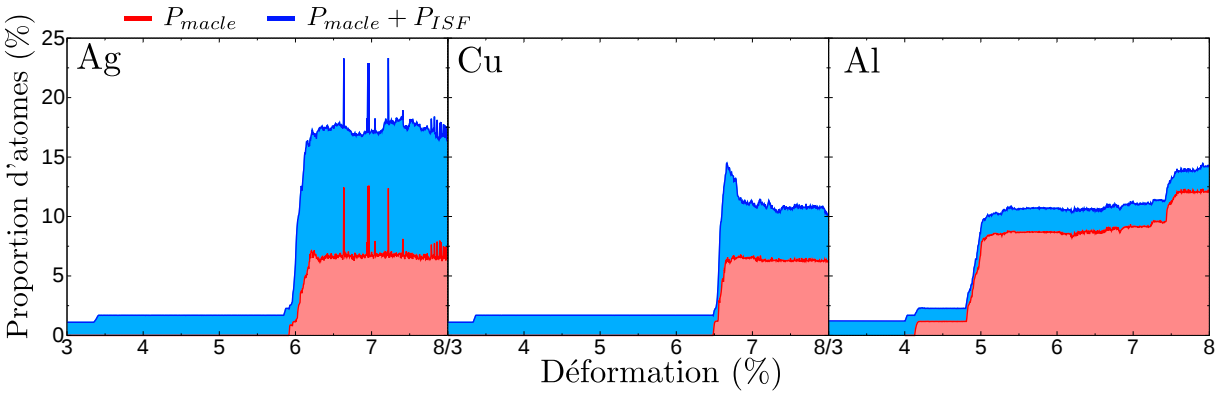

Figure III.20 – Évolution du pourcentage d'atomes appartenant à un défaut d'empilement intrinsèque (en bleu) superposé au pourcentage d'atomes appartenant à une macle (en rouge) en fonction de la déformation appliquée, pour un film mince d'argent, de cuivre et d'aluminium contenant un joint de macle et un dipôle de marches de surface.

Nous avons également suivi l'évolution du rapport P_{macle}/P_{ISF} (équivalent au rapport du nombre d'atomes dans une macle et dans un défaut d'empilement intrinsèque $n^{at}_{macle}/n^{at}_{ISF}$) au cours de la déformation. Sur les figures III.20 et III.21, on voit très clairement que l'aluminium est le matériau pour lequel le maclage est le plus important par rapport à la formation de partielles isolées. Viennent ensuite le cuivre, et enfin l'argent. Sur la figure III.21, on peut également voir que seuls le cuivre et l'aluminium ont un rapport P_{macle}/P_{ISF} qui devient supérieur à 1, alors que pour l'argent ce rapport reste proche de 0,5. L'argent est donc ici peu susceptible de se déformer par maclage mécanique.

Ce constat va à l'encontre de ce qui est prédit par les paramètres de maclabilité, que nous avons définis dans le chapitre I et calculés dans le chapitre II. Pour rappel, ces paramètres indiquent que l'argent est le matériau le plus favorable au maclage, suivi du cuivre et enfin de l'aluminium. Dans notre cas, ces paramètres ne semblent donc pas adaptés. En effet, les orientations choisies et la petite taille de nos systèmes sont telles que la nucléation de dislocations partielles de queue ou de dislocations parfaites n'est pas favorisée. Les paramètres de maclabilité (voir le chapitre I page 17 et le chapitre II page 49) basés sur la compétition entre le maclage et le glissement pur (dislocations parfaites), ne fonctionnent donc pas. Pour nos systèmes, les mécanismes de plasticité en compétition sont la nucléation de dislocations partielles de Shockley isolées et le maclage mécanique.

Les deux grandeurs énergétiques associées à ces deux mécanismes sont alors γ_{USF}, la

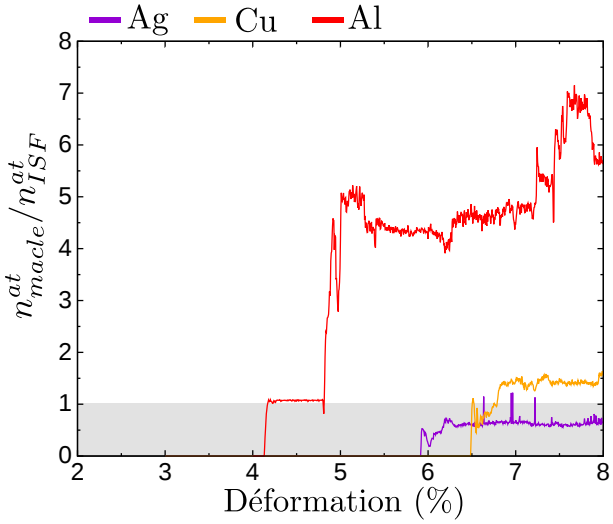

Figure III.21 – Évolution du rapport $n^{at}_{macle}/n^{at}_{ISF}$ au cours de la déformation en compression d'un film mince d'argent, de cuivre et d'aluminium contenant un joint de macle et un dipôle de marches de surface. Dans la zone grisée, le rapport est inférieur à 1, et le système est considéré comme peu propice au maclage.

barrière d'énergie à franchir pour former une dislocation partielle de Shockley et $\gamma^1_{UTF} - \gamma_{ISF}$ ($\simeq \gamma^\infty_{UTF}$), la barrière d'énergie pour former une dislocation partielle le long d'un joint de macle. Nous pouvons alors définir un nouveau critère de maclabilité M plus représentatif de nos simulations :

$$M = \frac{\gamma_{USF}}{\gamma^1_{UTF} - \gamma_{ISF}}. \tag{III.4}$$

Ainsi, une plus grande valeur de M traduira une plus grande aptitude au maclage. On obtient : $M_{\text{EA-Al}}$=2, $M_{\text{WM-Cu}}$=1,165 et $M_{\text{WM-Ag}}$=1,095, ce qui est en accord avec les tendances générales observées dans nos simulations.

Nous avons donc montré qu'il était plus adapté d'utiliser un critère faisant intervenir les deux barrières d'énergies γ_{USF} et $\gamma^1_{UTF} - \gamma_{ISF}$ pour évaluer la maclabilité d'un matériau dans une configuration défavorable au glissement pur (dislocations parfaites). Plusieurs études ont déjà mentionné le fait que dans certaines conditions, notamment lorsque que la taille du système considéré s'approche du nanomètre, la propension d'un matériau à se déformer par maclage peut changer [37, 59, 121].

De façon générale, le détail des mécanismes en jeu est primordial pour relier le comportement du matériau aux grandeurs intrinsèques que sont les énergies de défaut d'empilement. On notera par exemple que dans nos simulations, la dissociation d'une dislocation de Lomer en verrou de Lomer-Cottrell semble être directement liée à la barrière énergétique γ_{USF}. Ainsi, plus γ_{USF}, associée à la formation de dislocations partielles de Shockley, est faible plus la nucléation d'une dislocation partielle de Shockley depuis une dislocation de Lomer sera favorable. Ceci explique pourquoi ce mécanisme est très fréquemment observé dans le cuivre et l'argent, et moins fréquemment dans l'aluminium. Expérimentalement, la dissociation de la dislocation de Lomer en verrou de Lomer-Cottrell semble être également liée au matériau. Cependant, les observations diffèrent des nôtres, la dislocation de Lomer ayant été observée dissociée dans l'aluminium [120] et l'argent [31], et non dissociée dans le cuivre [32]. La géométrie du système et les orientations choisies sont sûrement à l'origine de cette différence.

III.4.2 Rôle de la vitesse de déformation

Si la taille des systèmes simulés est parfois proche de celle des systèmes expérimentaux, la vitesse de déformation (liée aux temps courts de la simulation) est quant à elle généralement plus d'une dizaine d'ordres de grandeur supérieure.

Une vitesse de déformation de 10^8 s^{-1} a principalement été utilisée. Nous avons cependant testé d'autres vitesses (10^7 et 10^9 s^{-1}) pour dégager des tendances et tenter d'extrapoler la reproductibilité de nos simulations à des vitesses de déformation expérimentales. De manière générale, la vitesse de déformation n'a aucun effet sur les mécanismes observés et présentés dans les parties précédentes. Cependant, on peut dégager plusieurs tendances. On peut tout d'abord constater, à partir des courbes contrainte-déformation (figure III.22) que la limite d'élasticité est atteinte pour une plus faible valeur de déformation et de contrainte quand la vitesse de déformation diminue. Ceci a également été souligné par Brandl et al. [122] pour les mêmes vitesses de déformation, dans le cas de nano-grains et quantifié pour des vitesses de déformation typiques des expériences par Zhu et al. [123] dans le cas de nano-fils de cuivre, en utilisant la théorie de l'état de transition. À faible vitesse de déformation, les courbes sont également moins «lisses» que pour une vitesse de déformation élevée, plusieurs événements de plasticité opérant dans un laps de déformation plus faible. Nos simulations montrent également qu'aux faibles vitesses de

déformation, les mécanismes de déformation plastique sont plus localisés.

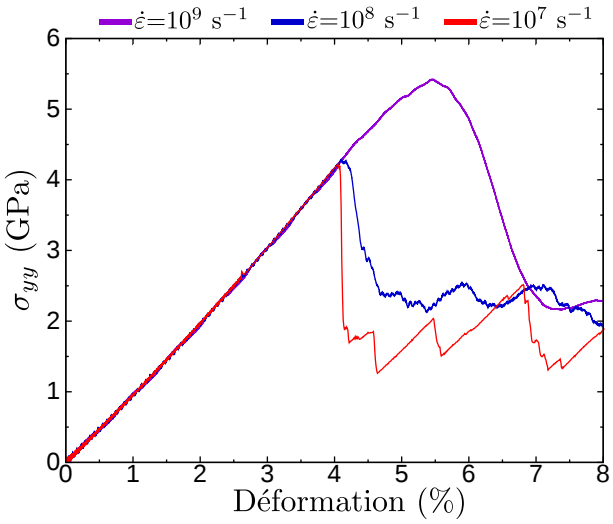

Figure III.22 – Courbes contrainte-déformation d'un film mince d'aluminium contenant un joint de macle initial soumis à une déformation en compression. Trois vitesses de déformation sont testées : $\dot{\varepsilon} = 10^9$, $\dot{\varepsilon} = 10^8$ et $\dot{\varepsilon} = 10^7 \mathrm{s}^{-1}$.

Un autre point qui n'a pas été quantifié mais que l'on peut extrapoler à partir de ceux mentionnés précédemment, porte sur la vitesse des dislocations qui dépend de la contrainte de cisaillement projetée dans le système de glissement. Si, aux faibles vitesses de déformation, la contrainte atteinte à la limite élastique est plus faible, les dislocations nucléées seront moins rapides. Or la vitesse des dislocations est un facteur déterminant dans le mécanisme de rebond et doit être proche de la vitesse du son (∼90%) pour que ce mécanisme se produise [49, 50, 51, 52]. De telles vitesses élevées sont généralement atteintes dans les simulations de dynamique moléculaire, mais ne le sont expérimentalement que dans des conditions de chargements extrêmes.

Les mécanismes mettant en jeu les dislocations de Lomer (notamment leur dissociation) semblent, en revanche, dépendre bien plus du matériau que de la vitesse des dislocations. Bien que l'on puisse penser que plus la dislocation de Lomer est rapide, moins la dissociation est susceptible d'opérer, d'un point de vue statistique.

III.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons effectué des simulations atomistiques pour étudier l'impact de défauts sur le maclage mécanique dans les métaux CFC. Nous avons dans un premier temps confirmé que, dans notre modèle de film mince, l'introduction d'une marche monoatomique de surface est un site favorable au déclenchement de la déformation plastique, ce qui a pour effet d'abaisser la limite d'élasticité. On a alors montré qu'en présence d'un tel défaut de surface le maclage était favorisé avec l'activation d'un nombre limité de systèmes de glissement, les interactions macle-dislocation étant préjudiciables au maclage. Nous avons également souligné l'impact d'un défaut plan tel qu'un joint de macle cohérent sur la formation, la propagation et l'extension d'une macle. Le joint de macle cohérent constitue un obstacle fort à la propagation des partielles de macles (et donc des macles) et entrave manifestement leur extension, ce qui entraîne alors la formation de macles plus petites. Nos simulations ont également révélé des mécanismes d'interactions macle-joint de macle originaux, conduisant à la nucléation de dislocation de Lomer. Celles-ci ont été identifiées comme sources de macles, directement avec la nucléation de dislocations de Shockley ou indirectement à partir de la marche laissée en surface, site propice à la nucléation de dislocations. Dans nos simulations, la présence des dislocations de Lomer justifie la propension observée à former un nombre plus important de macles en présence d'un joint de macle cohérent. Nous avons également montré qu'en l'absence de défaut de volume, la taille des macles dépend fortement de la densité de défauts en surface, alors qu'en présence d'un joint de macle cohérent cette dépendance est perdue. Enfin, ces résultats obtenus dans l'aluminium ont été vérifiés pour d'autres matériaux, notamment le cuivre et l'argent. Par ailleurs, une comparaison de ces trois matériaux a permis de reconsidérer les critères de maclage. Notre étude met plus particulièrement en évidence l'importance de prendre en considération les détails des mécanismes en jeu, liés aux spécificités du système considéré.

Chapitre IV

Systèmes bimétalliques

Sommaire

IV.1 Modèle et interface **96**
IV.2 Influence du type d'interface sur le maclage mécanique . . . **101**
IV.2.1 Interface type «cube on cube» 101
IV.2.2 Interface type «heterotwin» 106
IV.3 Rôle du site de nucléation **111**
IV.4 Rôle des dislocations d'épitaxie sur le maclage mécanique . . **115**
IV.4.1 Mécanisme de nucléation de dislocations de Lomer - interface HT115
IV.4.2 Mécanisme d'extension d'une macle à partir d'une interface COC118
IV.4.2.1 Rotation et contrainte projetée à l'interface 118
IV.4.2.2 Interactions dislocations d'épitaxie - joint de macle . 120
IV.4.2.3 Taille critique et activation 128
IV.5 Conclusion **131**

Dans ce chapitre, nous nous intéresserons à des films bimétalliques Cu/Ag et à l'influence que peuvent avoir différents défauts sur le maclage mécanique dans de tels systèmes. Dans une première partie, nous décrirons les méthodes utilisées pour construire et caractériser l'interface modélisée. Dans une seconde partie, nous présenterons les principaux mécanismes intervenant au cours du maclage dans ce type de système contenant une interface bimétallique. La reproductibilité de ces mécanismes sera ensuite testée en faisant varier le nombre de sites de nucléation des dislocations dans le film. Puis, nous nous attarderons à décrire en détail ces mécanismes et à chercher les paramètres cruciaux pour les initier. Dans une dernière partie, nous confronterons nos résultats obtenus en simulation à des cas expérimentaux de matériaux multicouches Cu/Ag.

IV.1 Modèle et interface

Dans la littérature, on trouve plusieurs études traitant de systèmes bimétalliques CFC/CFC. Notre étude est focalisée sur le maclage dans le système bimétallique Cu/Ag. En effet, la réponse plastique de ce matériau a été étudiée expérimentalement par plusieurs équipes [8, 9, 117, 124, 125] et le maclage semble en être le mécanisme de déformation plastique principal.

Nous avons vu dans le chapitre I qu'il existait plusieurs procédés expérimentaux pour former ces matériaux multicouches : par dépôt physique en phase vapeur ou par des procédés de déformation plastique sévère. Dans la plupart des cas, ces techniques conduisent à la formation d'une interface dont le plan est soit {111} soit {100}. Les deux cas ont été observés expérimentalement pour différents systèmes bimétalliques. L'interface {100} peut être obtenue dans certaines conditions de dépôt pour le système Cu/Ni [126, 127] ou après maclage dans le cas du système Cu/Ag [8]. Cependant, pour les systèmes bimétalliques CFC/CFC, les interfaces {111} semblent être les plus fréquentes. En effet, lorsque le matériau est élaboré par dépôt physique en phase vapeur, les plans denses {111} ont tendance à s'aligner parallèlement au substrat lors de la croissance du film mince. Ces interfaces sont observées dans plusieurs systèmes, tels que Ag/Al [128], Cu/Ni [126], Cu/Co [129] et Cu/Ag [8, 9, 130]. C'est pourquoi dans notre étude nous avons fait le choix d'étudier uniquement les interfaces dont le plan est {111}. Ces dernières peuvent également être facilement introduite dans notre modèle de film mince autoporté. Deux types d'interfaces sont alors généralement observées : l'orientation dite «cube on cube»

(COC) et l'orientation «heterotwin» (HT) pour laquelle un joint de macle se superpose au réseau de dislocations d'épitaxie à l'interface [1].

Dans le cas de l'interface {111} COC, les orientations dans le cuivre et l'argent sont équivalentes. Elle est alors notée : $[\bar{2}11](111)_{\mathrm{Cu}}\|[\bar{2}11](111)_{\mathrm{Ag}}$. Pour l'interface {111} HT, les orientations des nano-couches de cuivre et d'argent correspondent à celles de part et d'autre d'un joint de macle. Par rapport au système avec une interface COC, l'une des deux couches a subi une rotation de 180° autour de la direction de déformation $[\bar{2}11]$. L'interface est alors notée : $[\bar{2}11](\bar{1}\bar{1}\bar{1})_{\mathrm{Cu}}\|[\bar{2}11](111)_{\mathrm{Ag}}$.

Dans cette étude, nous avons utilisé un modèle de simulation relativement éloigné des systèmes multicouches observés expérimentalement. En effet, dans des systèmes réels une multitude de défauts de différentes natures peuvent agir comme sites de nucléation des dislocations et des macles. En simulation, du fait de l'absence de ces défauts permettant l'activation des premiers mécanismes de plasticité, le modèle multicouche est assez peu réaliste pour reproduire le niveau de contrainte atteint dans ces matériaux. Nous avons donc choisi d'utiliser un modèle de film mince similaire à ceux présentés jusqu'ici, pour y introduire un défaut connu (marche de surface) que l'on sait être un site propice à la nucléation de dislocations [118, 119]. Ce type de configuration, que l'on peut voir sur la figure IV.1.a, permet ainsi l'étude du maclage en présence d'une interface bimétallique et pour des niveaux de contrainte raisonnables (chapitre III).

Pour introduire l'interface bimétallique COC dans notre modèle de film mince, les deux cristaux de cuivre et d'argent sont construits dans des orientations cristallines identiques avec : $X = [01\bar{1}]$, $Y = [\bar{2}11]$ et $Z = [111]$. L'interface HT est construite en considérant une couche de cuivre avec la même orientation que précédemment et une couche d'argent tournée de 180° autour de Y, donnant pour cette dernière l'orientation : $X = [0\bar{1}1]$, $Y = [\bar{2}11]$ et $Z = [\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ (figure IV.1.a).

L'argent et le cuivre ont des paramètres de maille significativement différents : a_{Ag}=4,115 Å et a_{Cu}=3,632 Å à 300K, avec le potentiel utilisé (WM). Ceci implique un désaccord paramétrique important de l'ordre de 12,45%, calculé par rapport à la moyenne des deux paramètres de maille : $\frac{2(a_{Ag}-a_{Cu})}{a_{Ag}+a_{Cu}}$.

1. L'appellation «heterotwin» peut rappeler celle de Tschermak : «heterozwillinge», qui peut être traduit en français comme des «macles hétéroclites». Cette dernière n'est donc pas à confondre avec la description présente de «macles hétérophases» que l'on peut aussi qualifier de «macles interphases». L'appellation «twin orientation» peut également être rencontrée dans la littérature et désigne aussi des «macles hétérophases» [9, 131].

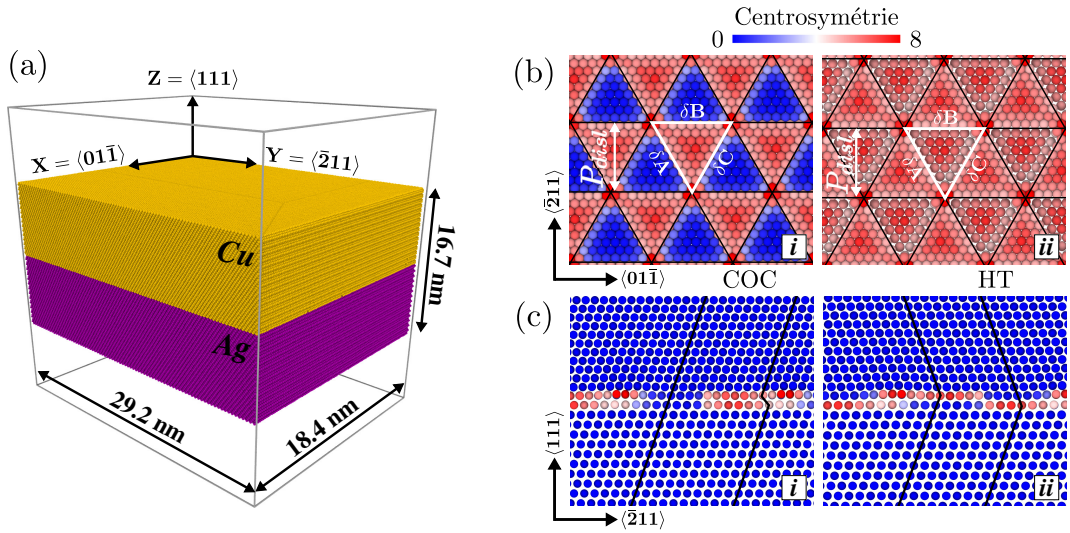

Figure IV.1 – (a) Film mince bimétallique contenant deux couches de même taille. Les atomes sont colorés selon leur type (cuivre en jaune et argent en violet). (b) Vue de dessus des atomes de cuivre et d'argent le long de l'interface pour (b.i) une interface COC et (b.ii) une interface HT. Ces vues montrent le réseau de dislocations partielles de Shockley à l'interface (soulignées par les lignes noires), le motif triangulaire associé (segments blancs) et la répartition des défauts d'empilement à l'interface. La périodicité du réseau pour les trois familles de partielles de Shockley P_{disl} est également définie. (c) Une vue latérale le long de la direction $X = \langle 01\bar{1} \rangle$ montre (c.i) une alternance de zones cohérentes et de zones fautées de type défaut d'empilement intrinsèque dans le cas d'une interface COC et (c.ii) une interface entièrement composée d'un joint de macle, la zonée fauté étant en alternance dans la couche de cuivre et dans la couche d'argent. Sur les figures (b) et (c), les atomes sont colorés en fonction du paramètre de centrosymétrie.

Le désaccord paramétrique entre le cristal de cuivre et celui d'argent étant important, la contrainte de cohérence est telle que la continuité cristallographique entre les deux métaux ne peut être maintenue à l'interface. Cette dernière devient alors semi-cohérente, avec l'introduction de dislocations d'épitaxie, dès que l'épaisseur des deux cristaux dépasse quelques nanomètres. Expérimentalement, un réseau de dislocations d'épitaxie a été observé à l'interface [8, 132]. Nous avons fait le choix de considérer des systèmes bimétalliques dont le réseau de dislocations d'épitaxie accommoderait au mieux la contrainte de cohérence, de telle sorte que la contrainte moyenne dans chaque cristal soit minimum. Néanmoins, les paramètres de maille du cuivre et de l'argent étant incommensurables, il n'est pas possible de trouver avec ces paramètres de maille un réseau de coïncidence

lorsque l'on accole les deux cristaux dans les orientations désirées. Les conditions aux limites périodiques utilisées dans nos simulations nous contraignent pourtant à imposer un tel réseau dont la maille doit être de taille finie. Il est donc nécessaire de définir une taille de boîte de simulation optimale qui permette la quasi-coïncidence entre les deux réseaux, aux bords de boîte. Dans la suite, pour simplifier, nous avons choisi de considérer uniquement pour le cristal de cuivre une déformation $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = \varepsilon_0$ suivant les axes X et Y définie comme :

$$\varepsilon_0 = \frac{na_{\mathrm{Ag}} - ma_{\mathrm{Cu}}}{ma_{\mathrm{Cu}}}, \tag{IV.1}$$

où n et m sont respectivement les nombres entiers de mailles élémentaires d'argent et de cuivre contenues dans la maille élémentaire du réseau de coïncidence suivant X et Y. Pour un nombre n donné de mailles d'argent, on cherche alors le nombre entier m de mailles de cuivre tel que ε_0 soit la plus faible possible en écrivant :

$$m = \left\lfloor \frac{na_{\mathrm{Ag}}}{a_{\mathrm{Cu}}} \right\rceil .^{2} \tag{IV.2}$$

En combinant les équations (IV.1) et (IV.2), on obtient l'évolution de ε_0 en fonction de n (Fig. IV.2). Pour $n \in [1; 25]$, on voit que pour les rapports $n/m = 8/9$, $15/17$ et $23/26$, ε_0 =0,71%, -0,03% et 0,23% respectivement (points rouges sur la figure IV.2).

Dans la suite, nous choisirons un rapport $n/m = 8/9$, qui ne correspond pas à une déformation résiduelle ε_0 minimale, mais qui conduit à une maille de petite taille pour le réseau de coïncidence permettant d'ajuster plus précisément les dimensions du système bimétallique Ag/Cu. Expérimentalement, une étude menée par Wang. et al. en microscopie électronique en transmission (MET) montre que, pour une interface COC, ce ratio est proche de 8/9 [132]. Lors de l'accolement des deux cristaux de cuivre et d'argent, les dislocations d'épitaxie sont directement introduites à l'interface. Néanmoins leur structure de cœur n'est pas relaxée. Une minimisation de l'énergie est alors effectuée en utilisant la méthode des gradients conjugués tout en maintenant une pression nulle sur chaque face de la boîte. Ainsi la structure de cœur des dislocations d'épitaxie est relaxée et la déformation ε_0 est répartie de manière optimale dans les deux couches. A la fin de cette étape de minimisation, la déformation ε_0 vaut 0,60% [3] et les déformations résiduelles sont

2. Le symbole $\lfloor ... \rceil$ désigne l'entier le plus proche.
3. Ces déformations sont calculées à partir de la taille de la boîte après relaxation : $\varepsilon_0 = \frac{na'_{\mathrm{Ag}} - ma'_{\mathrm{Cu}}}{ma'_{\mathrm{Cu}}}$,

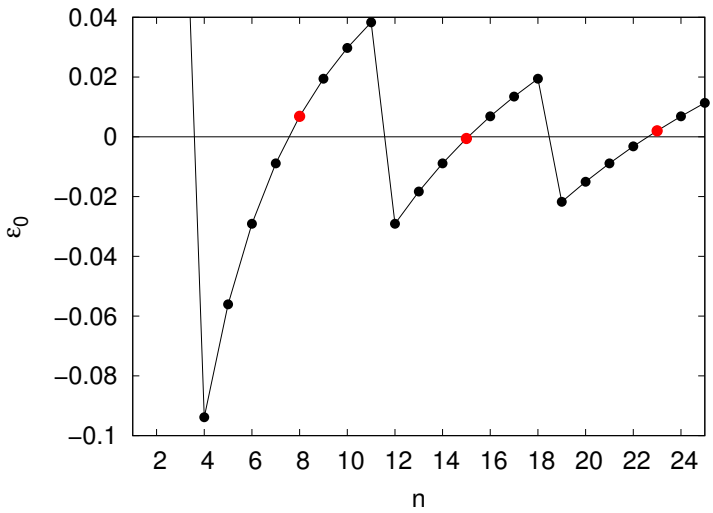

Figure IV.2 – Évolution de la déformation ε_0 du cristal de cuivre en fonction du nombre de mailles n d'argent du réseau de coïncidence.

$\varepsilon_{\mathrm{Cu}}$=0,23% et de $\varepsilon_{\mathrm{Ag}}$=-0,37% pour le cuivre et l'argent respectivement.

Les figures IV.1.b et IV.1.c montrent le réseau de dislocations d'épitaxie obtenu pour les deux types d'interface. Du fait de sa symétrie, l'interface est composée d'un réseau triangulaire de dislocations d'épitaxie (figure IV.1.b). Ces dislocations ont été identifiées comme des dislocations partielles de Shockley dont le caractère est purement coin et dont les vecteurs de Burgers sont : δA, δB et δC (selon les notations introduites par Thomson). Suivant une direction $\langle\bar{2}11\rangle$ contenue dans le plan de l'interface, la périodicité du réseau obtenue est alors P_{disl} =1,91 nm pour les trois familles de partielles de Shockley. La périodicité du réseau de dislocations d'épitaxie déterminée par MET à haute résolution est très proche de cette valeur ($P_{disl}^{exp} = 2$ nm) [8, 132].

Ces dislocations partielles de Shockley introduisent des défauts d'empilement à l'interface. Selon le type d'interface (COC ou HT), les défauts d'empilement ne sont pas répartis le long de l'interface de la même façon, comme on peut le voir sur la figure IV.1.c correspondant à une vue latérale de l'interface. Ainsi, l'interface COC se compose de zones purement cohérentes en alternance avec des zones présentant un défaut d'empilement in-

$\varepsilon_{\mathrm{Cu}} = \frac{p_m - m a'_{\mathrm{Cu}}}{p_m}$ et $\varepsilon_{\mathrm{Ag}} = \frac{p_m - n a'_{\mathrm{Ag}}}{p_m}$, où a'_{Ag} et a'_{Cu} correspondent aux paramètres de maille après relaxation et $p_m = \frac{n a'_{\mathrm{Ag}} + m a'_{\mathrm{Cu}}}{2}$.

trinsèque (figure IV.1.c.i), alors que l'interface HT est entièrement composée de défauts d'empilement de type joint de macle, les zones défectueuses étant successivement dans la couche de cuivre et dans la couche d'argent (figure IV.1.c.ii). Connaissant la structure de ces interfaces, il est possible d'avoir une idée de la perméabilité de ces dernières au glissement des dislocations. Ainsi, on conçoit que l'interface HT agira comme un fort obstacle au glissement de dislocations, à cause de la présence du joint de macle superposé au réseau de dislocations d'épitaxie.

IV.2 Influence du type d'interface sur le maclage mécanique

Une fois le modèle créé, il est soumis à une contrainte en compression suivant l'axe $Y = [\bar{2}11]$. Cette orientation du cristal a montré sa facilité à former des macles de déformation (chapitre III et annexe C). Comme dans le chapitre précédent, un dipôle de marches monoatomiques orientées suivant la direction $X = [01\bar{1}]$ a été introduit, ici à la surface de l'argent. Cette configuration servira de référence pour décrire les principaux mécanismes de plasticité opérant dans ce type de système. Comme nous l'avons évoqué auparavant, pour avoir un échantillon statistique représentatif des mécanismes observés, plusieurs simulations ont été réalisées dans cette même configuration en considérant à chaque fois une distribution initiale des vitesses différente.

IV.2.1 Interface type «cube on cube»

Dans le cas où le système contient une interface COC, la plasticité apparaît pour une déformation moyenne de 3,2%. Cette moyenne est calculée, ainsi que toutes celles données dans cette partie, à partir de toutes les simulations effectuées dans la même configuration, mais avec des distributions de vitesses initiales différentes. La plasticité débute avec la nucléation d'une partielle de Shockley dans un plan $(\bar{1}11)$ depuis la marche activable à la surface de l'argent. Cette dislocation glisse alors dans la couche d'argent, en laissant derrière elle un défaut d'empilement intrinsèque, jusqu'à l'interface COC qu'elle traverse (voir figure IV.3.i). Lorsque cette première partielle de Shockley atteint la surface de cuivre, deux nouvelles dislocations partielles de Shockley sont nucléées sur des plans $(\bar{1}11)$ adjacents au plan de glissement de la première, par le mécanisme de rebond décrit en

détail dans le chapitre précédent, formant ainsi une macle. La taille de la macle augmente via la nucléation de partielles de Shockley depuis les deux surfaces, toujours suivant le mécanisme de rebond (figure IV.3.ii). Cette première étape sera noté $\mathbf{S}_R$ et correspond, sur la courbe contrainte-déformation, à la première chute de contrainte observée sur la courbe bleu clair (figure IV.4.a). Lorsque la contrainte dans le système devient suffisamment basse, le maclage s'arrête spontanément (pour une déformation appliquée moyenne de 3,6%). Sur la figure IV.4.b, on a reporté l'évolution de la taille des macles en fonction de la déformation. Sur la courbe bleue, correspondant à la première macle formée dans le système, on peut constater une première augmentation rapide de la taille de la macle, entre 3,3% et 3,6% de déformation, cette augmentation étant caractéristique du maclage par le mécanisme de rebond.

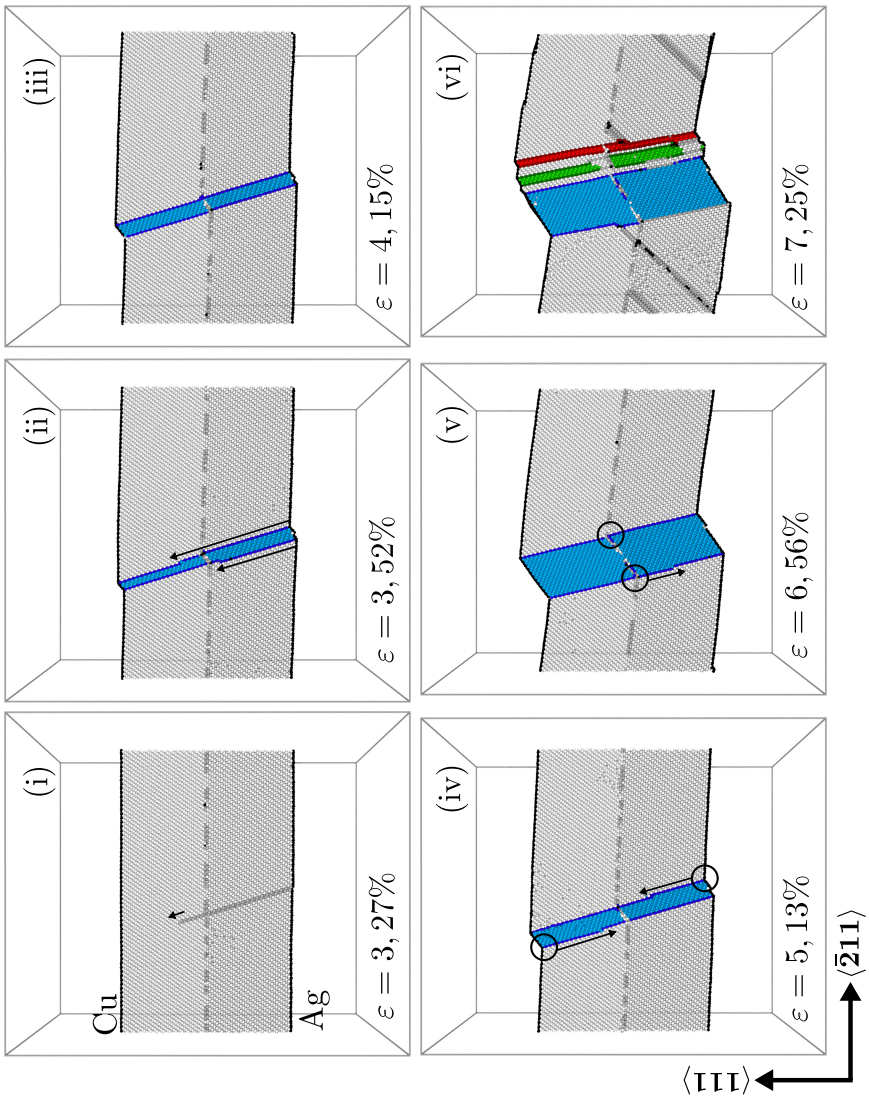

Figure IV.3 – Formation d'une macle dans un mince film bimétallique Cu/Ag contenant une interface COC, en compression. (i-ii) Nucléation à partir de l'une des marches introduites sur la surface de l'argent et extension d'une macle suivant le mécanisme de rebond. (iii) Arrêt du maclage mécanique. (iv) Reprise du maclage à partir de deux sites entourés en noir. (v) Troisième mécanisme de maclage observé, opérant directement depuis l'interface (zones de nucléation entourées en noir). (vi) Mécanismes de plasticité subséquents correspondant à la nucléation de macles (en vert et rouge) et à la nucléation de dislocations parfaites. Le code couleur utilisé pour les atomes est le même que celui décrit pour la figure III.2, dans le chapitre précédent.

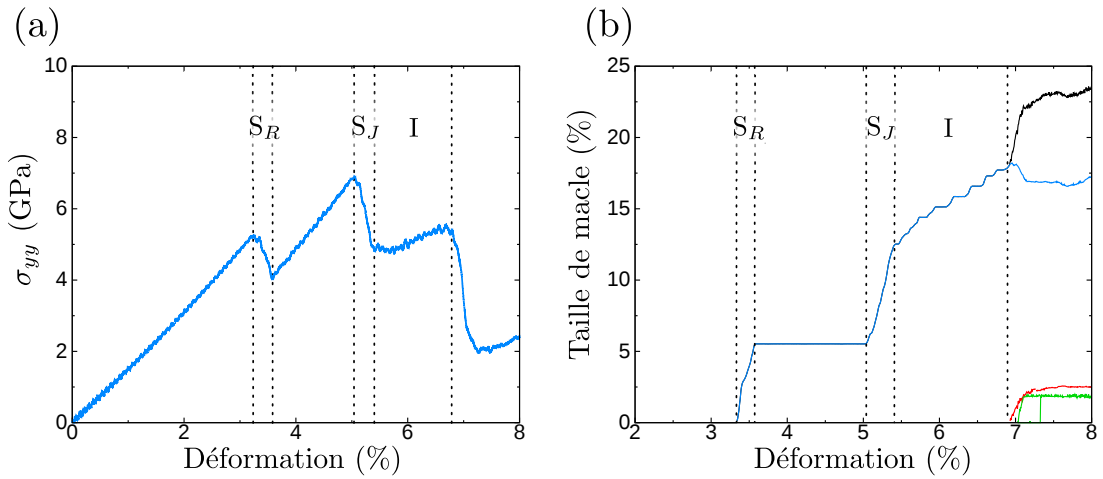

Figure IV.4 – (a) Courbes contrainte-déformation et (b) évolution de la taille (en %) des macles formées au cours de la déformation. Sur la figure (b), la couleur de chaque courbe est associée aux macles identifiées sur la figure IV.3. La courbe noire correspond à l'évolution du volume total de macles dans le système.

Jusqu'à une déformation de 5,1%, aucun événement de plasticité n'intervient, la contrainte dans le système augmente à nouveau et la taille de la macle reste constante (figure IV.3.iii). Cette étape est caractérisée par le plateau sur la courbe bleu de la figure IV.4.b. Le maclage reprend ensuite avec la nucléation de partielles de Shockley depuis deux sites localisés à l'intersection des surfaces libres et des joints de la macle nouvellement formée, indiqués par les cercles noirs sur la figure IV.3.iv. Ce mécanisme d'extension de la macle sera noté $\mathbf{S}_J$. Sur la courbe contrainte-déformation (figure IV.4.a), ce mécanisme est caractérisé par une deuxième chute de la contrainte. Sur cette courbe, on constate également que la contrainte de nucléation associée à ce second pic est bien plus élevée que pour le premier. La nucléation d'une partielle de macle depuis l'une des intersections des surfaces libres et des joints nécessite bien plus de contrainte que la nucléation d'une partielle de Shockley depuis une marche de surface. Cette dernière semble donc induire une plus forte concentration locale de contrainte. Cependant, ce mécanisme S_J semble être plus favorable que la nucléation d'une partielle de Shockley depuis un endroit quelconque de la surface. Une rapide augmentation de la taille de la macle est alors observée sur la courbe bleu clair de la figure IV.4.b. À partir de 5,4% de déformation, un changement de site de nucléation des partielles de macle est observé, ces dernières étant formées à partir de l'interface (cercles

noirs sur la figure IV.3.v). Pour cette troisième étape, les dislocations partielles de Shockley sont émises depuis l'intersection entre l'interface et le joint de la macle. De plus, on constate que les dislocations partielles de Shockley formées glissent, en fonction du joint de macle considéré, soit dans la couche de cuivre soit dans la couche d'argent. Ce mécanisme de maclage depuis l'interface est noté **I**. Ce changement de mécanisme est également visible sur la courbe contrainte-déformation (figure IV.4.a) avec une augmentation de la contrainte dans le système. Cependant la pente est plus faible que celle correspondant à une déformation purement élastique. Ceci signifie que le maclage associé à ce mécanisme ne suffit pas à accommoder complètement la contrainte induite par la déformation appliquée. Sur la courbe IV.4.b, ce changement de mécanisme se manifeste par un changement de pente lié à une diminution de la vitesse de croissance de la macle. Ce mécanisme, qui se trouve être fortement corrélé au déplacement des dislocations d'épitaxie, sera décrit en détail dans la partie IV.4.2.

Dans le cas que nous venons de décrire, le maclage opère donc en trois étapes distinctes : un mécanisme de nucléation et d'extension (mécanisme de rebond aux surfaces), un second mécanisme d'extension à partir des surfaces puis un mécanisme d'extension à partir de l'interface bimétallique. Cette séquence de maclage est alors notée $S_R S_J I$. Cependant, pour environ la moitié des cas simulés dans la même configuration, la séquence de maclage diffère. Le maclage opère alors en seulement deux étapes : un mécanisme de nucléation et d'extension (mécanisme de rebond aux surfaces) suivi directement d'un mécanisme d'extension à partir de l'interface bimétallique. Cette séquence de maclage est alors notée $S_R I$. Dans ce cas, deux pics de contrainte sont observés sur la courbe contrainte-déformation et aucun plateau n'est présent sur la courbe d'évolution de la taille de macle.

Enfin à une plus forte déformation appliquée (au delà de 7,0% de déformation), d'autres systèmes de glissement sont activés, avec la nucléation de dislocations partielles de Shockley et de dislocations parfaites dans les plans $(1\bar{1}1)$ et $(11\bar{1})$, mais également d'autres petites macles de déformation (figure IV.3.vi). La contrainte dans le système chute brutalement. Sur la courbe donnant l'évolution de la taille des macles (figure IV.4.b), on voit que d'autres macles ont été formées. Cependant, leurs tailles restent bien inférieures à celle de la première formée lors de cet essai.

IV.2.2 Interface type «heterotwin»

Le même type d'essai mécanique a ensuite été réalisé sur un système comportant une interface bimétallique de type «heterotwin». Tout comme pour le cas précédent, la plasticité commence avec la nucléation d'une dislocation partielle de Shockley, depuis l'une des deux marches introduites à la surface, pour une déformation appliquée moyenne de 3,2%. Cette limite élastique est similaire au cas où le système contient une interface COC. En effet, la nucléation de dislocations à la surface est un mécanisme très local que l'interface n'influence pas. La dislocation alors nucléée glisse dans la couche d'argent laissant derrière elle un défaut d'empilement intrinsèque (figure IV.5.i). La dislocation n'est pas transmise à travers l'interface mais y est arrêtée puis stockée (figure IV.5.ii). Ce premier événement de plasticité est caractérisé par un léger décrochement sur la courbe contrainte-déformation (indiqué par la flèche noire sur la figure IV.6.a). Puis, en l'absence d'autres mécanismes de plasticité, la contrainte dans le système augmente à nouveau (figure IV.6.a).

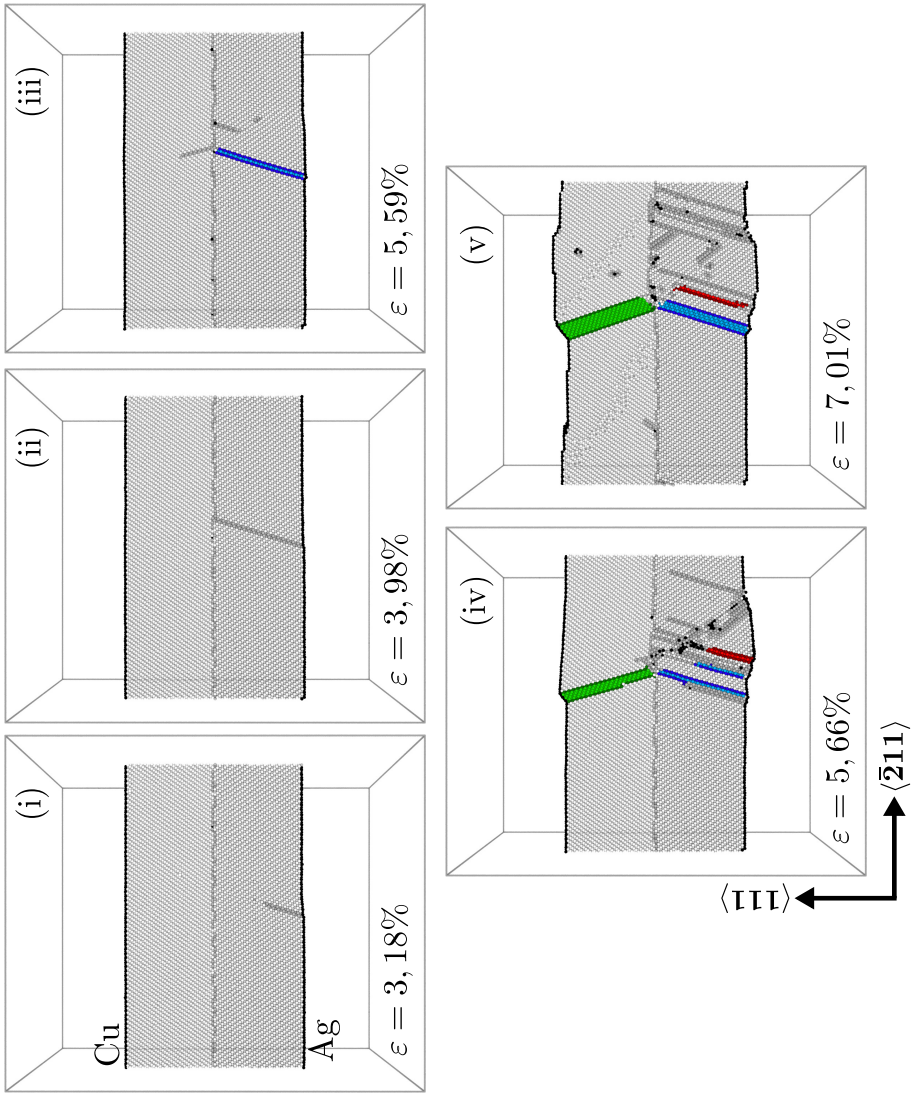

Figure IV.5 – Réponse plastique d'un film mince bimétallique Cu/Ag contenant une interface HT en compression. (i-iii) Nucléation d'une macle depuis la marche introduite à la surface de l'argent. (iii) Formation d'une dislocation de Lomer dans l'argent et d'une partielle de Shockley dans le cuivre. (iii-iv) Formation d'une macle (en vert) dans la couche de cuivre à partir de l'interface. (iv-v) Formation de dislocations partielles de Shockley à partir de la dislocation de Lomer. Le code couleur utilisé pour les atomes est le même que celui décrit pour la figure III.2 dans le chapitre précédent.

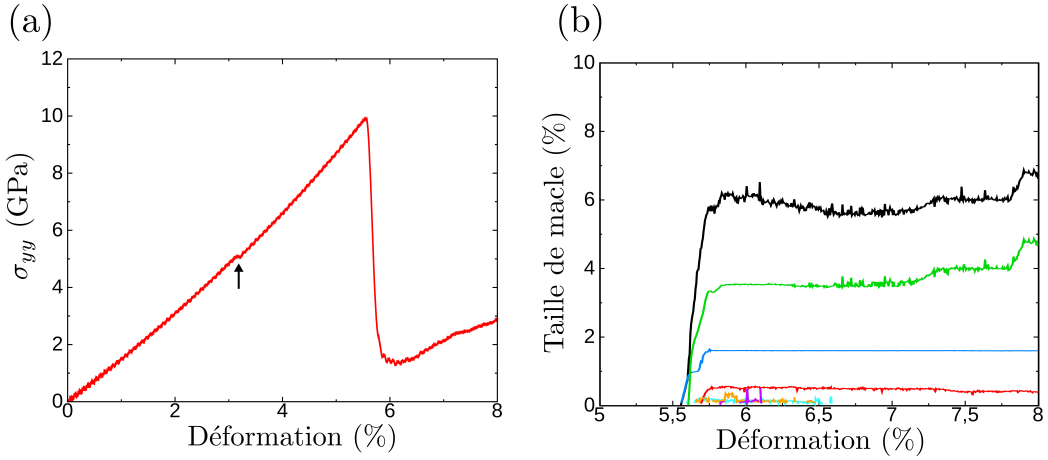

Figure IV.6 – (a) Courbes contrainte-déformation et (b) évolution de la taille (en %) des macles formées au cours de la déformation. Sur la figure (a), la flèche noire indique la limite d'élasticité. Sur la figure (b), la couleur de chaque courbe est associée aux macles identifiées sur la figure IV.5. La courbe noire correspond à l'évolution du volume total de macles dans le système.

La plasticité reprend ensuite pour une déformation appliquée moyenne de 5,5% selon deux mécanismes qui se produisent de manière quasi-simultanée. L'un des deux mécanismes opère alors un peu avant l'autre, de façon équiprobable. Dans le cas présenté ici, le premier mécanisme observé correspond à la nucléation depuis la surface de l'argent d'une dislocation partielle de Shockley sur un plan $(\bar{1}11)$ adjacent à la première (nucléée à 3,2% de déformation) formant ainsi une macle. Très rapidement après, se produit le second mécanisme correspondant à la formation d'une dislocation de Lomer dans la couche d'argent et d'une dislocation partielle de Shockley dans la couche de cuivre (figure IV.5.iii). Ces deux dislocations sont formées à partir de l'interface. Le mécanisme correspondant est détaillé dans la partie IV.4.1. Une macle est ensuite formée dans la couche de cuivre avec la nucléation depuis la surface de partielles de Shockley sur des plans $(\bar{1}11)$ adjacents au défaut d'empilement laissé par la partielle nucléée depuis l'interface.

Avec un facteur de Schmid important (s =0,47), la dislocation de Lomer traverse la couche d'argent pour atteindre la surface, en laissant derrière elle plusieurs boucles isolées de dislocations partielles de Shockley. On a vu dans le chapitre précédent, que les dislocations de Lomer peuvent être à l'origine de la nucléation de dislocations partielles de Shockley. Le mécanisme observé principalement ici correspond à celui décrit dans le

chapitre III, où une dislocation partielle de Shockley est formée à la suite de la première étape de la dissociation d'une dislocation de Lomer en verrou de Lomer-Cottrell. Durant le glissement de la dislocation de Lomer, ce mécanisme se produit à plusieurs reprises. Dans le chapitre précédent, nous avons vu que ce mécanisme tendait à se produire fréquemment dans les matériaux à faible énergie de défaut d'empilement tel que l'argent. Dans certains cas comme ici, les boucles de partielles de Shockley peuvent se former dans des plans $(\bar{1}11)$ adjacents, produisant ainsi des macles.

Les macles formées par les différents mécanismes sont complètement arrêtées par l'interface et ne peuvent être transmises d'une couche à l'autre (figure IV.5.iv-v).

Tous ces mécanismes de plasticité opèrent dans un intervalle de temps très court, conduisant à une importante chute de la contrainte dans le système (figure IV.6.a), associée à une augmentation soudaine du nombre total d'atomes identifiés comme appartenant à une macle (courbe noire sur la figure IV.6.b) pour une déformation appliquée d'environ 5,5%. Nous pouvons nous aider de cette même figure IV.6.b, donnant l'évolution de la taille de chaque macle au cours de la déformation pour résumer la chronologie des différents mécanismes observés :

- La courbe bleue correspond à la première macle formée depuis la surface de l'argent à partir du défaut d'empilement intrinsèque déjà créé. Cette dernière est associée au mécanisme de nucléation directement depuis la surface de l'argent.
- La courbe verte correspond à la macle formée dans le cuivre depuis l'interface. On voit ici que ce mécanisme opère très rapidement après le premier.
- Enfin, les autres courbes correspondent aux macles formées à partir de la dislocation de Lomer. Ainsi, elles sont toujours formées après les deux mécanismes indiqués ci-dessus.

De manière générale, la taille moyenne des macles formées dans ce système, contenant une interface HT, est bien inférieure à celle des macles formées dans les systèmes comportant une interface COC. En revanche, contrairement au cas du système avec une interface COC, où une seule macle est principalement formée, un plus grand nombre de macles est formé en présence d'une interface HT.

Nous avons également cherché à quantifier le maclage dans chaque couche (Ag et Cu) séparément. Sur la figure IV.7, on a reporté l'évolution, au cours de la déformation, de la proportion d'atomes dans une macle (P_{macle}) et d'atomes appartenant à un défaut d'empilement intrinsèque (P_{ISF}) pour chaque couche du système bimétallique.

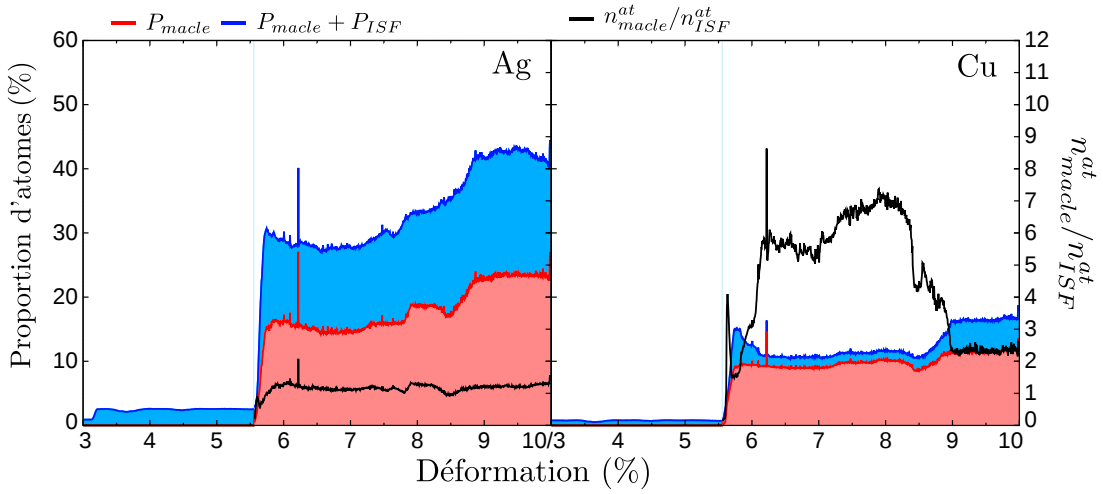

Figure IV.7 – Évolution de la proportion d'atomes appartenant à un défaut d'empilement intrinsèque P_{ISF} (en bleu) superposée au pourcentage d'atome appartenant à une macle P_{macle} (en rouge) en fonction de la déformation appliquée, pour un film mince contenant une interface HT. La courbe noire correspond à l'évolution du rapport $n^{at}_{macle}/n^{at}_{ISF}$, équivalent au rapport P_{macle}/P_{ISF}, au cours de la déformation. Ce rapport permet de mettre en évidence la propension d'un matériau à se déformer plastiquement par maclage. Ces grandeurs sont déterminées séparément dans la couche d'argent et la couche de cuivre.

À partir de ces courbes, on constate que le cuivre et l'argent ne répondent pas de la même façon à la déformation appliquée. En effet, la proportion globale d'atomes dans un défaut (macle ou défaut intrinsèque) est plus importante dans l'argent que dans le cuivre, attestant qu'une bonne partie de la déformation appliquée est accommodée plastiquement par la couche d'argent. La couche d'argent étant initialement légèrement en compression par rapport au cuivre (0,6%), on peut penser que cet écart de déformation est à l'origine d'une déformation plastique plus importante dans l'argent. Néanmoins, on remarque que dans les systèmes monométalliques de cuivre et d'argent, la déformation plastique est aussi plus importante dans le film d'argent que dans le film de cuivre (voir la figure III.20 du chapitre III). On voit également sur la figure IV.7 que le nombre d'atomes dans une macle est plus important pour l'argent que pour le cuivre. Cependant, si l'on s'intéresse à l'évolution du rapport $n^{at}_{macle}/n^{at}_{ISF}$ (courbe noire sur la figure IV.7), on constate que le maclage est plus important dans le cuivre que la nucléation de dislocations partielles de Shockley isolées. Ceci n'est pas le cas dans la couche d'argent, où ces deux mécanismes

semblent opérer dans les mêmes proportions ($n^{at}_{macle}/n^{at}_{ISF}$ proche de 1). Ce constat est également fait dans les films minces mono-métalliques contenant un joint de macle (défaut similaire à une interface HT) et peut s'expliquer avec les énergies associées à chaque mécanisme (chapitre III).

IV.3 Rôle du site de nucléation

Dans la partie IV.2, nous avons considéré un dipôle de marches monoatomiques à la surface de l'argent seulement, systématiquement à l'origine du déclenchement de la plasticité. Dans le but de tester l'influence du premier mécanisme de plasticité sur l'interface, nous avons considéré d'autres systèmes avec des configurations initiales différentes.

Surface parfaite Nous avons ici choisi de ne pas introduire de défaut de surface. Dans le chapitre précédent nous avons vu que ce type de configuration induit des mécanismes de plasticité à plus forte contrainte qu'en présence de marches de surface. L'interface peut donc devenir une potentielle source de dislocations.

Pour ces systèmes, la limite d'élasticité est atteinte pour une déformation de 5,7% quel que soit le type d'interface introduit dans le film. Dans chacun des cas testés, le premier événement de plasticité correspond à la nucléation d'une partielle de Shockley depuis un site aléatoire à la surface de l'argent. Cette dislocation est alors soit arrêtée, soit transmise dans le cristal de cuivre, selon que le type d'interface est respectivement HT ou COC.

Dans le cas d'une interface HT, plusieurs dislocations partielles de Shockley se forment isolément depuis la surface de l'argent, puis plusieurs mécanismes opèrent simultanément. On retrouve notamment le mécanisme aboutissant à la formation d'une dislocation de Lomer dans l'argent et d'une partielle de Shockley dans le cuivre. La dislocation de Lomer se dissocie partiellement comme décrit dans le chapitre III. Un nouveau mécanisme correspondant à la nucléation d'une partielle de Shockley depuis l'interface et glissant dans la couche de cuivre n'est observé que pour ces systèmes. La réaction en jeu est alors :

$$\begin{array}{ccccc} \frac{1}{6}\left[2\bar{1}\bar{1}\right]_{Cu} & \rightarrow & \frac{2}{3}\left[100\right]_{Cu} & + & \frac{1}{6}\left[\bar{2}\bar{1}\bar{1}\right]_{Cu}, \\ B\delta_{Cu} & \rightarrow & \frac{2}{3}BD/AC_{Cu} & + & \beta D_{Cu}. \end{array} \tag{IV.3}$$

Ici, la dislocation d'épitaxie $B\delta_{Cu}$ se dissocie pour former une partielle de Shockley βD_{Cu}

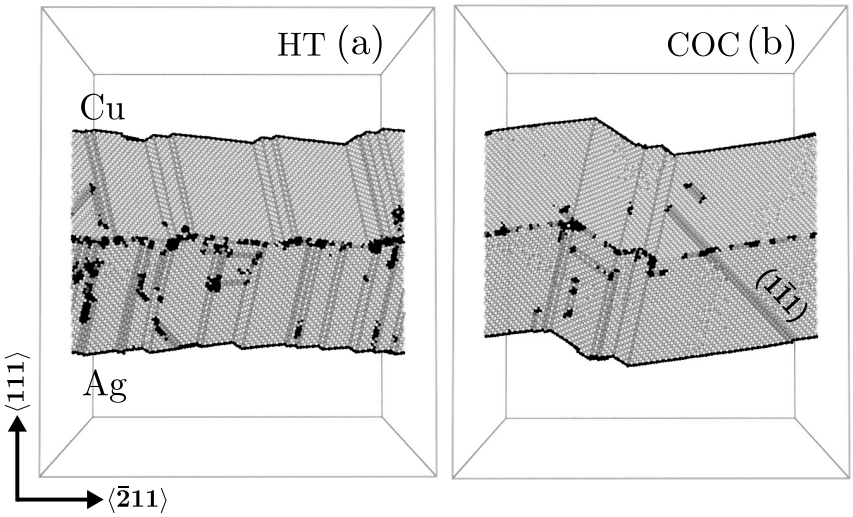

Figure IV.8 – Formation de macles dans un film mince bimétallique Cu/Ag déformé en compression, contenant (a) une interface HT et (b) une interface COC.

glissile dans le cuivre et une dislocation $\frac{2}{3}BD/AC_{Cu}$ stockée à l'interface. La dislocation βD_{Cu} formée dans le cuivre, entraîne la formation d'une macle. Ainsi, l'interface HT, ou plus précisément les dislocations d'épitaxie, sont ici une source directe de dislocations, sans l'implication d'autres défauts.

À plus forte déformation, plusieurs macles sont formées (figure IV.8.a). Là encore, des mécanismes similaires à ceux décrits dans la partie IV.2.2 sont observés.

Dans le cas d'une interface COC, après la nucléation de la première partielle de Shockley, le mécanisme de rebond se produit et une macle est entièrement formée suivant ce mécanisme. Le maclage opère donc d'un coup et non de manière séquentielle (voir section IV.2.1). Ceci est essentiellement dû au très haut niveau de contrainte atteint pour ces systèmes. D'autres systèmes de glissement sont ensuite activés avec la nucléation de dislocations partielles de Shockley et de dislocations parfaites dans les plans $(1\bar{1}1)$ et $(11\bar{1})$, mais également la formation de macles secondaires (figure IV.8.b). Tous ces mécanismes tendent à limiter l'extension de la macle initialement formée.

Marches monoatomiques de surface Plusieurs sites ont ici été testés pour introduire les marches : à la surface du cuivre ou sur les deux surfaces.

Pour tous les cas testés, la plasticité débute par la nucléation d'une partielle de Shock-

ley depuis l'une des deux marches de surface introduites par dipôle. Lorsque les marches de surface sont introduites seulement à la surface du cuivre, on constate une légère augmentation de la limite d'élasticité (3,3% de déformation) par rapport au cas décrit dans la partie IV.2. En revanche, lorsque les marches sont introduites sur les deux surfaces, la limite élastique reste inchangée. En effet, dans ce cas seules les marches présentes à la surface de l'argent sont à l'origine du premier événement de plasticité.

Dans le chapitre précédent, nous avons étudié ces deux matériaux de façon indépendante. Pour rappel, la limite d'élasticité est alors plus petite dans le cuivre (3,2%) que dans l'argent (3,3%), à l'inverse de ce que nous obtenons pour le système bimétallique. Pour ce dernier l'activation de la plasticité est influencée en grande partie par les déformations résiduelles introduites lors de la création de l'interface (voir section IV.1). Sur la figure IV.9, où la contrainte dans chaque couche a été tracée en fonction de la déformation appliquée, on constate que la contrainte résiduelle dans l'argent est positive (pour nos systèmes la couche est alors considérée en compression), tandis que dans le cuivre, elle est négative (la couche est en tension). Sur la courbe jaune correspondant à l'évolution de la contrainte dans la couche de cuivre, on voit qu'il est nécessaire de déformer (en compression) cette couche d'environ ∼0,26% (±0,05%) pour que la contrainte dans cette couche soit nulle (figure IV.9.b). Dans la couche d'argent, cette déformation résiduelle peut être déduite de celle du cuivre et vaut en valeur absolue ∼0,34% (=0,60%-0,26%). Ces valeurs sont donc très proches des valeurs calculées dans la section IV.1, à savoir $\varepsilon_{\mathrm{Cu}}$=0,23% et $\varepsilon_{\mathrm{Ag}}$=-0,37%. Ce décalage permet expliquer alors pourquoi la plasticité opère dans un premier temps dans l'argent, cette couche étant initialement en compression. Maintenant, on peut se demander ce qui se passerait si le rapport initial avait été de 15/17, donnant une déformation résiduelle dans chacune des couches très proche de zéro (voir section IV.1). La plasticité serait alors sûrement déclenchée dans un premier temps dans le cuivre. La configuration avec le dipôle de marches dans le cuivre et une surface d'argent plane permet d'envisager cette possibilité d'une plasticité intervenant d'abord dans le cuivre.

Pour les systèmes contenant une interface COC, la réponse plastique du film bimétallique à la contrainte appliquée est similaire quel que soit le site de nucléation de la première dislocation. Les mécanismes de maclage décrits dans la partie IV.2.1 sont observés : le mécanisme de rebond S_R aux surfaces, le mécanisme d'extension S_J à partir des sites de nucléation formés par l'intersection des joints de macle et des surfaces, et le mécanisme I de nucléation depuis l'interface. Selon la surface à laquelle le dipôle de

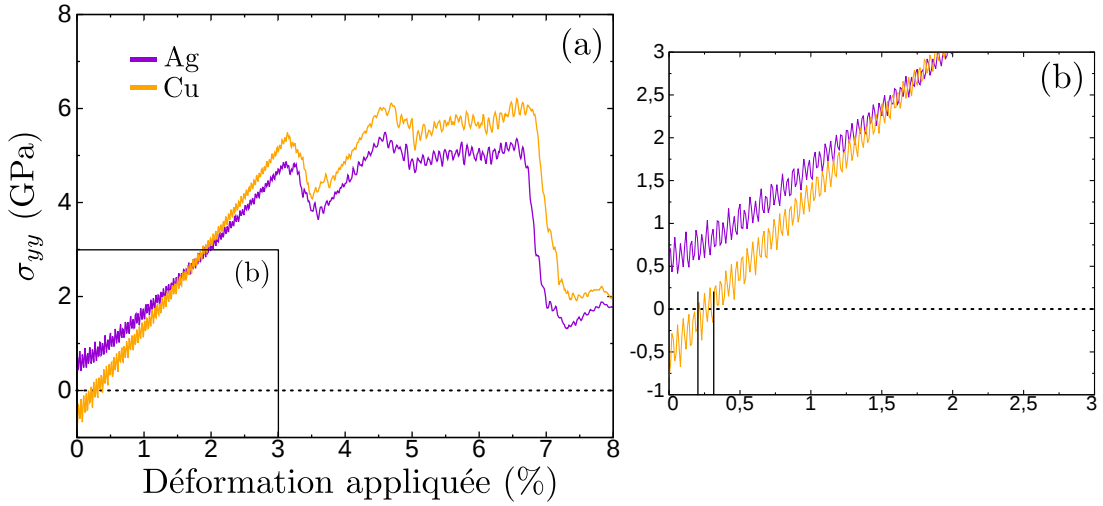

Figure IV.9 – (a) Évolution de la contrainte dans la couche d'argent (en violet) ainsi que dans la couche de cuivre (en jaune) au cours de la déformation appliquée. (b) Zoom montrant la déformation résiduelle dans la couche de cuivre, à partir de cette courbe cette déformation est estimée à ∼0,26% (±0,05%).

marches a été introduit, la séquence de maclage peut être différente : S_RI où S_RS_JI. On a vu dans la partie IV.2.1 que lorsque le dipôle de marches est introduit à la surface de l'argent, les deux séquences opèrent de façon équiprobable. On fait le même constat dans le cas où les marches sont introduites sur les deux surfaces, puisqu'alors seule la marche sur la surface de l'argent est activée. En revanche, dans le cas où la marche de surface est introduite seulement à la surface du cuivre, la séquence de maclage S_RI est observée dans 100% des cas testés (10 simulations). On peut également constater dans ce cas qu'après le premier mécanisme de rebond, la macle formée est généralement plus grande. En effet, la contrainte relaxée plastiquement est alors légèrement plus importante à cause d'une limite d'élasticité plus haute et donc une contrainte élastique accumulée plus importante. Le lien entre la taille de la macle formée et la séquence de maclage observée sera détaillé dans la partie IV.4.2.3.

Pour le système contenant une interface HT, le début de la plasticité est également très peu influencé par le lieu de nucléation de la première dislocation. Les dislocations partielles de Shockley sont toujours nucléées à partir des marches de surface, glissent à travers la couche de cuivre ou d'argent du film, et sont stoppées et stockées à l'interface. Lorsque les marches ont été introduites aux deux surfaces, deux partielles de Shockley sont

formées, d'abord dans l'argent, puis dans le cuivre. Les événements plastiques subséquents sont alors similaires à ceux présentés dans la partie IV.2.2, avec notamment la nucléation d'une dislocation de Lomer depuis l'interface. Cependant, cette dernière n'est formée que dans la couche d'argent, l'interaction de la partielle de Shockley initialement formée dans le cuivre avec l'interface ne conduisant pas à la nucléation d'une dislocation de Lomer. Lorsque les marches sont introduites seulement à la surface du cuivre, le premier mécanisme correspond également à la nucléation d'une partielle de Shockley depuis la marche de surface ; cette partielle est alors stoppée et stockée à l'interface. Puis, lorsque la contrainte accumulée (élastiquement) devient suffisamment importante, une nouvelle partielle de Shockley est nucléée à partir d'un site aléatoire sur la surface de l'argent. Cette partielle traverse alors la couche d'argent et atteint l'interface où son interaction avec les dislocations d'épitaxie donne lieu à une dislocation de Lomer dans l'argent et une autre dislocation partielle de Shockley dans le cuivre selon le mécanisme vu dans la partie IV.2.2.

IV.4 Rôle des dislocations d'épitaxie sur le maclage mécanique

Nous avons pu constater que l'interface joue un rôle important sur la formation et l'extension des macles de déformation. Pour rappel, nous avons observé depuis l'interface «heterotwin» et pour différentes configurations, la nucléation de partielles de Shockley, ainsi qu'un mécanisme de maclage opérant depuis l'interface «cube on cube». Dans cette partie, nous allons décrire en détail ces mécanismes.

IV.4.1 Mécanisme de nucléation de dislocations de Lomer - interface HT

L'interface «heterotwin» étant très similaire à un joint de macle, on a pu constater à plusieurs reprises (voir sections IV.2.2 et IV.3) la nucléation de dislocations de Lomer depuis l'interface bimétallique. On a vu dans le chapitre III que les dislocations de Lomer peuvent être à l'origine de la nucléation de macles, ce que l'on a observé pour les systèmes bimétalliques comme pour les systèmes monométalliques. En revanche le mécanisme prin-

cipal entraînant la nucléation des dislocations de Lomer est ici différent de celui vu dans le chapitre III.

Mécanisme de nucléation d'une dislocation de Lomer à partir d'une dislocation d'épitaxie.

Ici la dislocation de Lomer est formée depuis l'interface suite à l'interaction d'une seule partielle de Shockley nucléée dans l'argent, avec une dislocation d'épitaxie (figure IV.10.a), suivant la réaction :

$$\begin{array}{ccccc} \frac{1}{6}\left[211\right]_{Ag} & + & \frac{1}{6}\left[2\bar{1}\bar{1}\right]_{Ag} & \rightarrow & \frac{2}{3}\left[100\right]_{Ag}, \\ D\beta_{Ag} & + & B\delta_{Ag} & \rightarrow & \frac{2}{3}BD/AC_{Ag}, \end{array} \tag{IV.4}$$

formant une dislocation $\frac{2}{3}BD/AC_{Ag}$, bloquée à l'interface (figure IV.10.b). À plus forte déformation, cette dislocation se dissocie suivant la réaction :

$$\begin{array}{ccccccccc} \frac{2}{3}\left[100\right]_{Ag} & \rightarrow & \frac{1}{2}\left[0\bar{1}\bar{1}\right]_{Ag} & + & \frac{1}{6}\left[\bar{2}\bar{1}\bar{1}\right]_{Cu} & + & \frac{1}{6}\left[2\bar{1}\bar{1}\right]_{Ag} & + & D_{res}, \\ \frac{2}{3}BD/AC_{Ag} & \rightarrow & BD_{Ag} & + & \beta D_{Cu} & + & B\delta_{Ag} & + & D_{res}, \end{array} \tag{IV.5}$$

où BD_{Ag} est la dislocation de Lomer glissant dans la couche d'argent, βD_{Cu} est une dislocation partielle de Shockley glissant dans la couche de cuivre, $B\delta_{Ag}$ est la dislocation d'épitaxie initiale qui a été reformée et enfin D_{res} correspond à une dislocation résiduelle avec un petit vecteur de Burgers, bloquée à l'interface (figure IV.10.c).

Ce mécanisme entraîne donc directement la nucléation d'une partielle de Shockley, depuis l'interface, dans la couche de cuivre, et peut servir de support pour la formation d'une macle.

Mécanisme de nucléation d'une dislocation de Lomer à partir d'une super partielle.

Le mécanisme $L_{2\langle 112\rangle}$ décrit dans le chapitre précédent et faisant intervenir deux dislocations partielles de Shockley, est également observé dans les systèmes bimétalliques. Cependant, ce mécanisme $L_{2\langle 112\rangle}$ opère ici de façon quasi anecdotique. En effet, sur un échantillon statistique de 10 simulations (toutes avec la même configuration de départ), ce mécanisme n'a été observé que deux fois. Il se produit alors généralement aux fortes déformations, simultanément avec plusieurs autres mécanismes.

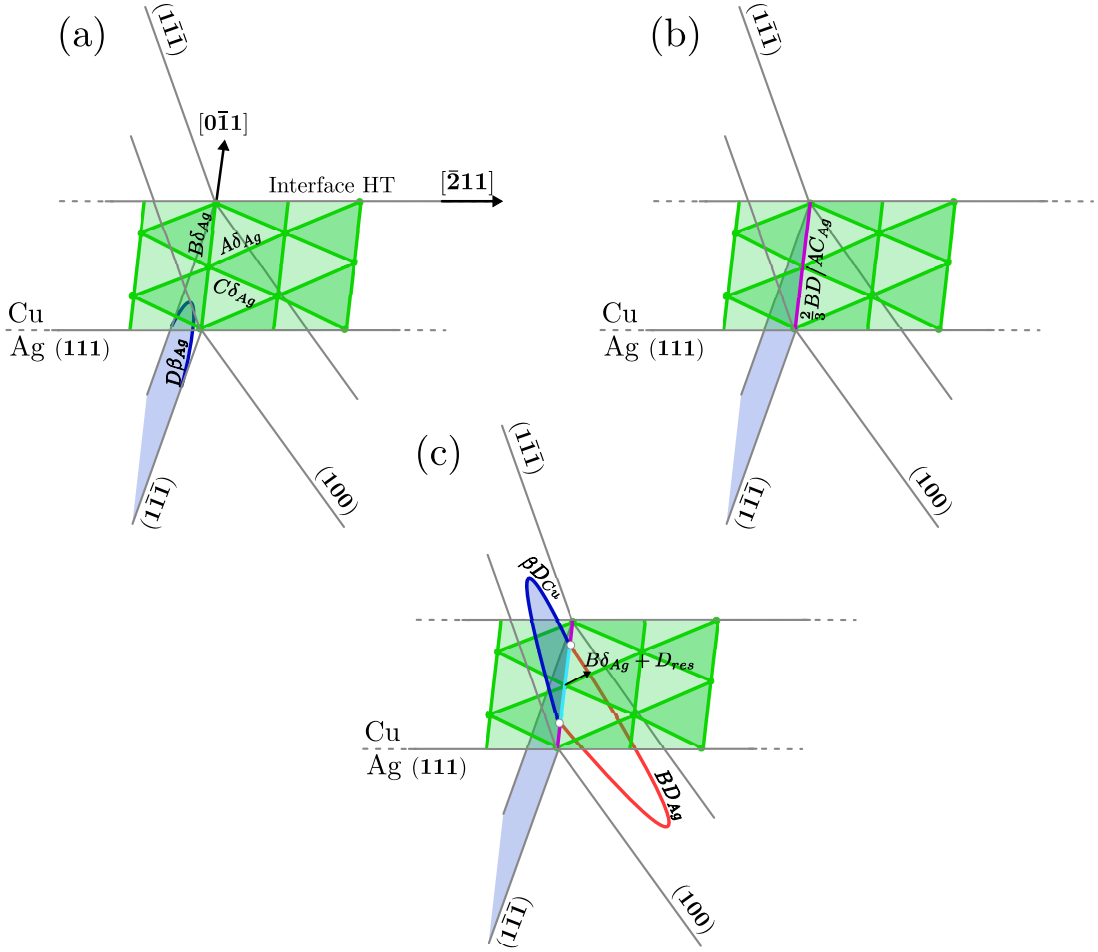

Figure IV.10 – Vue schématique de l'interaction d'une dislocation partielle de Shockley avec une dislocation d'épitaxie, entraînant la formation d'une dislocation de Lomer dans l'argent et d'une dislocation partielle de Shockley dans le cuivre.

Discussion.

Il faut également noter que, dans nos systèmes, les dislocations de Lomer ne sont formées que dans la couche d'argent. En effet, la dissociation donnée par l'équation IV.5, n'a jamais été observée lorsque la première partielle de Shockley est formée dans la couche de cuivre (voir section IV.3). De même, le mécanisme $L_{2\langle 112\rangle}$ observé dans les systèmes bimétalliques n'aboutit pas à la formation d'une dislocation de Lomer dans le cuivre, mais seulement dans la couche d'argent. Pourtant, ce mécanisme $L_{2\langle 112\rangle}$ a été observé dans le cas de systèmes monométalliques pour les deux matériaux (chapitre III).

Dans la plupart des cas contenant une interface HT, les interactions dislocation-interface engendrent la nucléation de dislocations de Lomer. Dans le chapitre précédent, nous avons montré que ces dislocations pouvaient agir comme sources de dislocations partielles de Shockley, soit indirectement en créant une nouvelle marche de surface (activable sous contrainte mécanique), soit directement en se dissociant partiellement. Ce dernier mécanisme a tendance à se produire très fréquemment dans l'argent et le cuivre, à cause de leur énergie de défaut d'empilement faible, et contribuer à la formation de macles. Ici, la présence de dislocations de Lomer explique donc la présence de macles dans l'argent. Dans le cuivre en revanche, les macles sont principalement issues de la nucléation de partielles de Shockley depuis l'interface, le défaut d'empilement intrinsèque formé servant de support pour la formation de macles.

Pour conclure, l'interface HT intervient directement dans la nucléation de partielles de Shockley (susceptible d'entraîner la formation de macles) ou indirectement en engendrant la nucléation de dislocations de Lomer (propice à la nucléation de dislocations partielles de Shockley, voire de macles).

IV.4.2 Mécanisme d'extension d'une macle à partir d'une interface COC

Le paragraphe précédent décrit comment les dislocations d'épitaxie d'une interface HT entraînent la nucléation de macle. Dans cette partie, nous allons voir comment les dislocations d'épitaxie d'une interface COC, perméable aux dislocations, interviennent dans le mécanisme d'extension (ou d'épaississement) d'une macle déjà formée.

IV.4.2.1 Rotation et contrainte projetée à l'interface

La formation de macles (par l'intermédiaire du mécanisme de rebond par exemple), combinée aux conditions aux limites périodiques, induit une rotation globale du film (θ^{tot}) (figure IV.11.a et IV.11.b). La contrainte de cisaillement projetée dans le plan de l'interface, qui est initialement proche de 0 GPa, augmente alors suffisamment pour activer le glissement des dislocations d'épitaxie le long de l'interface, jusqu'à ce qu'elles soient stoppées au joint de la macle formée.

Indépendamment des conditions aux limites périodiques, la partie maclée a elle aussi subi une rotation de 19,47° par rapport à l'axe $X = [01\bar{1}]$, de sorte que le plan de l'interface

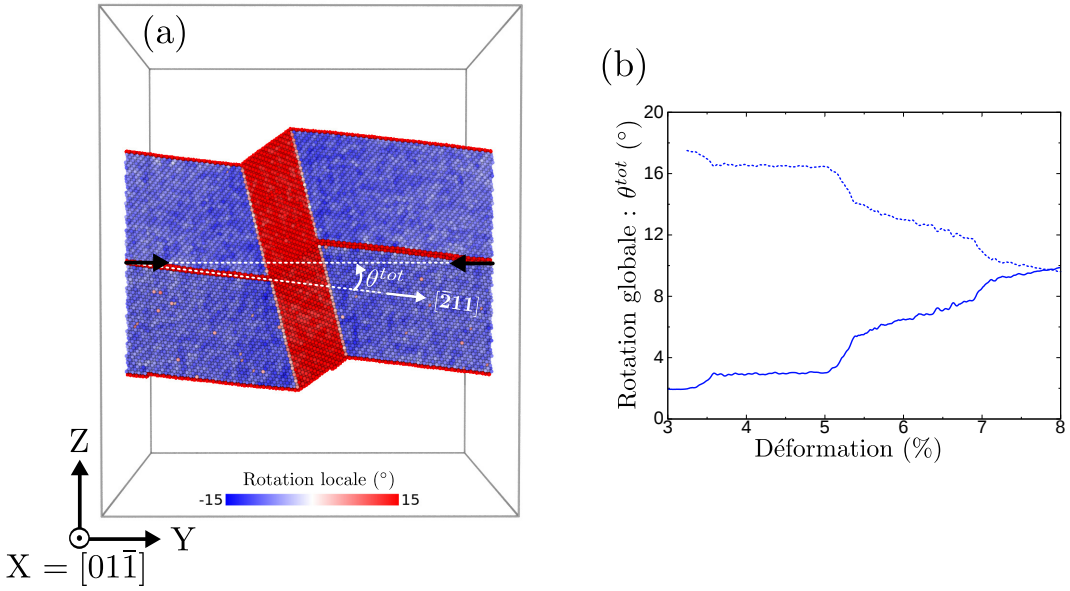

Figure IV.11 – (a) Film mince bimétallique Cu/Ag contenant une interface COC et déformé plastiquement par maclage. On voit que tout le film a subi une rotation autour de l'axe $X = \langle 01\bar{1} \rangle$ d'un angle θ^{tot}. Les atomes sont colorés en fonction de la rotation de leur environnement local θ_i (par rapport à une configuration initiale non déformée, voir l'annexe A). Les flèches noires correspondent à l'axe de compression et la flèche blanche à la direction $[\bar{2}11]$ contenue dans le plan de l'interface. (b) Évolution de la rotation globale θ^{tot} du film (ligne pleine) et de la rotation dans la partie maclé $19{,}47° - \theta^{tot}$ (ligne en pointillé) au cours de la déformation.

dans la partie maclée est tourné de 19,47° par rapport au plan (XY) initial (figure IV.11.a et b). Cependant, la nature de l'interface après maclage reste de type $\{111\}$. Wang et al. ont également montré que l'interface restait inchangée après maclage, en considérant des partielles de Shockley purement coin (dans notre cas leur vecteur de Burgers est $\overrightarrow{b} = \frac{1}{6}[211]$ ou $D\beta$ en notation de Thompson) [8]. La nature des dislocations d'épitaxie reste également inchangée. Ainsi le motif triangulaire formé par les trois dislocations partielles de Shockley ($(\delta A)^T$, $(\delta B)^T$ et $(\delta C)^T$) est conservé. Comme on peut le voir sur la figure IV.12.a, dans la partie maclée le motif a subi une rotation de 180° autour de l'axe [211] et a été translaté d'une demi périodicité suivant la direction $[01\bar{1}]$. Dans la macle, la rotation de l'interface conduit à une contrainte de cisaillement projetée non nulle dans le plan de l'interface et provoque également le glissement des dislocations d'épitaxie

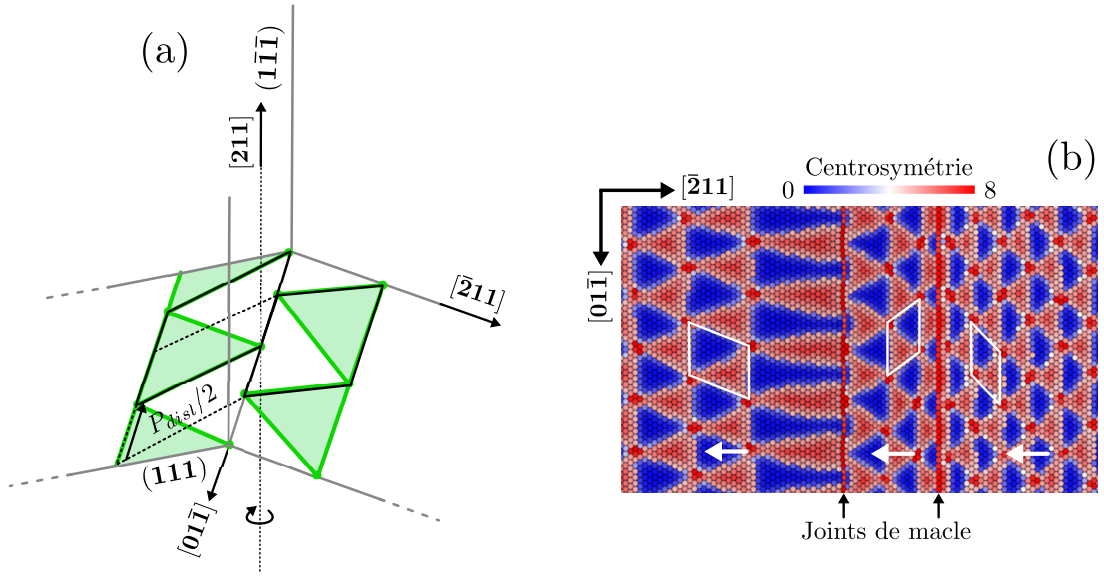

Figure IV.12 – (a) Schéma montrant l'évolution du motif formé par les dislocations d'épitaxie après le passage de la macle. Le motif subit une rotation de 180° autour de l'axe [211] et est translaté d'une demi-période suivant la direction [01$\bar{1}$]. (b) Vue de dessus des atomes de cuivre et d'argent le long de l'interface. Une distorsion du réseau est observé suite à la mise en mouvement (indiqué par les flèches blanches) des dislocations d'épitaxie. Les atomes sont colorés selon leur paramètre de centrosymétire comme sur la figure IV.1.b.

(figure IV.12.b). Ces dernières glissent jusqu'à être stoppées au second joint de macle. Le réseau de dislocation d'épitaxie sur l'interface devient alors très distordu (figure IV.12.b) : à gauche de la macle il est très étiré et à droite très comprimé (les dislocations d'épitaxie allant de la droite vers la gauche sur la figure IV.12.b).

IV.4.2.2 Interactions dislocations d'épitaxie - joint de macle

Les dislocations d'épitaxie, bloquées aux deux joints de macle, interagissent avec ceux-ci et le glissement complet, sous l'effet de la contrainte appliquée, d'un motif triangulaire (formé par les dislocations d'épitaxie) à travers ces joints de macle entraîne la formation de dislocations de macle. Si le résultat est similaire aux deux joints de macle, les mécanismes sont distincts. Nous avons donc analysé séparément les différentes étapes de ces deux mécanismes, l'un correspondant à l'entrée du motif triangulaire dans la macle et l'autre à sa sortie.

Entrée dans la macle.

Le premier mécanisme que nous allons décrire est celui qui permet la transmission complète du réseau triangulaire de dislocations d'épitaxie à travers le joint de macle, de la partie non maclée à la partie maclée.

Étape 0 (figure IV.13.a) : Pour cette description, nous avons fait le choix de considérer comme configuration initiale celle de la figure IV.13.a, qui n'est à priori pas la configuration de départ réelle. En effet, lorsque la macle est formée, la position du joint de macle ne correspond pas nécessairement parfaitement à un élément particulier du motif triangulaire comme sur la figure IV.13.a. La configuration réelle après le début du maclage (rebond) correspond plutôt à celle de la figure IV.13.d. Cependant, les dislocations d'épitaxie étant mobiles sous l'effet de la contrainte appliquée, on peut affirmer qu'à un certain moment pendant le processus, la configuration (a) sera atteinte sans l'émission de dislocation de maclage.

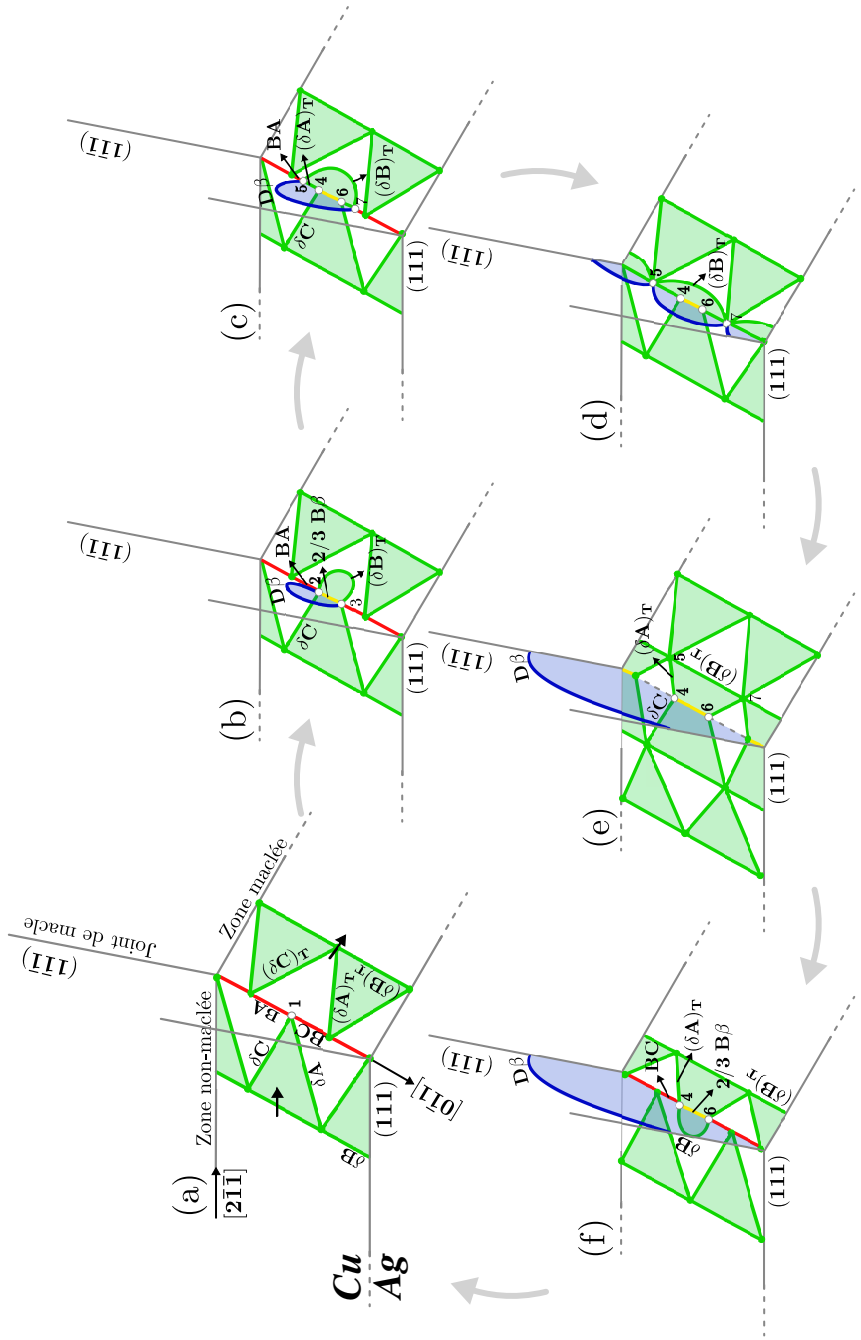

Figure IV.13 – Vue schématique de l'interaction des dislocations d'épitaxie avec un joint de macle, conduisant à la nucléation d'une partielle de macle dans la couche de cuivre. Voir le texte pour une description complète de ces mécanismes d'interaction. Les lignes en vert clair correspondent à des dislocations partielles de Shockley glissant le long du plan d'interface avec leurs défauts d'empilement intrinsèques associés (zones vertes), tandis que la ligne bleue correspond à la partielle de macle et la zone bleue au d'empilement intrinsèque associé. La ligne rouge représente une dislocation parfaite et la ligne jaune une dislocation résiduelle bloquée à l'intersection du joint de macle et de l'interface. Les flèches noires sur le schéma (a) indiquent le mouvement des dislocations d'épitaxie.

Étape 1 (figure IV.13.b) : En partant de la configuration (a) de la figure IV.13, le glissement des dislocations d'épitaxie à travers le joint de macle est d'abord accompagné d'une réaction au nœud n° 1, produisant, comme représenté sur la figure IV.13.b, une dislocation partielle de macle glissant dans la couche de cuivre le long du joint de macle ($D\beta$, ligne bleue), une dislocation d'épitaxie à l'interface dans la partie maclée ($(\delta B)^T$, ligne verte) constituant la base du motif triangulaire dans cette partie, et enfin une dislocation résiduelle à l'interface et bloquée au joint de macle ($2/3B\beta$, ligne jaune). Cette première réaction correspond aux équations suivantes :

$$\begin{array}{l}
\text{Nœud 2 :} \\
\begin{array}{ccccccccc}
\frac{1}{6}\left[11\bar{2}\right] & + & \frac{1}{2}\left[1\bar{1}0\right] & = & \frac{1}{6}\left[\bar{2}11\right]^T & + & \frac{2}{9}\left[1\bar{1}\bar{1}\right] & + & \frac{1}{6}\left[211\right], \\
\delta C & + & BA & = & (\delta B)^T & + & 2/3B\beta & + & D\beta.
\end{array} \\
\text{Nœud 3 :} \\
\begin{array}{ccccccccc}
\frac{1}{6}\left[1\bar{2}1\right] & + & \frac{1}{2}\left[10\bar{1}\right] & = & \frac{1}{6}\left[\bar{2}11\right]^T & + & \frac{2}{9}\left[1\bar{1}\bar{1}\right] & + & \frac{1}{6}\left[211\right], \\
\delta A & + & BC & = & (\delta B)^T & + & 2/3B\beta & + & D\beta.
\end{array}
\end{array} \tag{IV.6}$$

Les nœuds 2 et 3 (figure IV.13.b), résultant de la dissociation du nœud 1 (figure IV.13.a), se déplacent alors suivant la direction $\left[01\bar{1}\right]$, le long des deux dislocations parfaites (BA et BC, segments rouges), bloquées à l'intersection entre le joint de macle et l'interface bimétallique.

Étape 2 (figure IV.13.c et d) : La dislocation partielle de macle $D\beta$ et la dislocation d'épitaxie $(\delta B)^T$ continuent de s'étendre à partir des nœuds 2 et 3, jusqu'à ce que ces derniers se dissocient pour donner les nœuds 4 et 5 pour le nœud 2 et les nœuds 6 et 7 pour le nœud 3, comme représenté sur la figure IV.13.c. Aux nœuds 5 et 7, la dislocation partielle de macle $D\beta$ et la dislocation d'épitaxie $(\delta B)^T$ continuent de s'étendre, entraînant le glissement des nœuds 5 et 7 le long de l'intersection formée entre le joint de macle et l'interface bimétallique, jusqu'à ce que, par périodicité du motif, les nœuds 5 et 7 se recombinent (figure IV.13.d). Les dislocations parfaites BA et BC (en rouge sur les figures IV.13.a, b et c) ont alors totalement disparu. La dislocation de macle $D\beta$ peut alors glisser librement le long du joint de macle et la dislocation d'épitaxie $(\delta B)^T$ peut glisser librement dans la partie maclée le long de l'interface. Par ailleurs, les dissociations des nœuds 2 et 3 laissent entre les nœuds 4 et 5 une dislocation partielle de Shockley $(\delta A)^T$

(respectivement entre les nœuds 6 et 7, une dislocation $(\delta C)^T$). Cette étape correspond aux équations suivantes :

$$\begin{array}{lllllll}
\text{Nœud 5 :} & & & & & & \\
\frac{1}{6}\left[1\bar{2}1\right] & + & \frac{1}{2}\left[1\bar{1}0\right] & = & \frac{1}{6}\left[\bar{2}11\right]^T & + & \frac{1}{6}\left[211\right], \\
(\delta A)^T & + & BA & = & (\delta B)^T & + & D\beta. \\
\text{Nœud 7 :} & & & & & & \\
\frac{1}{6}\left[11\bar{2}\right] & + & \frac{1}{2}\left[10\bar{1}\right] & = & \frac{1}{6}\left[\bar{2}11\right]^T & + & \frac{1}{6}\left[211\right], \\
(\delta C)^T & + & BC & = & (\delta B)^T & + & D\beta.
\end{array} \tag{IV.7}$$

$$\begin{array}{lllll}
\text{Nœud 4 :} & & & & \\
\frac{1}{6}\left[11\bar{2}\right] & = & \frac{1}{6}\left[1\bar{2}1\right]^T & + & \frac{2}{9}\left[1\bar{1}\bar{1}\right], \\
\delta C & = & (\delta A)^T & + & 2/3B\beta. \\
\text{Nœud 6 :} & & & & \\
\frac{1}{6}\left[1\bar{2}1\right] & = & \frac{1}{6}\left[11\bar{2}\right]^T & + & \frac{2}{9}\left[1\bar{1}\bar{1}\right], \\
\delta A & = & (\delta C)^T & + & 2/3B\beta.
\end{array} \tag{IV.8}$$

Les trois dislocations partielles de Shockley $(\delta B)^T$, $(\delta A)^T$ et $(\delta C)^T$ forment alors les prémices du motif triangulaire dans la partie maclée.

Étape 3 (figure IV.13.e) : La totalité du motif fauté traverse ensuite le joint de macle en déplaçant les nœuds 4 et 6 (figure IV.13.e), où les dislocations d'épitaxie δC et δA sont transmises, en laissant une dislocation $2/3B\beta$ au joint de macle et en formant les dislocations $(\delta A)^T$ et $(\delta C)^T$ qui peuvent glisser à l'interface dans la partie maclée (figure IV.13.e). Cette transmission correspond aux équations IV.8 (ci-dessus).

Étape 4 (figure IV.13.f) : Une fois que les dislocations, δC et δA ont été complètement transmises à travers le joint de macle, la dernière partielle de Shockley δB (fermant le motif triangulaire de défaut d'empilement dans la partie non maclée) interagit aux nœuds 4 et 6 avec la dislocation résiduelle $2/3B\beta$ pour former respectivement les dislocations parfaites BC et BA à l'intersection du joint de macle et de l'interface (figure IV.13.f). L'annihilation de la dernière partielle de Shockley δB du motif permet

également l'extension des dislocations d'épitaxie $(\delta A)^T$ et $(\delta C)^T$ dans la macle. Cette étape correspond aux équations suivantes :

$$\begin{array}{lcccccc}
\text{Nœud 4 :} & & & & & & \\
\frac{1}{6}\left[\bar{2}11\right] & + & \frac{1}{2}\left[10\bar{1}\right] & = & \frac{1}{6}\left[1\bar{2}1\right]^T & + & \frac{2}{9}\left[1\bar{1}\bar{1}\right], \\
\delta B & + & BC & = & (\delta A)^T & + & 2/3B\beta. \\
\text{Nœud 6 :} & & & & & & \\
\frac{1}{6}\left[\bar{2}11\right] & + & \frac{1}{2}\left[1\bar{1}0\right] & = & \frac{1}{6}\left[11\bar{2}\right]^T & + & \frac{2}{9}\left[1\bar{1}\bar{1}\right], \\
\delta B & + & BA & = & (\delta C)^T & + & 2/3B\beta.
\end{array} \tag{IV.9}$$

Lorsque la partielle de Shockley δB a complètement disparu, les nœuds 4 et 6 se recombinent, ce qui referme alors le motif triangulaire de défaut d'empilement dans la partie maclée. La globalité du réseau triangulaire de dislocations d'épitaxie a alors entièrement traversé le joint de macle et les deux dislocations parfaites BC et BA ont été reformées. Ainsi, le nœud 1 est reformé et le système se retrouve dans la configuration de départ de la figure IV.13.a. Cependant une partielle de macle a été émise dans la couche de cuivre. La macle s'est alors étendue d'un plan atomique par rapport au début du mécanisme.

Sortie de la macle.

Toujours du fait de la contrainte projetée non nulle sur le plan de l'interface, un deuxième processus opère au niveau du second joint de macle. Ce mécanisme correspond au glissement complet du réseau triangulaire de dislocations d'épitaxie à travers le joint de macle, de la partie maclée à la partie non maclée (figure IV.14).

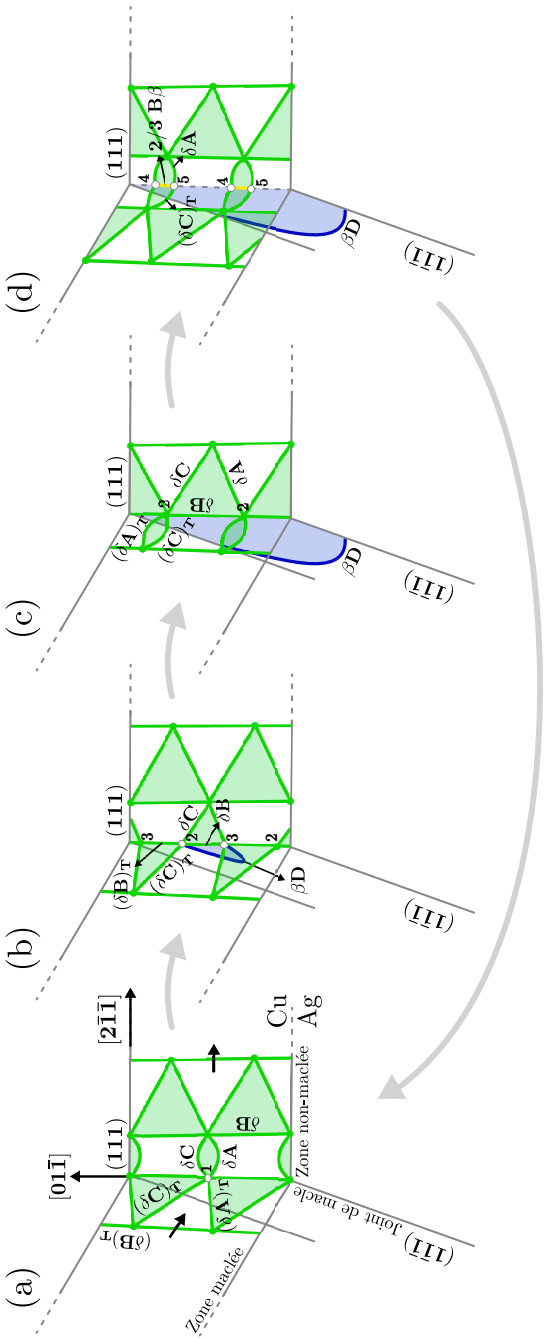

Figure IV.14 – Vue schématique de la sortie de la macle du motif formé par les dislocations d'épitaxie, conduisant à la nucléation d'une partielle de macle dans la couche d'argent (voir le texte pour plus de détails). Le code couleur des lignes est le même que celui de la figure IV.13. Les flèches noires sur la configuration (a) indiquent la direction du mouvement des dislocations d'épitaxie.

Pour décrire ce mécanisme, nous avons de nouveau choisi une configuration de départ qui n'est pas forcément la configuration initiale observée dans nos simulations (configuration (a) sur la figure IV.14). Cependant cette configuration sera obligatoirement atteinte durant le processus.

Étape 1 (figure IV.14.a et b) : Partant de cette configuration, le nœud 1 se dissocie en deux nœuds (2 et 3), produisant une partielle de macle βD (ligne bleue sur la figure IV.14.b), glissant le long du joint macle dans la couche d'argent et une dislocation d'épitaxie δB, à l'intersection du joint de macle et de l'interface (direction $[01\bar{1}]$). Ces deux dislocations relient les nœuds 2 et 3. Cela correspond aux équations suivantes aux nœuds 2 et 3 :

$$\begin{array}{l}
\text{Nœud 2 :} \\
\begin{array}{ccccccccc}
\frac{1}{6}\left[\bar{2}11\right] & + & \frac{1}{6}\left[\bar{2}11\right]^T & = & \frac{1}{6}\left[11\bar{2}\right] & + & \frac{1}{6}\left[11\bar{2}\right]^T & + & \frac{1}{6}\left[\bar{2}\bar{1}\bar{1}\right], \\
\delta B & + & (\delta B)^T & = & \delta C & + & (\delta C)^T & + & \beta D.
\end{array} \\
\text{Nœud 3 :} \\
\begin{array}{ccccccccc}
\frac{1}{6}\left[\bar{2}11\right] & + & \frac{1}{6}\left[\bar{2}11\right]^T & = & \frac{1}{6}\left[1\bar{2}1\right] & + & \frac{1}{6}\left[1\bar{2}1\right]^T & + & \frac{1}{6}\left[\bar{2}\bar{1}\bar{1}\right], \\
\delta B & + & (\delta B)^T & = & \delta A & + & (\delta A)^T & + & \beta D.
\end{array}
\end{array} \tag{IV.10}$$

La dislocation βD s'étend, en déplaçant les nœuds 2 et 3 le long de la direction $\left[01\bar{1}\right]$, jusqu'à ce que, par périodicité, le nœud 2 se recombine avec l'image périodique du nœud 3 (figure IV.14.c). La dislocation d'épitaxie $(\delta B)^T$ a alors complètement disparu et la partielle de macle βD ainsi que la dislocation d'épitaxie δB peuvent glisser librement respectivement le long du joint de macle dans l'argent et le long de l'interface dans la partie non maclée.

Étape 2 (figure IV.14.c et d) : Lors de cette étape, les dislocations d'épitaxie $(\delta A)^T$ et $(\delta C)^T$ sont complètement transmises à travers le joint de macle via le nœud 2 (alors équivalent au nœud 3) qui se dissocie en deux nœuds 4 et 5. Cela donne dans la partie non maclée δC au nœud 4 et δA au nœud 5. Cette dissociation s'accompagne de la formation d'une dislocation résiduelle $2/3B\beta$ (joignant les nœuds 4 et 5) bloquée à

l'intersection du joint de macle et de l'interface. Les équations correspondantes sont :

$$\begin{array}{lcll}
\text{Nœud 4 :} & & & \\
\frac{1}{6}\left[11\bar{2}\right] & = & \frac{2}{9}\left[1\bar{1}\bar{1}\right] & + \frac{1}{6}\left[1\bar{2}1\right]^T, \\
\delta C & = & 2/3B\beta & + (\delta A)^T. \\
\text{Nœud 5 :} & & & \\
\frac{1}{6}\left[1\bar{2}1\right] & = & \frac{2}{9}\left[1\bar{1}\bar{1}\right] & + \frac{1}{6}\left[11\bar{2}\right]^T, \\
\delta A & = & 2/3B\beta & + (\delta C)^T.
\end{array} \tag{IV.11}$$

Une fois que les dislocations $(\delta A)^T$ et $(\delta C)^T$ ont été transmises, tout le motif triangulaire de dislocations d'épitaxie a traversé le joint de macle, les nœuds 4 et 5 se sont recombinés et la dislocation résiduelle $2/3B\beta$ a disparu. Le système est alors de nouveau dans la configuration de la figure IV.14.a. Cependant, une partielle de macle a été formée dans l'argent permettant ainsi l'extension de la macle d'un plan atomique.

IV.4.2.3 Taille critique et activation

Le processus d'extension d'une macle à partir d'une interface COC ayant été identifié, nous avons cherché à déterminer les paramètres importants pour son déclenchement.

Le premier paramètre évident à prendre en compte est la contrainte projetée sur le plan de l'interface. En effet, elle doit être suffisamment importante pour provoquer le glissement des dislocations d'épitaxie. Nous avons donc tracé l'évolution, au cours de la déformation, de cette contrainte de cisaillement projetée sur le plan de glissement dans la partie non maclée (courbe pleine sur la figure IV.15.a) ainsi que dans la partie maclée (courbe en pointillé sur la figure IV.15.a). Pour calculer cette grandeur, on s'est servi de la rotation globale du film calculée par notre algorithme TwinID (voir annexe A). À partir de cette rotation, l'évolution du facteur de Schmid sur les dislocations d'épitaxie peut être suivie au cours de la déformation, de même que la contrainte projetée sur le plan de l'interface en multipliant la contrainte globale par le facteur de Schmid. Sur le graphique, on a reporté les simulations effectuées en considérant différents sites de nucléation de la première dislocation (voir section IV.3). De plus, pour une même configuration nous avons reporté plusieurs simulations, correspondant à plusieurs distributions initiales des vitesses. Pour tous les tests, on peut constater une augmentation quasi-constante de la contrainte de cisaillement projetée sur le plan de l'interface dans la partie non maclée, puis au delà de

6,5%, elle chute brutalement à cause de l'activation d'autres systèmes de glissement. En deçà de cette valeur toutes les courbes se superposent. Cependant, comme nous l'avons vu dans les sections IV.2.1 et IV.3, le mécanisme d'extension de macle intervient pour différentes valeurs de déformation, et donc pour différentes valeurs de la contrainte de cisaillement projetée sur le plan de l'interface. Il semble donc que ce paramètre ne soit pas le paramètre limitant pour engendrer ce mécanisme et que la contrainte de cisaillement projetée sur le plan de l'interface soit, après le premier mécanisme de maclage (rebond), déjà suffisamment importante pour provoquer le glissement des dislocations d'épitaxie. Il en est de même dans la partie maclée où dès l'apparition de la macle, la contrainte de cisaillement projetée dans le plan de l'interface est très importante (jusqu'à sept fois plus importante que dans la partie non maclée).

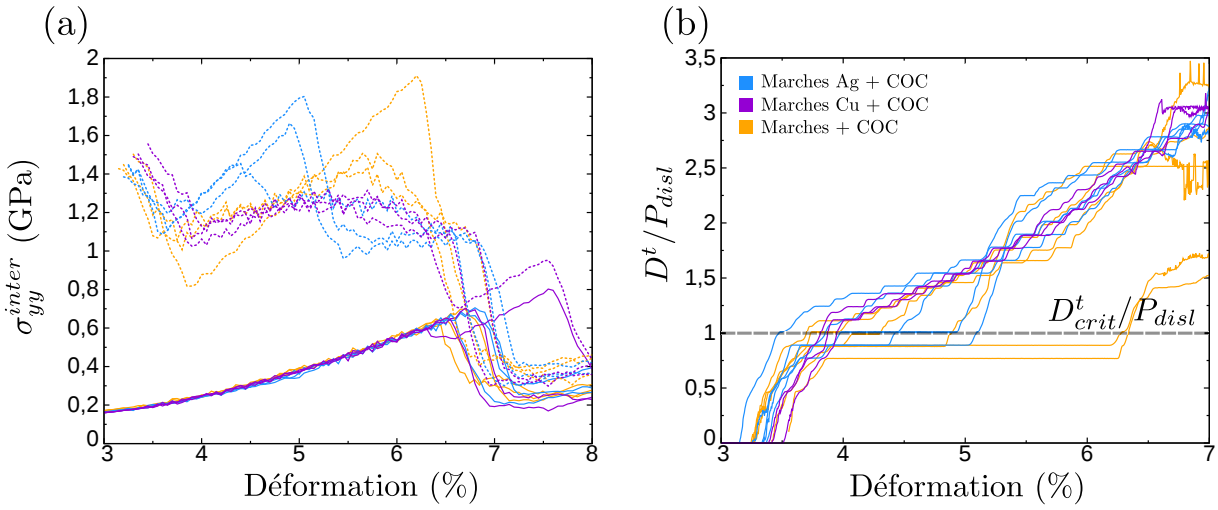

Figure IV.15 – (a) Évolution de la contrainte de cisaillement projetée sur le plan de l'interface dans la partie non maclée (lignes pleines) et dans la partie maclée (lignes en pointillé), au cours de la déformation. (b) Évolution de la taille des macles formées, rapportée à la périodicité du réseau de dislocations d'épitaxie P_{disl}, en fonction de la déformation appliquée. Les systèmes considérés correspondent à un film mince bimétallique Cu/Ag contenant une interface COC et un dipôle de marches de surface positionné à la surface de l'argent (courbes bleues), à la surface du cuivre (courbes violettes) ou aux deux surfaces (courbes jaunes).

Nous avons donc considéré un autre paramètre pouvant avoir un rôle important : la taille de la macle. Ainsi, nous avons reporté l'évolution de la taille des macles D^t pour

plusieurs configurations correspondant à différentes séquences de maclage (voir sections IV.2.1 et IV.3), en fonction de la déformation appliquée (figure IV.15.b). Sur ces courbes la séquence S_RS_JI est caractérisée par la présence d'un plateau, alors que les courbes sans plateau sont caractéristiques de la séquence S_RI (voir section IV.3).

On voit clairement qu'il existe une taille de macle critique permettent de distinguer les courbes avec plateau (S_RS_JI) des courbes sans plateau (S_RI). Cette taille critique de macle, déterminée à partir des simulations [4], vaut D^t_{crit} =1,9 nm (elle est représentée par la ligne en pointillé sur la courbe IV.15.b). Cette valeur correspond (presque) exactement à la périodicité du réseau de dislocations d'épitaxie suivant la direction $Y = [\bar{2}11]$ (P_{disl} sur la figure IV.1.b). Il y a donc deux cas possibles : si $D^t > P_{disl}$ après le premier mécanisme de maclage par rebond, alors la séquence de maclage sera S_RI ; sinon ($D^t < P_{disl}$) la séquence de maclage sera S_RS_JI.

Ainsi, si la taille de la macle est trop faible après le premier mécanisme de rebond (mécanisme S_R), la plasticité s'arrête. A plus forte déformation, l'extension de la macle reprend alors à partir des surfaces (mécanisme S_J), la taille de la macle formée dépasse alors la période du réseau de dislocations d'épitaxie et le processus d'extension de la macle à partir de l'interface se produit (mécanisme I). Ceci correspond à la séquence de maclage S_RS_JI.

Ce postulat d'une taille critique de macle pour déclencher le mécanisme d'extension de la macle a été conforté grâce à une simulation où deux dipôles de marches de surface ont été introduits dans le système. Dans ce cas, deux macles sont formées via le mécanisme de rebond, toutes les deux de taille équivalente au cas où une seule macle est formée. La rotation induite par la présence de ces macles (et donc la contrainte de cisaillement projetée sur le plan de l'interface) est alors bien plus importante que dans le cas où une seule macle a été formée. Cependant, l'extension de la macle à partir de l'interface n'est pas observée. En effet, la taille des macles formées est ici inférieure à une période du réseau des dislocations d'épitaxie. Ce n'est qu'à plus forte déformation et après l'extension des macles à partir des surfaces, que l'extension des macles par un mécanisme de nucléation de partielles depuis l'interface opère. Cette simulation confirme donc l'idée que c'est la taille de macle par rapport à la taille du motif du réseau de dislocations d'épitaxie qui est le paramètre déterminant pour déclencher ce mécanisme.

4. L'épaisseur de la macle est ici calculée à partir de la position des deux joints de macle suivant la direction $Y = [\bar{2}11]$, non normale au joint de macle.

Cette taille de macle critique explique également pourquoi, lorsque le dipôle de marches est introduit à la surface du cuivre, la séquence de maclage observée est toujours S_RI. En effet, dans ce cas, la limite d'élasticité est légèrement plus importante que lorsque les marches sont introduites à la surface de l'argent. La contrainte emmagasinée élastiquement est alors également plus importante. Ceci entraîne lors de la plasticité la formation d'une macle légèrement plus grande, de sorte que sa taille dépasse toujours la périodicité du réseau de dislocations d'épitaxie suivant la direction $Y = [\bar{2}11]$.

IV.5 Conclusion

La première chose que soulignent nos résultats, est la très grande différence entre une interface COC et une interface HT quant à la perméabilité des dislocations et des macles de déformation. Cette différence de perméabilité a déjà été mise en évidence par An et al., qui ont montré que l'interface COC était complètement perméable aux macles à l'inverse de l'interface HT qui intervient comme un fort obstacle à leur propagation [9].

Cette différence de perméabilité se répercute dans nos systèmes sur la taille des macles formées et leur nombre. En présence d'une interface HT, peu perméable aux dislocations, la taille des macles formées est plus faible qu'en présence d'une interface COC ; cependant bien plus de macles sont formées. L'interface HT semble donc plus propice à la nucléation de macles que l'interface COC. En revanche, elle n'intervient pas dans l'extension des macles, qui dans nos systèmes s'effectue principalement depuis les surfaces. En présence d'une interface COC, c'est l'inverse : la nucléation de la macle opère depuis la surface et l'extension depuis l'interface, lorsque la taille de la macle dépasse la périodicité du réseau de dislocations d'épitaxie.

Dans des systèmes multicouches expérimentaux, les deux types d'interface coexistent et pourraient conduire à favoriser le maclage, avec la nucléation de nombreuses macles pilotée par les interfaces HT et leur extension permise par les interfaces COC.

Nous avons expliqué la nucléation de plusieurs macles pour les systèmes contenant une interface HT par différents mécanismes impliquant souvent la formation et le glissement de dislocations de Lomer. Nos simulations ont notamment permis d'identifier un mécanisme inédit entraînant la formation de dislocations de Lomer et mettant en jeu les dislocations d'épitaxie. Ainsi, les dislocations partielles de Shockley peuvent être nucléées depuis l'interface et conduire à la formation de nouvelles macles sans intervention directe

des surfaces libres.

Dans nos simulations, la nucléation de macles directement depuis les interfaces COC n'a pas été observée, certainement parce que les marches de surface sont des sources plus efficaces de dislocations partielles. Cependant, dans des systèmes multicouches expérimentaux, les interfaces contiennent généralement des défauts interfaciaux, tels que des disclinaisons [132], qui peuvent être à l'origine de la nucléation de macles directement depuis l'interface [9]. Li et Chew [117] ont également montré, dans leurs simulations atomistiques de systèmes multicouches Cu/Ag, la nucléation de macles depuis les interfaces COC, suite à leur ondulation causée par une sollicitation en traction suivant un axe normal à l'interface.

Pour les systèmes comportant une interface COC, nous avons mis en évidence et détaillé chaque étape d'un mécanisme d'extension de macles impliquant les dislocations d'épitaxie. Nous avons montré que ce mécanisme n'est possible qu'à condition que les dislocations d'épitaxie puissent être mises en mouvement, c'est à dire seulement lorsque la contrainte de cisaillement projetée dans l'interface est non nulle. Dans nos simulations, l'axe de sollicitation et les conditions aux limites sont particulières et telles que cette condition est toujours réalisée. Dans les systèmes étudiés expérimentalement, les conditions de chargement sont diverses et il est tout à fait envisageable que ce mécanisme d'extension puisse également avoir lieu. Même lorsque l'axe de sollicitation est initialement normal au plan de l'interface, il suffit d'une légère inclinaison de ce dernier pour qu'une contrainte de cisaillement projetée non nulle agisse sur les dislocations d'épitaxie. Ceci peut se produire par exemple dès qu'une macle se forme et entraîne une légère distorsion du cristal, comme on peut l'observer dans l'étude expérimentale menée par An et al. [9].

Nos simulations ont également mis en évidence l'existence d'une taille critique de macle, corrélée à la périodicité du réseau de dislocations d'épitaxie, pour que le mécanisme d'extension de macles depuis une interface COC intervienne. L'existence d'une tel critère semble inédit et reste à être confirmé expérimentalement. Or la périodicité du réseau de dislocations d'épitaxie étant directement liée au ratio des paramètres de maille des deux matériaux considérés, nos résultats suggèrent la possibilité d'un contrôle de la taille des macles formées à partir du choix des matériaux composant le système bimétallique.

Conclusion générale et perspectives

Dans cette thèse, nous avons réalisé une étude sur le maclage mécanique dans des nano-structures CFC, par l'intermédiaire de simulations atomistiques classiques. Nous nous sommes intéressés à la nucléation, l'extension et la propagation de macles de déformation dans une configuration modèle de film mince autoporté. L'impact de défauts de surface (marches monoatomiques) et de différents types d'interface (joint de macle ou bien interface entre deux métaux) au sein du film mince a été examiné.

La confrontation de deux configurations, contenant et ne contenant pas des marches de surface, nous a permis de mettre en évidence l'influence d'une contrainte importante sur le maclage mécanique. En effet, la concentration de la contrainte au niveau d'un défaut de surface entraîne la diminution de la limite d'élasticité, permettant l'apparition du premier événement de plasticité pour une déformation appliquée plus faible. Dans nos simulations, cela se traduit par la formation de plus grandes macles, car moins de systèmes de glissement sont activés, limitant ainsi les mécanismes d'interaction dislocations-macle, néfastes à l'extension d'une macle.

Suivant l'idée soulevée en introduction, proposant le maclage mécanique comme alternative pour l'élaboration de nano-structures plus complexes (à partir de matériaux nano-maclés ou nano-lamellaires), une grande partie de cette étude s'est focalisée sur l'impact d'une interface (joint de macle ou interface bimétallique Cu/Ag) sur le maclage mécanique. Nos résultats mettent en évidence plusieurs mécanismes d'interaction des macles

avec l'interface considérée, ainsi que le rôle que jouent ces mécanismes dans la nucléation, la propagation et l'extension de macles. La plus ou moins grande perméabilité de l'interface aux dislocations (et plus particulièrement aux dislocations partielles de Shockley) influe considérablement sur ces mécanismes, ce qui se traduit par des macles de plus ou moins grande taille et plus ou moins nombreuses.

La présence d'une interface bimétallique de type «heterotwin», ou d'un joint de macle cohérent, induit globalement des macles de petite taille (par rapport à une interface bimétallique de type «cube on cube» ou à un film mince sans joint de macle), la faible perméabilité de l'interface empêchant la propagation et l'extension de la macle dans le film. Cependant, on constate la formation d'un plus grand nombre de macles dans les systèmes contenant ce type d'interface. Ceci est à relier à un mécanisme récurrent pour ces systèmes : la nucléation de dislocations de Lomer. Nous avons montré que ces dislocations, issues de l'interaction de dislocations ou de macles avec les interfaces, peuvent être à l'origine de la formation de macles de déformation selon divers mécanismes.

Pour les systèmes avec une interface bimétallique de type «cube on cube», les dislocations d'épitaxie jouent un rôle particulier sur l'extension des macles. Dans ce cas, la rotation générée par la formation d'une macle de déformation provoque la mise en mouvement des dislocations d'épitaxie. Quand ces dislocations rencontrent un joint de macle, les mécanismes d'interaction entraînent la nucléation, depuis l'interface, de dislocations partielles de macle. Une étude statistique sur plusieurs simulations nous a permis d'identifier un critère indispensable, outre le mouvement des dislocations d'épitaxie, au déclenchement de ce processus d'extension : la taille de la macle formée au préalable. En effet, ce processus d'extension intervient seulement lorsque la taille de la macle est supérieure à la périodicité du réseau de dislocations d'épitaxie, elle-même directement liée au désaccord paramétrique entre les deux matériaux.

On peut donc imaginer deux stratégies pour contrôler la taille et la densité des macles formées lors du maclage mécanique de systèmes bimétalliques. D'une part, on peut chercher à piloter la proportion de l'une ou l'autre des interfaces, sachant que les deux interfaces COC et HT coexistent dans les multicouches Cu/Ag expérimentales. L'interface HT étant favorable à la nucléation de macles et l'interface COC à leur extension, on pourrait ainsi tenter de gouverner la taille et la densité des macles formées. D'autre part, on pourrait faire varier la taille du réseau de dislocations d'épitaxie, permettant le déclenchement ou non de l'extension de la macle depuis l'interface COC. Cela serait possible en consi-

dérant d'autres couples de matériaux, la taille du réseau de dislocations d'épitaxie étant directement liée au désaccord paramétrique entre les deux matériaux considérés.

Enfin, nous avons comparé les mécanismes de maclage et les volumes des macles de déformation formées dans des configurations similaires pour trois matériaux CFC (aluminium, cuivre et argent). Notre étude montre notamment que les mécanismes impliquant les dislocations de Lomer semblent particulièrement dépendants du matériau. Nous avons également réexaminé différents paramètres de «maclabilité», liés aux propriétés intrinsèques des matériaux que sont les énergies de défaut d'empilement et les barrières associées. En cohérence avec la géométrie et l'orientation de nos systèmes, nous avons défini un nouveau paramètre basé sur la compétition entre la nucléation de macles et la nucléation de dislocations partielles isolées. Ce paramètre semble particulièrement bien adapté aux films minces que nous avons considérés. Notre étude souligne ainsi l'importance de bien définir le domaine d'applicabilité de ce genre de paramètre, qui peut considérablement dépendre des détails des mécanismes mis en jeu, et donc être lié aux spécificités du système considéré.

Pour aller plus loin sur ce point, d'autres matériaux pourraient être considérés comme le nickel ou l'or, afin d'étendre la gamme des énergies de défaut d'empilement et barrières associées [43] et valider ce paramètre de maclabilité. Par ailleurs, une étude statistique pour affiner ce paramètre de maclabilité pourrait être réalisée, de sorte à ce qu'il rende compte également des fréquences d'occurrence des différents mécanismes.

Pour les systèmes bimétalliques, le choix de différents couples de matériaux est également envisagé. Le système Al/Cu, par exemple, permettrait, dans la géométrie que nous avons considérée, de coupler la forte tendance de l'aluminium a être déformé plastiquement par maclage, avec le cuivre pour lequel la formation de macles de déformation est plus difficile. Pour ce système, le mécanisme d'extension de macles à partir de l'interface est également attendu, car l'aluminium ayant un paramètre de maille similaire à celui de l'argent, le réseau de dislocations d'épitaxie du système Al/Cu est très similaire à celui du système Ag/Cu [133]. Le choix d'un couple différent de matériaux permettrait également de faire varier la taille du réseau de dislocations d'épitaxie, que l'on a vu être un paramètre crucial pour le déclenchement du mécanisme d'extension de macles à partir de l'interface COC.

De plus, si le rôle de la vitesse de déformation a été abordé dans notre étude, une continuation de ce travail pourrait être d'utiliser des méthodes de dynamique molécu-

laire accélérée, afin de gagner quelques ordres de grandeur sur les échelles de temps et de s'approcher des vitesses de déformation expérimentales. Ceci permettrait notamment d'examiner la persistance ou non, pour de plus faibles vitesses de déformation, des mécanismes de plasticité observés durant cette thèse.

Enfin, les techniques expérimentales permettant de plus en plus l'élaboration de systèmes modèles semblables à ceux des simulations atomistiques, l'étude expérimentale des mécanismes d'interaction d'une macle avec une interface constitue une des perspectives de ce travail [67, 134].

Annexe A

Algorithme d'identification de macle

Dans le cadre de cette thèse, un programme permettant l'identification de macles a été développé. Ce programme nous permet d'extraire le nombre de macles dans un système, le nombre d'atomes au sein de chaque macle ainsi que le nombre d'atomes présents sur un joint de macle. Nous détaillons ici comment est calculée la rotation locale pour un atome, ainsi que la méthode pour identifier les macles et les joints de macles.

Système de référence et table des premiers voisins
Le code a tout d'abord besoin d'un système de référence correspondant à un état initial ; ce système doit être défini par l'utilisateur. Pour que le code fonctionne correctement et que la valeur de la rotation globale ne soit pas faussée, ce système doit de préférence être non déformé et ne doit pas contenir de dislocations. Une recherche des premiers voisins est ensuite réalisée sur ce système de référence. Le but de la table ainsi créée est de répertorier pour un atome et autour d'un rayon de coupure fixé par l'utilisateur, le nombre de voisins qu'il comptabilise et le numéro (ID) attribué par LAMMPS pour chacun de ces voisins. Cette table des premiers voisins nous sera utile par la suite, notamment pour le calcul de la matrice de transformation et la recherche de macles.

Calcul du tenseur des déformations et de la matrice de rotation
Pour déterminer la matrice de rotation locale pour chaque atome du système, on commence par déterminer la matrice de transformation F^i, permettant de passer du système de référence au système déformé à traiter. Pour cela, on considère un atome i du système et ses premiers voisins j (leur nombre est de $N = 12$ pour un matériau CFC). On repère

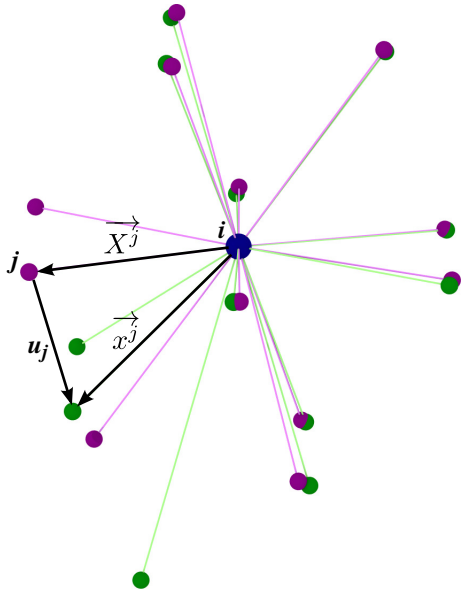

Figure A.1 – Configuration de référence (en violet) et configuration déformée (en vert) de l'environnement immédiat d'un atome i.

les atomes voisins dans les deux configurations (référence et déformée) par les vecteurs qui les relient à l'atome i. On définit ainsi, pour le voisin j :

- $\overrightarrow{X^j}$ dans la configuration de référence,
- $\overrightarrow{x^j}$ dans la configuration déformée.

On cherche le tenseur F^i de transformation qui permet de passer de la configuration initiale à la configuration déformée :

$$x_k^j = F_{kl}^i . X_l^j \tag{A.1}$$

x_k^j et X_l^j étant respectivement les composantes k et l de $\overrightarrow{x^j}$ et $\overrightarrow{X^j}$.

Si la déformation est homogène dans l'environnement immédiat de l'atome i, F_{kl} est le même pour tous les atomes voisins j ; cependant ce cas est peu fréquent. Il faut donc chercher F_{kl}^i qui convient le mieux pour tous les atomes voisins de l'atome i en faisant une régression linéaire. F_{kl}^i sera alors assimilé au tenseur des gradients de déformation pour l'atome i. On cherche donc à minimiser :

$$\sum_{j \in N} (F_{kl}^i . X_l^j - x_k^j)^2 = \chi^i \tag{A.2}$$

Ce qui revient à résoudre :

$$\frac{\delta\chi^i}{\delta F^i_{\alpha\beta}} = \sum_{j\in N} 2.X^j_\beta(F^i_{\alpha\gamma}.X^j_\gamma - x^j_\alpha) = 0 \tag{A.3}$$

$$\sum_{j\in N} X^j_\beta(F^i_{\alpha\gamma}.X^j_\gamma) = \sum_{j\in N} X^j_\beta x^j_\alpha \tag{A.4}$$

Soit en notation matricielle :

$$F^i.D^i = A_i \tag{A.5}$$

Avec $D^i_{\gamma\beta} = \sum_{j\in N} X^j_\beta.X^j_\gamma$ et $A^i_{\alpha\beta} = \sum_{j\in N} X^j_\beta.x^j_\alpha$.

Finalement, on obtient :

$$F^i = A^i.(D^i)^{-1} \tag{A.6}$$

La matrice de transformation calculée (F^i) contient les rotations et les déformations. Pour extraire la matrice de déformation et la matrice de rotation associée à un atome i, on fait une décomposition polaire :

$$F^i = R^i.U^i \tag{A.7}$$

où R^i est le tenseur de rotation et U^i est le tenseur des déformations pures droit. La matrice de rotation correspondant à une rotation d'angle θ_i autour d'un axe de rotation orienté suivant le vecteur unitaire $\overrightarrow{u}(u_x, u_y, u_z)$ s'écrit :

$$R^i = \begin{pmatrix} u_x^2(1-c)+c & u_xu_y(1-c)-u_zs & u_xu_z(1-c)+u_ys \\ u_xu_y(1-c)+u_zs & u_y^2(1-c)+c & u_yu_z(1-c)-u_xs \\ u_xu_z(1-c)-u_ys & u_yu_z(1-c)+u_xs & u_z^2(1-c)+c \end{pmatrix} \tag{A.8}$$

avec $s = \sin(\theta_i)$ et $c = \cos(\theta_i)$ La rotation locale θ_i associée à un atome i est ainsi calculée à partir de la trace de R^i :

$$\cos(\theta_i) = \frac{1}{2}\left[tr\left(R^i\right) - 1\right] \tag{A.9}$$

Cette méthode implique que $\theta_i \in [0, \pi]$; pour connaître le signe θ_i, il faut s'intéresser à l'orientation de l'axe de rotation. On calcule alors $\overrightarrow{u}(u_x, u_y, u_z)$ à partir de R^i, ce qui

nous permet de déterminer $\sin(\theta_i)$ de la façon suivante :

$$\sin(\theta_i) = \frac{R_i[3,2] - R_i[2,3]}{2u_x} \quad \text{ou} \tag{A.10}$$

$$\sin(\theta_i) = \frac{R_i[1,3] - R_i[3,1]}{2u_y} \quad \text{ou} \tag{A.11}$$

$$\sin(\theta_i) = \frac{R_i[2,1] - R_i[1,2]}{2u_z} \tag{A.12}$$

Connaissant ainsi le signe de $\sin(\theta_i)$, il est possible d'en déduire le signe de θ_i, donc la valeur de θ_i est dans l'intervalle $[-\pi, \pi]$.

Rectification de la rotation locale

Un problème apparaît quand les conditions aux limites périodiques sont utilisées. En effet, celles-ci engendrent une rotation globale du système (θ^{tot}), pour accommoder la déformation plastique. Nous devons donc déterminer la valeur de cette rotation globale et la retrancher à la rotation locale θ_i déterminée précédemment pour chaque atome i du système.

Pour calculer θ^{tot}, on part du principe que les atomes qui n'ont pas été parcourus par un défaut, ont une rotation sensiblement égale à cette rotation globale. En effet, la rotation locale θ_i peut être définie comme la somme de la rotation globale θ^{tot} et de la rotation liée à la plasticité θ_i^{plast} :

$$\theta_i = \theta^{tot} + \theta_i^{plast} \tag{A.13}$$

Ainsi, un atome i dans un environnement non déformé plastiquement ($\theta_i^{plast} = 0$) aura une rotation locale égale à la déformation globale.

Il faut donc répertorier tous les atomes qui ont été parcourus par un défaut. Pour cela on utilise le facteur CNA (Common Neighbor Analysis, J. D. Honeycutt et H. C. Andersen, J. Phys. Chem., 1987 et A. Stukowski, Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 2012) pour chaque atome du système. Dès lors que le facteur CNA d'un atome n'est pas celui correspondant à un cristal CFC parfait, à savoir $f_i^{CNA} = 1$, on garde cet atome en mémoire. La rotation globale θ^{tot} est calculée en faisant la moyenne

des rotations θ_i sur les n atomes identifiés comme n'ayant pas été *parcourus* par un défaut.

$$\theta^{tot} = \frac{\sum_{i}^{n} \theta_i}{n} \quad \text{pour i tel que} \quad f_i^{CNA} = 1 \tag{A.14}$$

On peut alors rectifier la valeur de la rotation locale, en faisant la différence entre θ_i et θ^{tot}.

$$\theta_i^{plast} = \theta_i - \theta^{tot} \tag{A.15}$$

Cette méthode impose un suivi régulier du paramètre CNA, donc l'utilisation d'une suite de fichiers avec un pas de temps très court entre chacun des deux fichiers. En effet, si cet intervalle est trop grand, il est possible qu'entre deux pas de temps des événements de plasticité aient lieu dans le système. Les atomes alors traversés par une dislocation auront un facteur CNA égal à 1 mais θ_i^{plast} sera différent de zéro. Dans ce cas, le calcul de la moyenne pour déterminer θ^{tot} sera faussé et les valeurs des rotations locales aussi. Il faut donc un pas de temps court de sorte que tous les atomes traversés par une dislocation puissent être identifiés via leurs facteur CNA.

Recherche de macle

Pour la recherche de macle, il faut partir du fait que la formation d'une macle engendre, pour un atome i, une rotation $\theta_i^{plast} = 19,47°$ et que le facteur CNA est celui d'un CFC parfait ($f_i^{CNA} = 1$). L'idée est donc de s'intéresser aux atomes pour lesquels ces deux critères sont vérifiés.

On commence par créer une table mémoire (T^{mem}) dans laquelle seront stockés les ID (identifiants) de tous les atomes traités. Cette table est nécessaire pour éviter de retraiter un atome déjà examiné par l'algorithme et ainsi limiter le temps de calcul. On crée également une fonction (f^{twin}) dont le but est de renvoyer, pour chaque atome i, l'ID de la macle à laquelle il appartient. Si l'atome n'appartient pas à une macle $f_i^{twin} = 0$. On scanne ensuite aléatoirement les atomes du système jusqu'à trouver un atome respectant les conditions suivantes :

- $19,47° - \frac{\Delta\theta}{2} \leq \theta_i^{plast} \leq 19,47° + \frac{\Delta\theta}{2}$
- $f_i^{CNA} = 1$
- $i \notin T^{mem}$

avec $\Delta\theta$ choisi par l'utilisateur ($\Delta\theta = 4°$ par défaut).

A partir de là, l'atome i est considéré comme faisant partie d'une nouvelle macle. On lui attribue donc un ID, correspondant à une nouvelle macle ($f_i^{twin} = ID$) puis il est enregistré dans la table mémoire ($i \in T^{mem}$).

L'opération suivante consiste à chercher tous les autres atomes susceptibles d'être dans cette même macle. Pour cela, partant de l'atome i, on recherche de proche en proche si d'autres atomes sont dans la configuration type macle (figure A.2). Pour effectuer cette recherche, on crée une table de travail (T^{work}) dans laquelle seront enregistrés les atomes à traiter ; l'atome i est donc enregistré en premier et T^{work} ne contient dans un premier temps que l'atome i. On scanne ensuite les atomes j voisins de l'atome i afin de déterminer s'ils appartiennent à la macle. L'atome j est considéré comme faisant partie de la macle s'il répond aux conditions suivantes :

- $19,47° - \frac{\Delta\theta}{2} \leq \theta_j^{plast} \leq 19,47° + \frac{\Delta\theta}{2}$
- $|\theta_j^{plast} - \theta_i^{plast}| \leq 0,5°$
- $f_j^{CNA} = 1$
- $f_j^{twin} \neq ID$

Les deux premiers critères sont des critères sur la rotation, le premier critère étant le même que précédemment et le deuxième restrictif. Le troisième est un critère sur le CNA et le dernier critère permet d'éviter de traiter un atome plusieurs fois. Dès lors, qu'un atome voisin j valide ces critères, il est enregistré dans la table de travail. On l'enregistre également dans la table mémoire et on lui attribue l'ID de la macle ($f_j^{twin} = ID$). De cette manière, on remplit la table T^{work} seulement avec des atomes identifiés comme appartenant à la macle et dont il faudra analyser les premiers voisins.

Cette opération est donc répétée jusqu'à ce que plus aucun atome ne soit ajouté à la table de travail ; on a alors identifié tous les atomes de la macle. On peut donc chercher aléatoirement un autre atome du système correspondant à une configuration type macle et faire une nouvelle recherche de proche en proche. Lorsque tous les atomes du système ont été testés, toutes les macles ont été trouvées et l'ID de la dernière macle identifiée correspond au nombre de macles dans le système.

Recherche de joint de macle

Une fois que les macles ont été identifiées, on détermine les joints de macle qui leur sont associés.

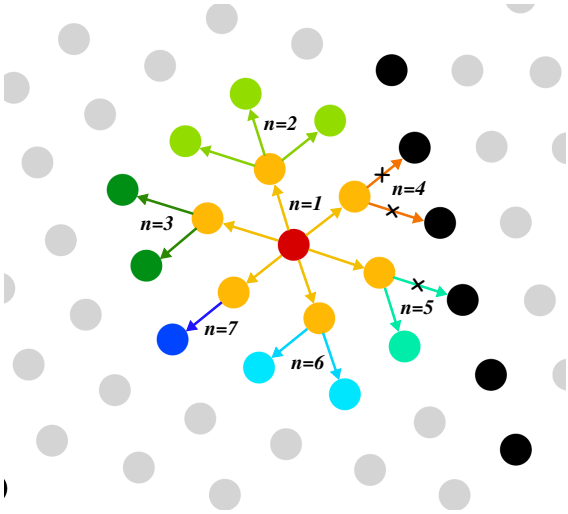

Figure A.2 – Sept premières itérations de l'identification d'une macle via l'algorithme de recherche de proche en proche. En gris clair les atomes du cristal parfait (CNA=1) et en noir les atomes appartenant à une faute d'empilement (CNA=2).

On crée une fonction (f^{tb}) dont le but est de renvoyer pour chaque atome i appartenant à un joint de macle, l'ID de la macle du joint considéré. Par exemple, si l'atome i est sur le joint de la macle dont l'ID vaut 2 alors $f_i^{tb} = 2$. En revanche, si l'atome n'est pas sur un joint de macle alors $f_i^{tb} = 0$.

Dans un premier temps, on s'intéresse seulement aux atomes dont le facteur CNA est égal à 2, correspondant à une structure locale hexagonale compacte et donc à une faute d'empilement. Ces atomes peuvent appartenir soit à un défaut d'empilement intrinsèque, généré par le passage d'une seule partielle de Shockley, soit à un joint de macle (et/ou un défaut d'empilement extrinsèque), généré par le passage successif de plusieurs partielles de Shockley. Pour différencier ces deux cas, il suffit de rechercher si une macle a été identifiée à proximité directe de cet atome ; si c'est le cas on lui affecte l'ID de la macle à proximité ($f_i^{tb} = ID$).

Pour être considéré comme appartenant à un joint de macle, un atome i doit donc d'une part respecter $f_i^{CNA} = 2$. D'autre part, il doit exister au moins deux atomes voisins de i, appartenant à une macle et deux autres atomes appartenant au cristal parfait non maclé. Ces conditions peuvent se traduire de la façon suivante :

- $f_j^{twin} \neq 0$ et $f_j^{CNA} = 1$ pour les atomes appartenant à la macle ;
- $f_j^{twin} = 0$ et $f_j^{CNA} = 1$ pour les atomes appartenant au cristal parfait non maclé.

Ainsi, la plupart des atomes présents sur un joint de macle ont pu être identifiés. Cependant cette méthode ne permet pas d'identifier les atomes présents sur une partielle qui glisserait le long du joint macle, le facteur CNA de ces atomes étant égal à 5 car la structure est localement désordonnée.

Corrections

Un problème majeur de cette méthode d'identification de macles est qu'une dislocation parfaite engendre sur les atomes qu'elle traverse, une rotation similaire à celle générée par une macle. L'algorithme d'identification de macle risque donc d'identifier ces atomes comme appartenant à une macle. Une suite de corrections a donc été développée pour remédier à ce problème.

Un des premiers tests va être de compter le nombre d'atomes présents dans chacune des macles ; si celui est inférieur à une valeur fixée par l'utilisateur ($n_{twin}^{at} = 50$ par défaut) alors on considère que la macle est trop petite et elle est supprimée. Ce test permet de supprimer une bonne partie des atomes qui auraient pu être identifiés comme faisant partie d'une macle.

On impose un critère similaire pour les joints de macle : ceux-ci doivent contenir un nombre minimum d'atomes ($n_{tb}^{at} = 300$ par défaut).

Le test ultime consiste à chercher si une macle a un joint de macle qui lui est associé. Si ce n'est pas le cas, elle est supprimée de la liste des macles. De même, si un joint de macle n'a pas de macle associée, alors il est supprimé de la liste des joints de macle. Ainsi, il ne reste à la fin que les macles réelles et chaque macle a bel et bien un joint de macle associé.

Annexe B

Influence des conditions aux limites

Dans cette annexe, nous présentons les simulations effectuées pour tester différentes conditions aux limites, tailles de boîte et mises du système sous contrainte, dans le cas de systèmes monométalliques (aluminium seulement). Les résultats sont comparés à ceux du modèle standard décrit dans le chapitre II. Le lecteur est invité à se reporter à la figure II.8 pour la représentation du modèle considéré.

B.1 Application de la déformation

En simulation, la mise sous contrainte d'un système peut se faire de différentes façons. Nous avons donc testé plusieurs méthodes pour appliquer la déformation.

B.1.1 Suivant la direction (Oy)

Trois méthodes de déformation ont été envisagées suivant la direction (Oy). La première méthode que nous avons considérée est celle présentée dans la chapitre II (figure B.1.a). Les conditions aux limites périodiques alors utilisées, induisent lorsqu'une macle est formée, une rotation du système changeant la direction cristallographique de la contrainte appliquée au cours de la simulation. Afin d'analyser l'influence de cette rotation, nous avons testé des conditions aux limites non périodiques avec deux méthodes d'application de la déformation permettant d'éviter la rotation.

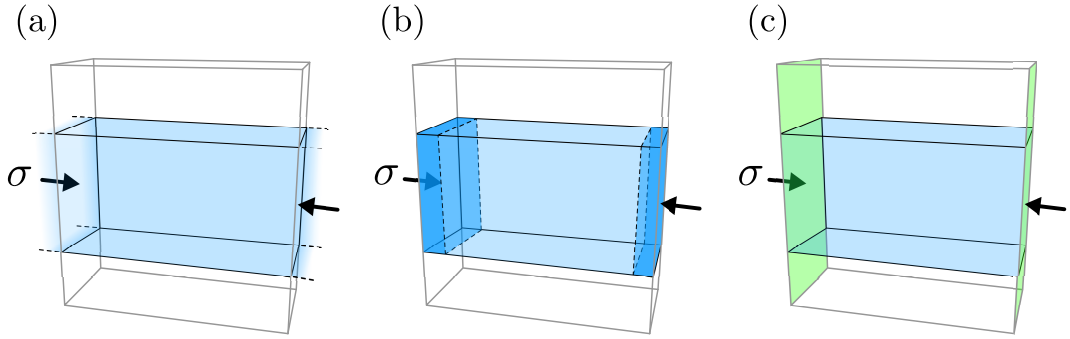

Figure B.1 – Schémas des trois méthodes de déformation utilisées. (a) Le film mince est déformé de manière homogène et des conditions aux limites périodiques sont appliquées suivant la direction (Oy). (b) Le film mince est déformé de manière homogène et la pression est maintenue en fixant les positions atomiques suivant la direction (Oy) dans une zone «tampon» (bleu foncé). (c) Le film mince est déformé de manière homogène et la pression est maintenue par des indenteurs plats (plans verts).

Conditions aux limites semi-fixes Dans ce cas, on introduit des surfaces libres sur chaque bord de boîte considéré, puis on crée une zone «tampon» où les positions atomiques sont bloquées suivant la normale à la direction (Oy) (figure B.1.b). Les deux autres directions de l'espace étant mobiles, le système peut ainsi être déformé plastiquement (par exemple par maclage) sans introduire de rotation. La déformation est appliquée de manière homogène dans le système ; cependant la contrainte n'est pas homogène dans le film. En effet, les positions atomiques en partie bloquées dans les zones «tampon», ces zones sont légèrement plus contraintes et peuvent agir comme site de nucléation de dislocations.

Avec des conditions aux limites semi-fixes, on a pu constater des mécanismes similaires à ceux présentés dans le chapitre III. Dans la configuration sans joint de macle initial, une macle est également formée depuis la marche de surface, suivant un mécanisme de rebond. Une analyse quantitative nous permet également d'affirmer que la taille de la macle formée est sensiblement la même que ce que nous avons présenté jusqu'à maintenant dans une configuration similaire. En revanche, la déformation induite par la présence de la macle n'induit pas de rotation. Dans la configuration avec un joint de macle initial, les mécanismes observés sont également similaires. Une macle est formée à partir de la marche introduite à la surface et une dislocation de Lomer résulte de l'interaction macle-joint de macle suivant le mécanisme $L_{2\langle 112\rangle}$. Par la suite, la dislocation de Lomer est également

susceptible d'engendrer la formation de macles toujours selon les mécanismes décrits dans le chapitre III.

Les conditions aux limites semi-fixes entraînent plusieurs artefacts, comme la formation de dislocations dans la zone tampon ou encore une concentration de la contrainte appliquée à l'interface des deux zones, induisant la nucléation de dislocations depuis cette interface. Cependant, elles permettent d'affirmer que la rotation globale du film observée jusqu'ici dans le système périodique n'a pas d'influence sur la taille et le mécanisme de maclage observé.

Indenteurs plats La dernière méthode testée utilise également des surfaces le long de (Oy). La déformation est ici aussi introduite de façon homogène, et pour la maintenir on se sert d'indenteurs plats, positionnés aux bords de la boite. Dans LAMMPS, ces indenteurs sont modélisés par un champ de force. Si on considère un atome i, lorsque celui-ci traverse le plan modélisant un indenteur (voir figure B.1.c), il est soumis à une force de rappel de type «ressort», telle que :

$$F_{indent}(r_i) = -Kr_i^2. \tag{B.1}$$

r_i étant la distance entre l'indenteur et l'atome i et K un coefficient assimilé à la raideur de l'indenteur. Si l'atome ne franchit pas le plan modélisant l'indenteur, il n'est soumis à aucune force de rappel. Le paramètre K doit être choisi avec précaution par l'utilisateur. En effet, s'il est pris trop petit l'indenteur sera «mou» et l'atome ne sera pas repoussé dans la boite de simulation. S'il est pris trop grand l'atome sera repoussé avec une vitesse trop importante, ce qui peut engendrer des contraintes importantes près de l'indenteur. Pour tester ce paramètre, on relève au cours du temps la position d'un atome initialement à 0,02 Å à l'intérieur de l'indenteur, puis on déplace l'indenteur de 0,1 Å tous les 100 pas d'intégration (figure B.2). Notre choix s'est porté sur une valeur de $K = 1000$ eV/Å^3, qui semble être le meilleur compromis entre les deux effets soulevés plus haut.

L'utilisation d'indenteurs plats et l'introduction de surfaces $(\bar{2}11)$ normales à (Oy) changent considérablement le site de nucléation des dislocations. Dans la configuration sans joint de macle initial, une macle est formée directement à partir d'une des surfaces $(\bar{2}11)$. Cette macle croît, dans un premier temps de sorte à réorienter la surface $(\bar{2}11)$, puis dans un second temps vers l'intérieur du film via un mécanisme de rebond aux surfaces

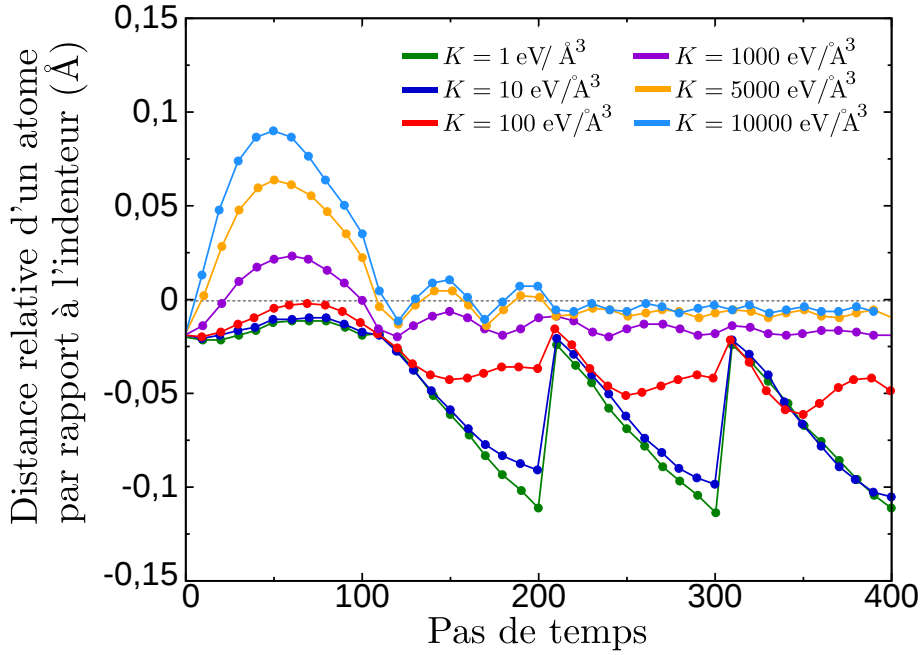

Figure B.2 – Suivi de la position d'un atome initialement à 0,02 Å à l'intérieur de l'indenteur pour différentes valeurs K. L'indenteur est déplacé de 0,1 Å tous les 100 pas d'intégration.

(111). À plus forte déformation, le film se tord complètement et les indenteurs ne sont plus en contact avec une surface plane. Dans la configuration avec un joint de macle initial, on observe la nucléation de deux macles depuis l'une des surfaces $(\bar{2}11)$ en contact avec l'indenteur. Une première est nucléée dans l'une des deux parties du cristal, et s'étend jusqu'au joint de macle initial induisant ainsi une légère rotation du film. Une deuxième macle est ensuite nucléée dans la deuxième partie du cristal depuis l'intersection entre le joint de macle et la surface. L'interaction de ces deux macles avec le joint de macle initial donne lieu, suivant le mécanisme $L_{2\langle 112\rangle}$, à une dislocation de Lomer dans chacune des parties du cristal. À plus forte déformation, on observe l'apparition d'une fissure à l'intersection des deux macles et du joint de macle.

Cette méthode de déformation induit des surfaces $(\bar{2}11)$ très énergétiques et un champ de déformation très vite inhomogène, dû à la perte de contact entre l'indenteur et une partie du film. Malgré cela, les mécanismes principaux identifiés dans le chapitre III sont tout de même observés. Ces mécanismes semblent donc très reproductibles et peu dépendants

des conditions aux limites et de la méthode de déformation.

B.1.2 Suivant la direction (Ox)

Suivant la direction (Oz) la présence de surfaces libres permet la relaxation de la contrainte engendrée par l'effet Poisson lors de la simulation. En revanche, pour la direction transverse (Ox), les conditions aux limites périodiques ne permettent pas nécessairement la relaxation de cet effet. Nous avons testé deux protocoles permettant de prendre en compte ou non l'effet Poisson. Lorsque la déformation de Poisson n'est pas prise en compte, l'intégrateur NVT est utilisé ce qui permet de fixer la taille de la boîte suivant (Ox). En revanche, lorsque la déformation de Poisson est prise en compte, on utilise l'intégrateur NPT avec comme condition de pression, sur les bords de boîte, 0 GPa suivant la direction (Ox). Ainsi, la taille de la boîte suivant cette direction est libre d'évoluer au cours de la simulation et la contrainte induite par effet Poisson peut alors être relaxée.

Dans les cas présentés jusqu'ici, la déformation de Poisson n'était pas relaxée. Nous avons donc réalisé des tests en tenant compte de cet effet pour des systèmes contenant ou non un joint de macle cohérent. Dans les deux cas les mêmes mécanismes sont observés, avec ou sans prise en compte de l'effet Poisson. En effet, ces mécanismes font intervenir essentiellement des dislocations dont le vecteur de Burgers n'a pas de composante suivant la direction (Ox) et dont le plan de glissement contient cette direction. Dès lors, la contrainte de cisaillement projetée pour ces systèmes de glissement ne change pas, que l'on considère ou non la déformation Poisson.

En relaxant l'effet Poisson, on peut cependant noter que la formation de dislocations parfaites dans les plans $(1\bar{1}1)$ et $(11\bar{1})$, qui ne contiennent pas la direction (Ox), est plus fréquente. Pour ces systèmes de glissement, la contrainte de cisaillement projetée est plus importante lorsque la déformation de Poisson est accommodée. Ces systèmes de glissement relaxent alors une certaine quantité de la contrainte appliquée. Cependant, cette quantité est surestimée dans notre modèle de film mince. En effet, lorsqu'une dislocation glisse sur un plan $(1\bar{1}1)$ ou $(11\bar{1})$ et qu'elle atteint un des bords de la boîte, elle est répétée sur un autre plan de glissement que celui d'origine (figure B.3). Dès lors, une même dislocation peut cisailler plusieurs plans de glissement et relâcher plus de contrainte que dans un système non périodique.

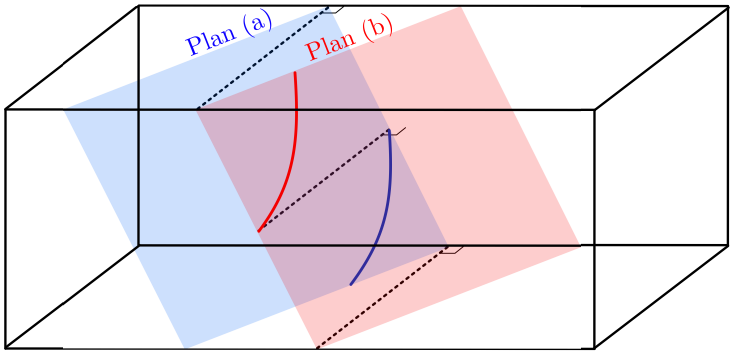

Figure B.3 – Schéma montrant une dislocation parfaite glissant sur un plan (a) (en bleu) traversant la boîte de simulation et reproduite par périodicité sur un plan (b) différent (en rouge).

B.2 Taille de boîte

Un autre paramètre important dans la conception d'un modèle de simulation est sa taille. Dans cette étude, plusieurs tailles de systèmes ont été testées, correspondant à différents facteurs d'aspect. Les différentes tailles de boîte de simulation sont répertoriées dans le tableau B.1. Le but de ces tests est de mettre en évidence l'influence de la taille de la boîte de simulation, suivant chacune des directions de l'espace, sur les mécanismes observés et ainsi choisir une taille de boîte optimale pour un temps de calcul raisonnable. Ces essais ont été réalisés pour un système monométallique, avec des conditions aux limites périodiques, contenant ou non un joint de macle initial. Ce que l'on constate de manière générale, c'est que la taille du système suivant les directions (Oy) et (Oz) n'a que très peu d'influence sur les mécanismes observés. Notre modèle est principalement sensible à la taille du cristal suivant la direction (Ox). En effet, si on considère une dislocation formée sous forme de demi-boucle depuis une marche de surface orientée suivant la direction (Ox), les portions latérales de la dislocation peuvent se recombiner par périodicité suivant (Ox), avant que le front de la dislocation (purement coin) atteigne la seconde surface. Il faut donc que la dimension L_X de la boîte de simulation soit suffisamment importante pour limiter ces recombinaisons par périodicité. On a également constaté que lorsqu'une dislocation partielle de Shockley est émise depuis une marche de surface orientée suivant la direction (Ox), la probabilité de former la dislocation de queue augmente avec L_X. En effet, dans la boîte de simulation la surface du défaut d'empilement intrinsèque laissé après le passage

de la partielle de Shockley de tête est plus importante pour des L_X plus grands, ce qui favorise la formation de la partielle de queue pour supprimer ce défaut. Cette tendance est principalement observée dans l'aluminium où l'énergie de défaut d'empilement intrinsèque est importante.

Système	L_X(nm)	L_Y(nm)	L_Z(nm)	H(nm)	n_{at}
1x1x1	17,1	39,0	42,0	21,0	∼868800
2x1x1	34,2	39,0	42,0	21,0	∼1731200
3x1x1	51,5	39,0	42,0	21,0	∼2596800
1x2,5x1	17,1	97,5	42,0	21,0	∼2164000
3x2x1	55,5	79,5	42,0	21,0	∼5155000
1x1x2	17,1	39,0	63,0	42,0	∼1731200

Tableau B.1 – Tableau récapitulatif des tailles de boîte considérées.

Annexe C

Rôle de l'orientation cristalline

L'orientation du cristal influe énormément sur le maclage mécanique. Dans notre modèle de film mince, deux paramètres vont jouer un rôle important : l'orientation du cristal par rapport à l'axe de déformation et la nature de la surface considérée. Nous avons donc cherché une combinaison de ces deux grandeurs qui soit propice au maclage. Pour cela, nous avons considéré trois surfaces de bas indices ((100), (110) et (111)) correspondant aux trois surfaces de plus faible énergie, associées à trois axes de déformations. Pour étudier l'influence de défauts de surface, nous avons également choisi des modèles qui permettent l'introduction de marches de surface suivant une direction dense $\langle 110 \rangle$ orthogonale à l'axe de déformation. Il existe alors trois configurations possibles (voir figure C.1).

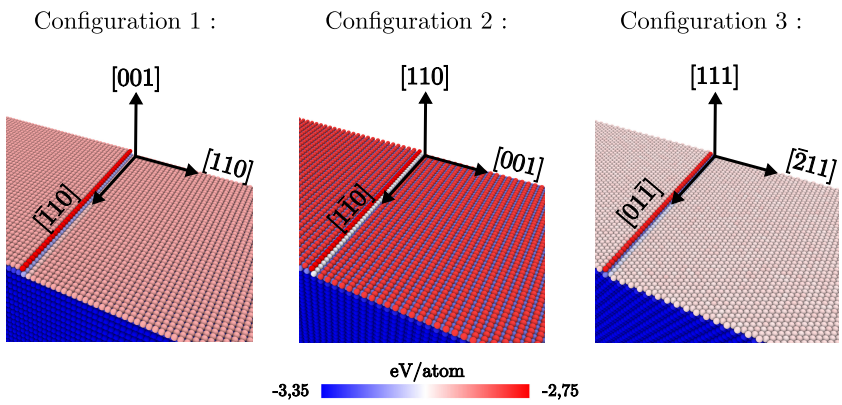

Figure C.1 – Visualisation des trois orientations considérées comme propice au maclage et permettant l'introduction de marches de surface suivant une direction dense $\langle 110 \rangle$. Les atomes sont colorés suivant leur énergie potentielle.

C.1 Axe de déformation

Le maclage mécanique étant régi par les dislocations partielles de Shockley, l'orientation du cristal par rapport à la contrainte appliquée doit être choisie de sorte à favoriser leur nucléation. La contrainte de cisaillement projetée sur les systèmes de glissement $\langle 112 \rangle \{111\}$ doit donc être suffisamment importante pour provoquer leur glissement.

En effet, lorsque l'on soumet un échantillon à une contrainte, seule la composante projetée sur un système de glissement activable peut induire une déformation plastique. Considérons un cristal soumis à une déformation uniaxiale σ. La contrainte de cisaillement projetée sur le système de glissement est alors :

$$\tau = cos(\phi).cos(\theta).\sigma \tag{C.1}$$

Avec ϕ et θ les angles formés entre la direction de la contrainte appliquée et respectivement la direction normale au plan de glissement et la direction du glissement (vecteur de Burgers) (figure C.2). Le produit $cos(\phi).cos(\theta)$ définit le facteur de Schmid [1] s. Ainsi plus s est élevé plus le système de glissement considéré est susceptible d'être activé, sachant que s peut prendre au maximum la valeur de 0,5. Dans le tableau C.1, nous avons répertorié les facteurs de Schmid associés aux systèmes de glissement $\langle 112 \rangle \{111\}$, $\langle 110 \rangle \{111\}$ et également $\langle 110 \rangle \{100\}$ (pour la configuration 3), calculés pour les trois axes de déformation [110], [001] et $[\bar{2}11]$ (voir figure C.1). Seuls les plans de glissement contenant la ligne de marche ont été considérés, car la probabilité d'activation de la plasticité est plus grande dans ces plans.

Si on compare les valeurs obtenues, on constate que les configurations 1 et 2 (correspondant aux axes de déformation [110] et [001]) semblent les plus propices à la nucléation de partielles de Shockley ($s = 0,47$). Or, pour ces deux configurations, deux plans de glissement contiennent la ligne de la marche de surface. Ainsi sous contrainte mécanique, ces deux plans sont susceptibles d'être activés simultanément. Dès lors, pour ces deux configurations, des interactions entres les deux systèmes de glissements $[112](11\bar{1})$ et $[11\bar{2}](111)$ peuvent survenir lors de l'essai mécanique. Pour la configuration 3, le facteur de Schmid est maximum ($s = 0,47$) pour le système de glissement $[011](100)$, correspondant aux dislocations de Lomer. Comme évoqué dans le chapitre I, ces dislocations sont plus rare-

1. Ne pas confondre la notation s définissant ici le facteur de Schmid avec celle du chapitre I.1.2 correspondant au plan de cisaillement caractérisant la macle.

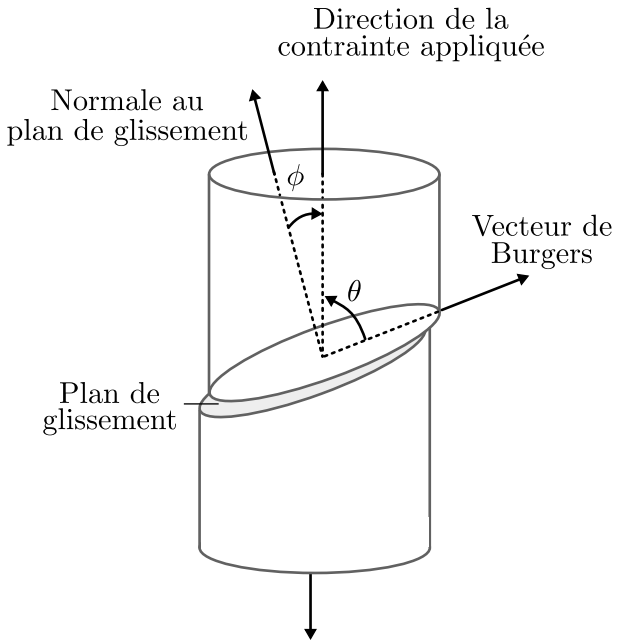

Figure C.2 – Illustration de la géométrie et de la loi de Schmid, avec une projection de la contrainte appliquée sur un plan de glissement. ϕ et θ sont les angles formés entre la direction de la contrainte appliquée et respectivement la direction normale au plan de glissement et la direction du glissement (vecteur de Burgers).

ment observées expérimentalement que les dislocations parfaites dans les plans $\{111\}$, et elles résultent en général de l'interaction d'autres dislocations avec un défaut. Ainsi, il est plus probable que les dislocations nucléées directement à partir de la marche de surface correspondent au système de glissement $[211](\bar{1}11)$, pour lequel le facteur de Schmid est assez important ($s = 0,31$).

Par ailleurs, nous devons considérer le sens de la contrainte appliquée. Pour les dislocations partielles de Shockley, la réponse du cristal au cisaillement est asymétrique. En effet, selon le sens du cisaillement des plans $\{111\}$, un déplacement d'un vecteur de Burgers d'une dislocation partielle de Shockley $1/6\langle 112\rangle$ donnera un empilement :

$$- \ ABCABCBCABCA \ - \text{ ou } - \ ABCABCCABCAB \ - .$$

Dans le premier cas, l'énergie d'excès du défaut d'empilement, γ_{ISF}, correspond à un minimum local de la γ-surface et le cisaillement est dit dans le sens du maclage. Dans le deuxième cas, le défaut d'empilement correspond à un maximum de la γ-surface ; on dit alors que le cisaillement est dans le sens d'antimaclage et il est en générale impossible.

Direction de la contrainte	Plan de glissement	Direction du vecteur de Burgers					
[110] (configuration 1)	$(11\bar{1})$	[011]	[101]	$[1\bar{1}0]$	[112]	$[\bar{1}21]$	$[2\bar{1}1]$
		0,41	0,41	0	**0,47**	0,24	0,24
	(111)	$[\bar{1}01]$	$[1\bar{1}0]$	$[0\bar{1}1]$	$[\bar{2}11]$	$[1\bar{2}1]$	$[11\bar{2}]$
		0,41	0	0,41	0,24	0,24	**0,47**
[001] (configuration 2)	$(11\bar{1})$	[011]	[101]	$[1\bar{1}0]$	[112]	$[\bar{1}21]$	$[2\bar{1}1]$
		0,41	0,41	0	**0,47**	0,24	0,24
	(111)	$[\bar{1}01]$	$[1\bar{1}0]$	$[0\bar{1}1]$	$[\bar{2}11]$	$[1\bar{2}1]$	$[11\bar{2}]$
		0,41	0	0,41	0,24	0,24	**0,47**
$[\bar{2}11]$ (configuration 3)	$(\bar{1}11)$	[110]	[101]	$[0\bar{1}1]$	[211]	$[\bar{1}1\bar{2}]$	$[\bar{1}\bar{2}1]$
		0,27	0,27	0	**0,31**	0,16	0,16
	(100)		[011]			$[0\bar{1}1]$	
			0,47			0	

Tableau C.1 – Tableau récapitulatif des facteurs de Schmid calculés pour les systèmes de glissement dont le plan glissement contient la ligne de marche. Les facteurs de Schmid les plus élevés sur chaque plan sont indiqués en gras.

Pour la configuration 3 par exemple, le sens du maclage pour le système $[211](\bar{1}11)$, de facteur de Schmid maximum, est obtenu avec une contrainte appliquée selon $[\bar{2}11]$ en compression. Si la contrainte est appliquée en tension, le cisaillement pour le système $[211](\bar{1}11)$ est dans le sens d'antimaclage. Ce sont alors les systèmes $[\bar{1}1\bar{2}](\bar{1}11)$ ou $[\bar{1}\bar{2}1](\bar{1}11)$, de facteur de Schmid moindre ($s = 0,16$), mais pour lesquels le cisaillement est dans le sens du maclage, qui sont susceptibles d'être activés.

C.2 Influence de la surface formée

Le deuxième point à considérer est la nature de la surface formée après maclage, cette dernière pouvant être plus moins stable énergétiquement que celle d'origine. Ceci a été

mis en évidence en simulation par Park et al. dans des nano-fils où l'impact des surfaces sur le maclage est d'autant plus important [61].

En effet, lorsqu'une macle est formée, elle induit une réorientation locale du cristal qui émerge en surface suivant une nouvelle orientation. Le type de surface peut alors changer et être plus (ou moins) énergétique que la surface initiale. On définit la différence d'énergie $\Delta E_{surf} = E^m_{surf} - E^i_{surf}$ entre la surface initiale (E^i_{surf}) et la surface réorientée par maclage (E^m_{surf}). Si ΔE_{surf} est supérieure à 0 alors la formation de la nouvelle surface agira comme un frein au maclage ; dans le cas inverse elle agira comme un facteur favorisant le maclage.

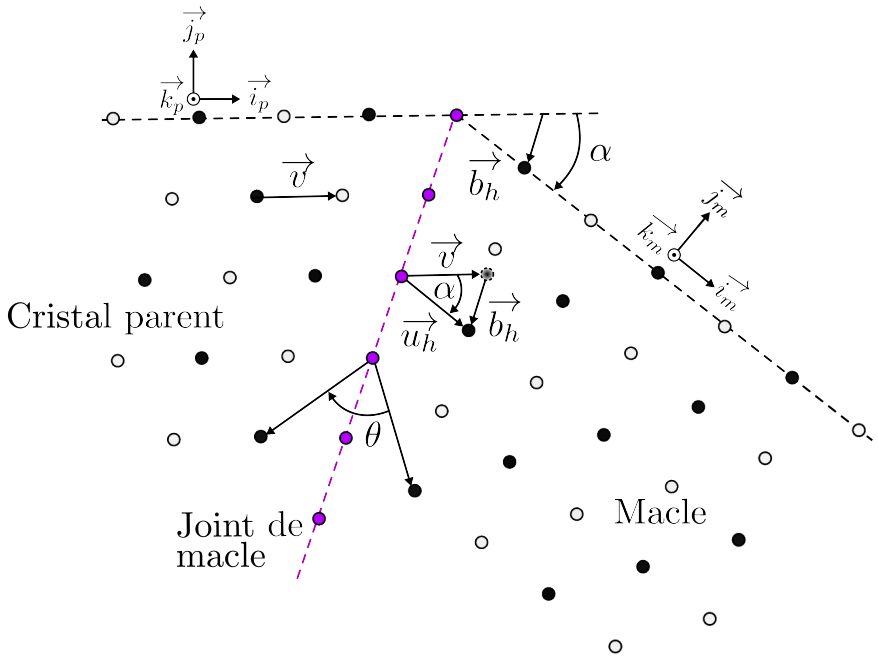

Figure C.3 – Schéma introduisant les notations utilisées pour la détermination de la surface formée après maclage. Les atomes sont colorés en fonction de leur position suivant $\overrightarrow{k_p} = \overrightarrow{k_m}$.

Pour déterminer la surface formée après maclage (on nomme $\overrightarrow{n_m}$ le vecteur normal à cette surface), on considère un vecteur $\overrightarrow{n_p} = \overrightarrow{j_p}$, normale à la surface dans le cristal parent (non maclé) et qui s'exprime dans la base orthonormée de vecteurs ($\overrightarrow{i_p}$, $\overrightarrow{j_p}$, $\overrightarrow{k_p}$) (figure C.3). Par la suite, nous prendrons le vecteur $\overrightarrow{k}_p$ de telle sorte qu'il corresponde à la direction autour de laquelle se fait la rotation induite par le maclage (ici $\overrightarrow{k_p}$ est une

direction $\langle 110 \rangle$). On définit également la base orthonormée $(\overrightarrow{i_m}, \overrightarrow{j_m}, \overrightarrow{k_m})$ de la zone maclée, équivalente à la base $(\overrightarrow{i_p}, \overrightarrow{j_p}, \overrightarrow{k_p})$ du cristal parent, avec $\overrightarrow{k_p} = \overrightarrow{k_m}$ et $\overrightarrow{n_m} = \overrightarrow{j_m}$. Dans les matériaux CFC, le passage de la base «non maclée» à la base «maclée» correspond à une rotation d'angle $\theta = \pm 70,53°$ autour d'un axe $\langle 110 \rangle$. Le vecteur $\overrightarrow{n_p}$ s'exprime alors, dans la base maclée $(\overrightarrow{i_m}, \overrightarrow{j_m}, \overrightarrow{k_m})$:

$$\begin{pmatrix} x_{pm} \\ y_{pm} \\ z_{pm} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} cos(\theta) & sin(\theta) & 0 \\ -sin(\theta) & cos(\theta) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} . \begin{pmatrix} x_p \\ y_p \\ z_p \end{pmatrix} . \tag{C.2}$$

(x_p, y_p, z_p) (respectivement (x_{pm}, y_{pm}, z_{pm})) étant les coordonnées du vecteur $\overrightarrow{n_p}$ dans la base $(\overrightarrow{i_p}, \overrightarrow{j_p}, \overrightarrow{k_p})$ (respectivement $(\overrightarrow{i_{pm}}, \overrightarrow{j_{pm}}, \overrightarrow{k_{pm}})$). On définit maintenant α, l'angle entre les vecteurs $\overrightarrow{n_p}$ et $\overrightarrow{n_m}$, correspondant donc à l'angle formé entre les deux surfaces, celle de la zone maclée et celle de la zone non maclée. Pour déterminer cet angle, on considère un vecteur du réseau $\overrightarrow{v}$ tangent à la surface, orthogonal à $\overrightarrow{k_p}$ et joignant la projection dans le plan (i_p, j_p) de deux atomes voisins (figure C.3). Après le passage, d'une dislocation partielle de Shockley de vecteur de Burgers $\overrightarrow{b}$, $\overrightarrow{v}$ devient (figure C.3) :

$$\overrightarrow{u} = \overrightarrow{v} + \overrightarrow{b}. \tag{C.3}$$

Pour déterminer α on considère la composante $\overrightarrow{u_h}$ de $\overrightarrow{v}$ dans le plan normal à $\overrightarrow{k_p}$ (axe de rotation). On a alors :

$$\overrightarrow{u_h} = \overrightarrow{v} + \overrightarrow{b_h}, \tag{C.4}$$

$\overrightarrow{b_h}$ étant la projection de $\overrightarrow{b}$ dans le plan (i_p, j_p). Ainsi, l'angle α est obtenu à partir du produit scalaire de $\overrightarrow{u_h}$ par $\overrightarrow{v}$.

$$cos(\alpha) = \frac{\overrightarrow{u_h}.\overrightarrow{v}}{u_h.v}. \tag{C.5}$$

Le signe de α est défini par le sens de la contrainte appliquée, $\alpha > 0$ en tension et $\alpha < 0$

en compression. Connaissant α, $\overrightarrow{n_m}$ est alors obtenu à partir de :

$$\overrightarrow{n_m} = \begin{pmatrix} cos(\alpha) & sin(\alpha) & 0 \\ -sin(\alpha) & cos(\alpha) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} . \overrightarrow{n_p}, \tag{C.6}$$

Ainsi, la nature de la surface créée lors du maclage peut être déterminée à partir de la nature de la surface du cristal parent ($\overrightarrow{n_p}$) et du vecteur de Burgers des partielles de Shockley ($\overrightarrow{b}$) qui ont entraîné la formation de la macle.

Nous avons donc déterminé, pour les trois configurations de la figure C.1, la nature des surfaces formées si le maclage a lieu, en considérant pour $\overrightarrow{b}$ les partielles de Shockley correspondant à un cisaillement dans le sens du maclage (tableau C.2). Les surfaces formées sont reportées dans le tableau C.2, de même que ΔE_{surf}, la différence d'énergie entre les deux surfaces.

Surface de départ	Configuration 1 (100)		Configuration 2 (110)		Configuration 3 (111)	
	σ	$-\sigma$	σ	$-\sigma$	σ	$-\sigma$
Vecteur de Burgers $\overrightarrow{b}$	$\frac{1}{6}[112]$	$\frac{1}{6}[1\bar{2}\bar{1}]$	$\frac{1}{6}[2\bar{1}1]$	$\frac{1}{6}[\bar{1}\bar{1}\bar{2}]$	$\frac{1}{6}[1\bar{1}2]$	$\frac{1}{6}[\bar{2}\bar{1}\bar{1}]$
Facteur de Schmid s	0,47	0,24	0,24	0,47	0,16	0,31
Surface après maclage	{110}	{111}	{311}	{100}	{100}	{111}
ΔE_{surf} EA-Al (mJ/m^2)	94	-73	8	-94	73	0
ΔE_{surf} WM-Cu (mJ/m^2)	130	-108	-2	-130	108	0
ΔE_{surf} WM-Ag (mJ/m^2)	76	-79	-1	-76	79	0

Tableau C.2 – Tableau récapitulatif des surfaces formées après maclage, pour une contrainte en traction (σ) et en compression ($-\sigma$). Le facteur de Schmid correspondant aux partielles de macle considérées est indiqué. La différence d'énergie entre la surface maclée et la surface de départ a été calculée pour l'aluminium avec le potentiel EA-Al, et pour le cuivre et l'argent avec le potentiel WM.

De manière générale, dans les matériaux CFC, les surfaces les plus stables énergétiquements sont les surfaces {111}, suivies des surfaces {100}, puis des surfaces {110} (voir le tableau II.1 du chapitre II). On voit ainsi que deux configurations semblent intéressantes pour former des macles de part le gain d'énergie associé au changement de surface. Ces deux configurations sont la configuration 1 en compression et la configuration 2 également en compression. Cependant, la configuration 1 en compression admet un faible facteur de Schmid sur les partielles de Shockley ($s = 0,24$). En revanche, la configuration 2 en compression semble la plus propice au maclage, car en plus de la formation d'une surface énergétiquement plus stable après maclage, la nucléation de partielles de Shockley est favorisée par un facteur de Schmid important ($s = 0,47$).

Cette tendance doit cependant être nuancée. En effet, selon le matériau considéré, les écarts d'énergies de surface peuvent être plus ou moins importants. Pour certains matériaux, ces surfaces présentent également une reconstruction de surface diminuant encore l'énergie qui lui est associée. C'est le cas par exemple des surfaces {111} de l'or connues pour former des chevrons en surface [135, 136]. ΔE_{surf} est donc très dépendant du matériau considéré. Les potentiels semi-empiriques utilisés pour modéliser les interactions entres atomes ne permettent pas souvent de reproduire les reconstructions de surface observées expérimentalement. Ainsi, nous avons choisi dans cette thèse de limiter l'impact de la surface sur le maclage. Nous avons donc opté pour une configuration laissant la surface inchangée après maclage et qui possède un facteur de Schmid important sur les partielles de Shockley, à savoir la configuration 3 en compression, avec une surface (111) après maclage et un facteur de Schmid égal à $0,31$ sur les partielles de Shockley.

C.3 Conclusion

Pour le choix de l'orientation cristalline, trois points ont été considérés. Le premier, est le facteur de Schmid et le sens du maclage. En effet, pour favoriser la nucléation de macles, la contrainte de cisaillement projetée doit être maximale sur les systèmes de glissement associés aux dislocations partielles de Shockley. D'après les calculs effectués dans la section C.1, les configurations 1 et 2 semblent les plus propices au maclage mécanique ($s = 0,47$ contre $s = 0,31$ pour la configuration 3).

Le deuxième point à considérer est la nature de la surface formée après maclage. L'énergie de la surface formée après maclage doit être plus faible ou similaire à l'énergie de la

surface initiale pour ne pas défavoriser la formation de macles. Dans la section C.2, la différence d'énergie entres ces deux surfaces a été calculée à partir des partielles de Shockley correspondant à un cisaillement dans le sens du maclage. La configuration pour laquelle le gain d'énergie est le plus important est la configuration 2 associée à une contrainte en compression, suivie des configurations 1 et 3 également associées à une contrainte en compression. Si l'on considère les deux premiers points, on voit que deux configurations semblent plus favorables au maclage, la configuration 2 et dans une moindre mesure la configuration 3. La configuration 1 admet soit un facteur de Schmid faible sur partielles de Shockley associé à un gain d'énergie de surface, soit une perte d'énergie associée à un facteur de Schmid important sur partielles de Shockley.

Enfin, le dernier point à considérer est la possibilité d'introduire ou non des défauts dans le système. Pour initier la plasticité dans notre modèle de film mince (figure II.8 du chapitre II), une marche de surface suivant une direction dense $\langle 110 \rangle$ orthogonale à l'axe de déformation doit être introduite, ce qui est possible pour les trois configurations testées ici. Pour étudier les mécanismes d'interaction d'une macle en formation avec une interface, nous souhaitons également pouvoir introduire une interface (un joint de macle cohérent ou une interface bimétallique) parallèlement aux surfaces. Ainsi, seule la configuration 3 permet d'introduire ces deux types de défaut. Cette configuration associée à un chargement en compression permet en outre de limiter l'impact de la surface formée par le maclage, puisque cette surface est la même qu'avant maclage. Pour toutes ces raisons pour cette étude, notre choix s'est porté sur la configuration 3 avec un chargement appliqué en compression.

Références

[1] E. O. Hall. *The deformation and ageing of mild steel : III discussion of results.* Proceedings of the Physical Society. Section B **64**(9), 747 (1951). (citée en page 1.)

[2] N. J. Petch. *The cleavage strength of polycrystals.* Journal of the Iron and Steel Institute **174**, 25 – 28 (1953). (citée en page 1.)

[3] I.J. Beyerlein, M.J. Demkowicz, A. Misra, et B.P. Uberuaga. *Defect-interface interactions.* Progress in Materials Science **74**, 125 – 210 (2015). (citée en pages 1 et 25.)

[4] A. Misra, J.P. Hirth, et R.G. Hoagland. *Length-scale-dependent deformation mechanisms in incoherent metallic multilayered composites.* Acta Materialia **53**(18), 4817 – 4824 (2005). (citée en page 1.)

[5] B. Bay, N. Hansen, D.A. Hughes, et D. Kuhlmann-Wilsdorf. *Evolution of f.c.c. deformation structures in polyslip.* Acta Metallurgica et Materialia **40**(2), 205 – 219 (1992). (citée en page 2.)

[6] K. Lu et N. Hansen. *Structural refinement and deformation mechanisms in nanostructured metals.* Scripta Materialia **60**(12), 1033 – 1038 (2009). (citée en page 2.)

[7] S. Zheng, I. J. Beyerlein, J. S. Carpenter, K. Kang, J. Wang, W. Han, et N. A. Mara. *High-strength and thermally stable bulk nanolayered composites due to twin-induced interfaces.* Nature Communications **4**(1696) (2013). (citée en pages 2 et 25.)

[8] J. Wang, I. J. Beyerlein, N. A. Mara, et D. Bhattacharyya. *Interface-facilitated deformation twinning in copper within submicron Ag-Cu multilayered composites.* Scripta Materialia **64**(12), 1083 – 1086 (2011). (citée en pages 2, 25, 27, 96, 98, 100 et 119.)

[9] X. H. An, S. M. Zhu, Y. Cao, M. Kawasaki, X. Z. Liao, S. P. Ringer, J. F. Nie, T. G. Langdon, et Y. T. Zhu. *Atomic-scale investigation of interface-facilitated deformation twinning in severely deformed ag-cu nanolamellar composites.* Applied Physics Letters **107**(011901) (2015). (citée en pages 2, 25, 26, 96, 97, 131 et 132.)

[10] K. A. Afanasyev et F. Sansoz. *Strengthening in gold nanopillars with nanoscale twins.* Nano Letters **7**(7), 2056 – 2062 (2007). (citée en pages 2, 12, 30 et 71.)

[11] K. Lu, L. Lu, et S. Suresh. *Strengthening materials by engineering coherent internal boundaries at the nanoscale.* Science **324**, 349 – 352 (2009). (citée en pages 2 et 26.)

[12] A. Stukowski, K. Albe, et D. Farkas. *Nanotwinned fcc metals : Strengthening versus softening mechanisms.* Phys. Rev. B **82**, 224103 (2010). (citée en pages 2 et 27.)

[13] I. J. Beyerlein, X. Zhang, et A. Misra. *Growth twins and deformation twins in metals.* Annual Review of Materials Research (44), 329 – 363 (2014). (citée en pages 2 et 27.)

[14] J. Wang, F. Sansoz, C. Deng, G. Xu, G. Han, et S. X. Mao. *Strong hall-petch type behavior in the elastic strain limit of nanotwinned gold nanowires.* Nano Letters **15**(6), 3865 – 3870 (2015). (citée en pages 2 et 28.)

[15] L. Lu, Y. Shen, X. Chen, L. Qian, et K. Lu. *Ultrahigh strength and high electrical conductivity in copper.* Science **304**(5669), 422 – 426 (2004). (citée en pages 2, 25, 27, 28, 31 et 32.)

[16] X. Zhang et A. Misra. *Superior thermal stability of coherent twin boundaries in nanotwinned metals.* Scripta Materialia **66**(11), 860 – 865 (2012). (citée en pages 2 et 31.)

[17] X. H. Chen, L. Lu, et K. Lu. *Electrical resistivity of ultrafine-grained copper with nanoscale growth twins.* Journal of Applied Physics **102**(8), 083708 (2007). (citée en pages 2 et 31.)

[18] E. Mallard. *Sur la théorie des macles.* Bulletin de la Société française de minéralogie **8**, 452 – 469 (1885). (citée en page 6.)

[19] G. Friedel. *Étude sur les groupements cristallins.* Théolier, and J. Thomas et Cie (1904). (citée en page 6.)

[20] G. Friedel. *Leçons de Cristallographie.* Hermann et fils (1911). (citée en pages 6, 7 et 55.)

[21] O. B. M. Hardouin Duparc. *A review of some elements in the history of grain boundaries, centered on Georges Friedel, the coincident 'site' lattice and the twin index.* Journal of Materials Science **46**(12), 4116 – 4134 (2011). (citée en page 6.)

[22] O. B. M. Hardouin Duparc. *A review of some elements for the history of mechanical twinning centred on its German origins until Otto Mügge's K1 and K2 invariant plane notation.* Journal of Materials Science **52**(8), 4182 – 4196 (2017). (citée en page 9.)

[23] R.W. Cahn. *Twinned crystals.* Advances in Physics **3**(12), 363 – 445 (1954). (citée en page 9.)

[24] B. A. Bilby et A. G. Crocker. *The theory of the crystallography of deformation twinning.* Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences **288**(1413), 240 – 255 (1965). (citée en page 9.)

[25] J.W. Christian et S. Mahajan. *Deformation twinning.* Progress in Materials Science **39**, 1 – 157 (1995). (citée en pages 9 et 70.)

[26] E. Orowan. *Zur Kristallplastizität. i.* Zeitschrift für Physik **89**(9), 605 – 613 (1934). (citée en page 11.)

[27] M. Polanyi. *Über eine art gitterstörung, die einen kristall plastisch machen könnte.* Zeitschrift für Physik **89**(9), 660 – 664 (1934). (citée en page 11.)

[28] G. I. Taylor. *The mechanism of plastic deformation of crystals. Part I. Theoretical.* Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences **145**(855), 362 – 387 (1934). (citée en page 11.)

[29] J. M. Burgers. *Some considerations on the fields of stress connected with dislocations in a regular crystal lattice.* Koninklijke Nederlandse Akademie van Wetenschappen **42**, 293 – 325, 378 – 399 (1939). (citée en page 11.)

[30] P. Lacombe et L. Beaujard. *The application of etch figures on pure aluminum (99.99%) to the study of some micrographic problems.* Journal of the Institute of Metals **74**, 1 – 16 (1947). (citée en page 12.)

[31] A. Korner et H. P. Karnthaler. *Weak-beam studies of composite dislocations and dislocations gliding on (001) planes in silver.* Philosophical Magazine A **44**(2), 275 – 284 (1981). (citée en pages 12 et 91.)

[32] J. Bonneville et J.Douin. *On the asymmetrical dissociation of lomer dislocations.* Philosophical Magazine Letters **62**(4), 247 – 251 (1990). (citée en pages 12, 71, 72 et 91.)

[33] Z.X. Wu, Y.W. Zhang, et D.J. Srolovitz. *Dislocation twin interaction mechanisms for ultrahigh strength and ductility in nanotwinned metals.* Acta Materialia **57**(15), 4508 – 4518 (2009). (citée en pages 12, 14, 30, 31, 71, 73 et 74.)

[34] Z.X. Wu, Y.W. Zhang, M.H. Jhon, J.R. Greer, et D.J. Srolovitz. *Nanostructure and surface effects on yield in Cu nanowires.* Acta Materialia **61**(6), 1831 – 1842 (2013). (citée en page 12.)

[35] J. P. Hirth et J. Lothe. *Theory of Dislocations.* John Wiley & sons, inc. (1982). (citée en page 12.)

[36] A. G. Frøseth, P. M. Derlet, et H. Van Swygenhoven. *Twinning in nanocrystalline fcc metals.* Advanced Engineering Materials **7**(1-2), 16 – 20 (2005). (citée en page 17.)

[37] H. Van Swygenhoven et P.M. Derlet. Chapter 81 - atomistic simulations of dislocations in fcc metallic nanocrystalline materials. , **14**, pages 1 – 42. Elsevier (2008). (citée en pages 17 et 90.)

[38] Z. H. Jin, P. Gumbsch, E. Ma, K. Albe, K. Lu, H. Hahn, et H. Gleiter. *The interaction mechanism of screw dislocations with coherent twin boundaries in different face-centred cubic metals.* Scripta Materialia **54**(6), 1163 – 1168 (2006). (citée en pages 17 et 30.)

[39] J. R. Rice. *Dislocation nucleation from a crack tip : An analysis based on the peierls concept.* Journal of the Mechanics and Physics of Solids **40**(2), 239 – 271 (1992). (citée en page 18.)

[40] E.B. Tadmor et S. Hai. *A peierls criterion for the onset of deformation twinning at a crack tip.* Journal of the Mechanics and Physics of Solids **51**(5), 765 – 793 (2003). (citée en page 18.)

[41] N. Bernstein et E. B. Tadmor. *Tight-binding calculations of stacking energies and twinnability in fcc metals.* Phys. Rev. B **69**, 094116 (2004). (citée en pages 18, 49 et 50.)

[42] R. J. Asaro et S. Suresh. *Mechanistic models for the activation volume and rate sensitivity in metals with nanocrystalline grains and nano-scale twins.* Acta Materialia **53**(12), 3369 – 3382 (2005). (citée en page 18.)

[43] Z.H. Jin, S.T. Dunham, H. Gleiter, H. Hahn, et P. Gumbsch. *A universal scaling of planar fault energy barriers in face-centered cubic metals.* Scripta Materialia **64**(7), 605 – 608 (2011). (citée en pages 18, 49, 50 et 135.)

[44] A.H. Cottrell et B.A. Bilby. *LX. A mechanism for the growth of deformation twins in crystals.* The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science **42**(329), 573–581 (1951). (citée en page 19.)

[45] N. Thompson et D.J. Millard. *XXXVIII. Twin formation, in cadmium.* The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science **43**(339), 422–440 (1952). (citée en page 19.)

[46] J. A. Venables. *Deformation twinning in face-centred cubic metals.* Philosophical Magazine **6**(63), 379 – 396 (1961). (citée en pages 19 et 20.)

[47] J.B. Cohen et J. Weertman. *A dislocation model for twinning in f.c.c. metals.* Acta Metallurgica **11**(8), 996 – 998 (1963). (citée en page 19.)

[48] V. Yamakov, D. Wolf, S. R. Phillpot, A. K. Mukherjee, et H. Gleiter. *Dislocation processes in the deformation of nanocrystalline aluminium by molecular-dynamics simulation.* Nature Materials **1**, 1 – 4 (2002). (citée en pages 21, 22, 23 et 65.)

[49] F. C. Frank. On slip bands as a consequence of the dynamic behaviour of dislocations. Dans *Report of a conference on strength of solids*, pages 46–51, University of Bristol (1948). (citée en pages 21 et 92.)

[50] J. W. Christian. *A theory of the transformation in pure cobalt.* Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences **206**(1084), 51 – 64 (1951). (citée en pages 22 et 92.)

[51] P. Hirel. *Étude par simulations à l'échelle atomique de la formation de boucles de dislocation à partir d'irrégularités de surface d'un métal contraint.* Thèse Université de Poitiers (2008). (citée en pages 22, 62 et 92.)

[52] Q. J. Li, J. Li, Z. W. Shan, et E. Ma. *Strongly correlated breeding of high-speed dislocations.* Acta Materialia **119**, 229 – 241 (2016). (citée en pages 22, 62 et 92.)

[53] Y.T. Zhu, J. Narayan, J.P. Hirth, S. Mahajan, X.L. Wu, et X.Z. Liao. *Formation of single and multiple deformation twins in nanocrystalline fcc metals.* Acta Materialia **57**(13), 3763 – 3770 (2009). (citée en page 22.)

[54] Y. T. Zhu, X. L. Wu, X. Z. Liao, J. Narayan, S. N. Mathaudhu, et L. J. Kecskés. *Twinning partial multiplication at grain boundary in nanocrystalline fcc metals.* Applied Physics Letters **95**(3), 031909 (2009). (citée en pages 22 et 23.)

[55] H. Gleiter. *Nanocrystalline materials.* Progress in Materials Science **33**(4), 223 – 315 (1989). (citée en page 22.)

[56] V. Yamakov, D. Wolf, S.R. Phillpot, et H. Gleiter. *Deformation twinning in nanocrystalline al by molecular-dynamics simulation.* Acta Materialia **50**(20), 5005 – 5020 (2002). (citée en pages 22, 23 et 65.)

[57] Y.T. Zhu, X.Z. Liao, et X.L. Wu. *Deformation twinning in nanocrystalline materials.* Progress in Materials Science **57**(1), 1 – 62 (2012). (citée en page 23.)

[58] G. Dehm, S.H. Oh, P. Gruber, M. Legros, et F.D. Fischer. *Strain compensation by twinning in au thin films : Experiment and model.* Acta Materialia **55**(19), 6659 – 6665 (2007). (citée en pages 23 et 24.)

[59] M. Chen, E. Ma, K.J. Hemker, H. Sheng, Y. Wang, et X. Cheng. *Deformation twinning in nanocrystalline aluminum.* Science **300**(5623), 1275 – 1277 (2003). (citée en pages 23, 24 et 90.)

[60] X. L. Wu et E. Ma. *Deformation twinning mechanisms in nanocrystalline Ni.* Applied Physics Letters **88**(6), 061905 (2006). (citée en pages 23 et 24.)

[61] H. S. Park, K. Gall, et J. A. Zimmerman. *Deformation of fcc nanowires by twinning and slip.* Journal of the Mechanics and Physics of Solids **54**(9), 1862 – 1881 (2006). (citée en pages 23 et 157.)

[62] E. Bitzek. *Atomistic study of twinning in gold nanowhiskers.* Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering **6**, 99 – 105 (2012). (citée en page 23.)

[63] A. Sedlmayr, E. Bitzek, D. S. Gianola, G. Richter, R. Monig, et O. Kraft. *Existence of two twinning-mediated plastic deformation modes in au nanowhiskers.* Acta Materialia **60**(9), 3985 – 3993 (2012). (citée en page 23.)

[64] F. Mompiou, M. Legros, C. Ensslen, et O. Kraft. *In situ TEM study of twin boundary migration in sub-micron Be fibers.* Acta Materialia **96**, 57 – 65 (2015). (citée en page 23.)

[65] J. H. Seo, Y. Yoo, N. Y. Park, S. W. Yoon, H. Lee, S. Han, S. W. Lee, T. Y. Seong, S. C. Lee, K. B. Lee, P. R. Cha, H. S. Park, B. Kim, et J. P. Ahn. *Superplastic deformation of defect-free Au nanowires via coherent twin propagation.* Nano Letters **11**(8), 3499 – 3502 (2011). (citée en page 23.)

[66] J. H. Seo, H. S. Park, Y. Yoo, T. Y. Seong, J. Li, J. P. Ahn, B. Kim, et I. S. Choi. *Origin of size dependency in coherent-twin-propagation-mediated tensile deformation of noble metal nanowires.* Nano Letters **13**(11), 5112 – 5116 (2013). (citée en page 23.)

[67] B. Roos, B. Kapelle, G. Richter, et C. A. Volkert. *Surface dislocation nucleation controlled deformation of Au nanowires.* Applied Physics Letters **105**(20), 201908 (2014). (citée en pages 23, 27 et 136.)

[68] S. Lee, J. Im, Y. Yoo, E. Bitzek, D. Kiener, G. Richter, B. Kim, et S. H. Oh. *Reversible cyclic deformation mechanism of gold nanowires by twinning-detwinning transition evidenced from in situ TEM.* Nature Communications **5**(3033), 1 – 10 (2014). (citée en page 24.)

[69] C. Deng et F. Sansoz. *A new form of pseudo-elasticity in small-scale nanotwinned gold.* Extreme Mechanics Letters **8**, 201 – 207 (2015). (citée en page 24.)

[70] H. S. Park, K. Gall, et J. A. Zimmerman. *Shape memory and pseudoelasticity in metal nanowires.* Phys. Rev. Lett. **95**(25), 255504 (2005). (citée en page 24.)

[71] A. Misra, M. J. Demkowicz, X. Zhang, et R. G. Hoagland. *The radiation damage tolerance of ultra-high strength nanolayered composites.* JOM **59**(9), 62 – 65 (2007). (citée en page 25.)

[72] I. J. Beyerlein, N. A. Mara, D. Bhattacharyya, D. J. Alexander, et C. T. Necker. *Texture evolution via combined slip and deformation twinning in rolled silver–copper cast eutectic nanocomposite.* International Journal of Plasticity **27**(1), 121 – 146 (2011). (citée en page 25.)

[73] R.F. Zhang, J. Wang, I.J. Beyerlein, et T.C. Germann. *Dislocation nucleation mechanisms from fcc/bcc incoherent interfaces.* Scripta Materialia **65**(11), 1022 – 1025 (2011). (citée en page 25.)

[74] I. J. Beyerlein, N. A. Mara, J. Wang, J. S. Carpenter, S. J. Zheng, W. Z. Han, R. F. Zhang, K. Kang, T. Nizolek, et T. M. Pollock. *Structure-property-functionality of bimetal interfaces.* JOM **64**(10), 1192 – 1207 (2012). (citée en page 25.)

[75] R. W. Balluffi A. P. Sutton. *Interfaces in crystalline materials.* Oxford University Press (1995). (citée en page 25.)

[76] A. Misra et H. Krug. *Deformation behavior of nanostructured metallic multilayers.* Advanced Engineering Materials **3**(4), 217 – 222 (2001). (citée en page 25.)

[77] M. J. Demkowicz, J. Wang, et R. G. Hoagland. *Interfaces between dissimilar crystalline solids.* Dislocations in Solids **14**, 141 – 205 (2008). (citée en page 25.)

[78] X. Zhang, A. Misra, H. Wang, A. L. Lima, M. F. Hundley, et R. G. Hoagland. *Effects of deposition parameters on residual stresses, hardness and electrical resistivity of nanoscale twinned 330 stainless steel thin films.* Journal of Applied Physics **97**(9), 094302 (2005). (citée en pages 25, 28, 30 et 71.)

[79] X. Zhang, H. Wang, X. H. Chen, L. Lu, K. Lu, R. G. Hoagland, et A. Misra. *High-strength sputter-deposited Cu foils with preferred orientation of nanoscale growth twins.* Applied Physics Letters **88**(17), 173116 (2006). (citée en page 25.)

[80] Y.F. Shen, L. Lu, Q.H. Lu, Z.H. Jin, et K. Lu. *Tensile properties of copper with nano-scale twins.* Scripta Materialia **52**(10), 989 – 994 (2005). (citée en pages 27 et 28.)

[81] L. Lu, X. Chen, X. Huang, et K. Lu. *Revealing the maximum strength in nanotwinned copper.* Science **323**(5914), 607 – 610 (2009). (citée en pages 28 et 29.)

[82] X. Li, Y. Wei, L. Lu, K. Lu, et H. Gao. *Dislocation nucleation governed softening and maximum strength in nano-twinned metals.* Nature **464**, 877 – 880 (2010). (citée en page 28.)

[83] F. Yuan et X. Wu. *Size effects of primary/secondary twins on the atomistic deformation mechanisms in hierarchically nanotwinned metals.* Journal of Applied Physics **113**(20), 203516 (2013). (citée en page 28.)

[84] D. Jang, X. Li, H. Gao, et J. R. Greer. *Deformation mechanisms in nanotwinned metal nanopillars.* Nature Nanotechnology **7**, 594 – 601 (2012). (citée en page 28.)

[85] J. Wang, F. Sansoz, J. Huang, Y. Liu, S. Sun, Z. Zhang, et S. X. Mao. *Near-ideal theoretical strength in gold nanowires containing angstrom scale twins.* Nature Communications **4**(1742), 1 – 8 (2013). (citée en page 28.)

[86] S. Mahajan et G.Y Chin. *Twin-slip, twin-twin and slip-twin interactions in Co-8 wt.% Fe alloy single crystals.* Acta Metallurgica **21**(2), 173 – 179 (1973). (citée en page 29.)

[87] Y. Cao, Y.B. Wang, X.H. An, X.Z. Liao, M. Kawasaki, S.P. Ringer, T.G. Langdon, et Y.T. Zhu. *Grain boundary formation by remnant dislocations from the de-twinning of thin nano-twins.* Scripta Materialia **100**(0), 98 – 101 (2015). (citée en pages 29 et 59.)

[88] Y.T. Zhu, X.L. Wu, X.Z. Liao, J. Narayan, L.J. Kecskes, et S.N. Mathaudhu. *Dislocation twin interactions in nanocrystalline fcc metals.* Acta Materialia **59**(2), 812 – 821 (2011). (citée en page 30.)

[89] M. Chassagne, M. Legros, et D. Rodney. *Atomic-scale simulation of screw dislocation/coherent twin boundary interaction in Al, Au, Cu and Ni.* Acta Materialia **59**(4), 1456 – 1463 (2011). (citée en page 30.)

[90] C. Deng et F. Sansoz. *Enabling ultrahigh plastic flow and work hardening in twinned gold nanowires.* Nano Letters **9**(4), 1517 – 1522 (2009). (citée en pages 30 et 71.)

[91] Z.X. Wu, Y.W. Zhang, et D.J. Srolovitz. *Deformation mechanisms, length scales and optimizing the mechanical properties of nanotwinned metals.* Acta Materialia **59**(18), 6890 – 6900 (2011). (citée en pages 30, 71, 73 et 74.)

[92] F. Ercolessi. A molecular dinamics primer. Spring College in Computational Physics (1997). (citée en page 35.)

[93] Olivier Hardouin Duparc. *On the origins of the finnis–sinclair potentials.* Philosophical Magazine **89**(34-36), 3117–3131 (2009). (citée en page 35.)

[94] A. Stukowski, B. Sadigh, P. Erhart, et A. Caro. *Efficient implementation of the concentration-dependent embedded atom method for molecular-dynamics and Monte-Carlo simulations.* Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering **17**(7), 075005 (2009). (citée en page 35.)

[95] F. Ercolessi et J. B. Adams. *Interatomic potentials from first-principles calculations : The force-matching method.* EPL (Europhysics Letters) **26**(8), 583 (1994). (citée en page 36.)

[96] A. Aslanides et V. Pontikis. *Atomistic calculation of the interaction between an edge dislocation and a free surface.* Philosophical Magazine Letters **78**(5), 377 – 383 (1998). (citée en page 36.)

[97] P. L. Williams, Y. Mishin, et J. C. Hamilton. *An embedded-atom potential for the Cu/Ag system.* Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering **14**(5), 817 (2006). (citée en page 36.)

[98] Y. Mishin, M. J. Mehl, D. A. Papaconstantopoulos, A. F. Voter, et J. D. Kress. *Structural stability and lattice defects in copper Ab initio, tight-binding, and embedded atom calculations.* Phys. Rev. B **63**, 224106 (2001). (citée en page 36.)

[99] H. H. Wu et D. R. Trinkle. *Cu/Ag EAM potential optimized for heteroepitaxial diffusion from ab initio data.* Computational Materials Science **47**(2), 577 – 583 (2009). (citée en page 36.)

[100] C. Kittel. *Introduction to solid state physics.* John Wiley & sons, inc. (1976). (citée en page 37.)

[101] G. Simmons et H. Wang. *Single crystal elastic constants and calculated aggregate properties : A handbook.* Cambridge, Mass., M.I.T. Press (1971). (citée en page 37.)

[102] L. E. Murr. *Interfacial Phenomena in Metals and Alloys.* Addison-Wesley (1975). (citée en page 37.)

[103] L. Vitos, A.V. Ruban, H.L. Skriver, et J. Kollár. *The surface energy of metals.* Surface Science **411**(1), 186 – 202 (1998). (citée en page 37.)

[104] E. Bitzek, P. Koskinen, F. Gähler, M. Moseler, et P. Gumbsch. *Structural relaxation made simple.* Phys. Rev. Lett. **97**, 170201 (2006). (citée en pages 38 et 39.)

[105] Steve Plimpton. *Fast parallel algorithms for short-range molecular dynamics.* Journal of computational physics **117**(1), 1 – 19 (1995). (citée en page 38.)

[106] E. Polak et G. Ribière. *Note sur la convergence de méthodes de directions conjuguées.* Revue française d'informatique et de recherche opérationnelle **3**, 35 – 43 (1969). (citée en page 38.)

[107] L. Verlet. *Computer "experiments" on classical fluids. I. Thermodynamical properties of Lennard-Jones molecules.* Phys. Rev. **159**, 98 – 103 (1967). (citée en page 40.)

[108] William G. Hoover. *Canonical dynamics : Equilibrium phase-space distributions.* Phys. Rev. A **31**, 1695–1697 Mar (1985). (citée en page 42.)

[109] A. Stukowski. *Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO the open visualization tool.* Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering **18**(1), 015012 (2010). (citée en page 45.)

[110] D. Faken et H. Jónsson. *Systematic analysis of local atomic structure combined with 3D computer graphics.* Computational Materials Science **2**(2), 279 – 286 (1994). (citée en page 46.)

[111] A. Stukowski. *Structure identification methods for atomistic simulations of crystalline materials.* Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering **20**(4), 045021 (2012). (citée en page 46.)

[112] C. L. Kelchner, S. J. Plimpton, et J. C. Hamilton. *Dislocation nucleation and defect structure during surface indentation.* Phys. Rev. B **58**, 11085 – 11088 (1998). (citée en page 46.)

[113] A. Stukowski et K. Albe. *Extracting dislocations and non-dislocation crystal defects from atomistic simulation data.* Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering **18**(8), 085001 (2010). (citée en page 46.)

[114] A. Stukowski, V. V. Bulatov, et A. Arsenlis. *Automated identification and indexing of dislocations in crystal interfaces.* Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering **20**(8), 085007 (2012). (citée en page 46.)

[115] A. P. Thompson, S. J. Plimpton, et W. Mattson. *General formulation of pressure and stress tensor for arbitrary many-body interaction potentials under periodic boundary conditions.* The Journal of Chemical Physics **131**(15), 154107 (2009). (citée en page 46.)

[116] V. Vitek. *Theory of the core structures of dislocations in body-centered-cubic metals.* Cryst Lattice Defects **5**(1), 1–34 (1974). (citée en page 49.)

[117] R. Li et H. B. Chew. *Planar-to-wavy transition of Cu/Ag nanolayered metals : a precursor mechanism to twinning.* Philosophical Magazine **95**(10), 1029 – 1048 (2015). (citée en pages 52, 96 et 132.)

[118] S. Brochard, P. Beauchamp, et J. Grilhe. *Dislocation nucleation from surface steps : Atomistic simulation in aluminium.* Philosophical Magazine A **80**(3), 503 – 524 (2000). (citée en pages 58, 60, 64 et 97.)

[119] P. Hirel, S. Brochard, L. Pizzagalli, et P. Beauchamp. *Effects of temperature and surface step on the incipient plasticity in strained aluminium studied by atomistic simulations.* Scripta Materialia **57**(12), 1141 – 1144 (2007). (citée en pages 58, 60 et 97.)

[120] M. J. Mills et P. Stadelmann. *A study of the structure of Lomer and 60 dislocations in aluminium using high-resolution transmission electron microscopy.* Philosophical Magazine A **60**(3), 355 – 384 (1989). (citée en pages 71 et 91.)

[121] C. Deng et F. Sansoz. *Fundamental differences in the plasticity of periodically twinned nanowires in Au, Ag, Al, Cu, Pb and Ni.* Acta Materialia **57**(20), 6090 – 6101 (2009). (citée en page 90.)

[122] C. Brandl, P. M. Derlet, et H. Van Swygenhoven. *Strain rates in molecular dynamics simulations of nanocrystalline metals.* Philosophical Magazine **89**(34-36), 3465 – 3475 (2009). (citée en page 91.)

[123] T. Zhu, J. Li, A. Samanta, A. Leach, et K. Gall. *Temperature and strain-rate dependence of surface dislocation nucleation.* Phys. Rev. Lett. **100**, 025502 (2008). (citée en page 91.)

[124] Y.Z. Tian et Z.F. Zhang. *Stability of interfaces in a multilayered Ag/Cu composite during cold rolling.* Scripta Materialia **68**(7), 542 – 545 (2013). (citée en page 96.)

[125] R. Li et H. B. Chew. *Deformation twinning and plastic recovery in Cu/Ag nanolayers under uniaxial tensile straining.* Philosophical Magazine Letters **94**(5), 260 – 268 (2014). (citée en page 96.)

[126] Y. Liu, D. Bufford, H. Wang, C. Sun, et X. Zhang. *Mechanical properties of highly textured Cu/Ni multilayers.* Acta Materialia **59**(5), 1924 – 1933 (2011). (citée en page 96.)

[127] J. S. Carpenter, A. Misra, M. D. Uchic, et P. M. Anderson. *Strain rate sensitivity and activation volume of Cu/Ni metallic multilayer thin films measured via micropillar compression.* Applied Physics Letters **101**(5), 051901 (2012). (citée en page 96.)

[128] D. Bufford, Z. Bi, Q. X. Jia, H. Wang, et X. Zhang. *Nanotwins and stacking faults in high-strength epitaxial Ag/Al multilayer films.* Applied Physics Letters **101**(22) (2012). (citée en page 96.)

[129] Y. Liu, Y. Chen, K.Y. Yu, H. Wang, J. Chen, et X. Zhang. *Stacking fault and partial dislocation dominated strengthening mechanisms in highly textured Cu/Co multilayers.* International Journal of Plasticity **49**, 152 – 163 (2013). (citée en page 96.)

[130] B.P. Eftink, A. Li, I. Szlufarska, N.A. Mara, et I.M. Robertson. *Deformation response of AgCu interfaces investigated by in situ and ex situ TEM straining and MD simulations.* Acta Materialia **138**, 212 – 223 (2017). (citée en page 96.)

[131] R. Béjaud, J. Durinck, et S. Brochard. *Twin-interface interactions in nanostructured Cu/Ag : Molecular dynamics study.* Acta Materialia **144**, 314–324 (2018). (citée en page 97.)

[132] J. Wang, J.P. Hirth, R.C. Pond, et J.M. Howe. *Rotational partitioning at two-phase interfaces.* Acta Materialia **59**(1), 241 – 251 (2011). (citée en pages 98, 99, 100 et 132.)

[133] R. Li et H. B. Chew. *Closed and open-ended stacking fault tetrahedra formation along the interfaces of Cu/Al nanolayered metals.* Philosophical Magazine **95**(25), 2747 – 2763 (2015). (citée en page 135.)

[134] P. J. Imrich, C. Kirchlechner, D. Kiener, et G. Dehm. *Internal and external stresses : In situ TEM compression of Cu bicrystals containing a twin boundary.* Scripta Materialia **100**(0), 94 – 97 (2015). (citée en page 136.)

[135] Ch. Wöll, S. Chiang, R. J. Wilson, et P. H. Lippel. *Determination of atom positions at stacking-fault dislocations on Au(111) by scanning tunneling microscopy.* Phys. Rev. B **39**, 7988–7991 (1989). (citée en page 160.)

[136] J. V. Barth, H. Brune, G. Ertl, et R. J. Behm. *Scanning tunneling microscopy observations on the reconstructed Au(111) surface : Atomic structure, long-range superstructure, rotational domains, and surface defects.* Phys. Rev. B **42**, 9307–9318 (1990). (citée en page 160.)

Résumé

Depuis quelques dizaines d'années, l'élaboration de matériaux nano-structurés tend de plus en plus à se développer. En effet, ces matériaux présentent souvent des propriétés intéressantes et en particulier des propriétés mécaniques surprenantes vis-à-vis de leurs homologues sous forme massive. Les métaux nano-maclés ou nano-lamellaires par exemple, sont connus pour avoir une bonne résistance mécanique, une bonne stabilité thermique et une excellente résistance aux radiations. Au fur et à mesure que l'espacement entre les interfaces diminue, leur densité augmente de manière significative et les propriétés macroscopiques du matériau sont de plus en plus dépendantes des interactions défaut-interface. Dans ce contexte, nous avons étudié, via des simulations atomistiques, la formation de macles de déformation et les mécanismes d'interaction d'une macle nouvellement formée avec une interface préexistante (un joint de macle ou une interface entre 2 métaux), pour une configuration modèle de film mince CFC autoporté. Des premiers résultats montrent l'influence de marches de surface sur le maclage, pour un cas modèle sans interface. Puis nous avons identifié un mécanisme inédit aboutissant à la formation d'une dislocation de Lomer suite à l'interaction d'une macle en formation avec un joint de macle préexistant. En faisant varier la densité de défauts de surface, nous montrons l'influence particulière d'un joint de macle sur la taille et le nombre de macles formées. Enfin, pour les systèmes bimétalliques Cu/Ag, nos résultats mettent en évidence le rôle des dislocations d'épitaxie (à l'interface) dans la nucléation et l'extension des macles ainsi qu'une influence directe du type d'interface considéré sur la propagation de ces macles.

Mots clés : simulation, dynamique moléculaire, dislocation, plasticité, macle de déformation, joint de macle, interface bimétallique, film mince, matériaux nano-lamellaires.

Abstract

For several decades, the elaboration of nano-structured materials tends to develop more and more. Indeed, these materials often show interesting properties, and in particular surprising mechanical properties when compared to their bulk counterparts. For example, nano-twinned or nano-layered metals are known to have ultra-high mechanical strength, good thermal stability, and very good radiation resistance. As the interface spacing decreases to the nanometer-scale, the density of interfaces increases significantly and subsequently the macroscopic properties become largely governed by the interface-defect interactions. In that context, we have studied deformation twin formation and mechanisms of interaction between a new formed twin and a preexisting interface (a twin boundary or a bimetallic interface), using atomistic simulations and a thin film FCC model configuration. First results show the influence of surface steps on mechanical twinning, for a model system without interface. Then we identify a new mechanism leading to the formation of a Lomer dislocation, following the interaction of a newly formed twin and a preexisting twin boundary. By varying the density of surface defects, we show the particular influence of a preexisting twin boundary on twin size and number. Finally, for the Cu/Ag bimetallic system, our results highlight the role of epitaxial dislocations (at the interface) in twin nucleation and extension as well as a direct influence of the interface type in twin propagation.

Keywords : simulation, molecular dynamics, dislocation, plasticity, deformation twin, twin boundary, bimetallic interface, thin film, nano-layered materials.