



HAL
open science

Simulation de la cinétique d'absorption des défauts ponctuels par les dislocations et amas de défauts

Denise Carpentier

► **To cite this version:**

Denise Carpentier. Simulation de la cinétique d'absorption des défauts ponctuels par les dislocations et amas de défauts. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université Paris Saclay (COMUE), 2018. Français. NNT : 2018SACLX077 . tel-01915303

HAL Id: tel-01915303

<https://pastel.hal.science/tel-01915303v1>

Submitted on 7 Nov 2018

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.

Simulation de la cinétique d'absorption des défauts ponctuels par les dislocations et amas de défauts

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay
préparée au Service de Recherche de Métallurgie Physique,
CEA Saclay

École doctorale n°579 Sciences mécaniques et énergétiques,
matériaux et géosciences (SMEMAG)
Spécialité de doctorat: Science des matériaux

Thèse présentée et soutenue à Gif-sur-Yvette, le 12 octobre 2018, par

Denise Carpentier

Composition du Jury :

Fabienne Berthier
Directrice de recherche, Université Paris Sud
María Jose Caturla
Professeur, Université d'Alicante
Alexandre Legris
Directeur de recherche, Polytech'Lille
Robin Schäublin
Directeur de recherche, ETH Zurich
Yann Le Bouar
Directeur de recherche, CNRS/ONERA
Thomas Jourdan
Ingénieur chercheur, CEA Saclay

Présidente
Rapporteuse
Rapporteur
Examineur
Directeur de thèse
Encadrant CEA



Remerciements

Je remercie les membres du jury, María Jose Caturla et Alexandre Legris comme rapporteurs, Fabienne Berthier comme examinatrice et présidente, et Robin Schäublin comme examinateur, pour avoir accepté d'évaluer cette thèse. Je les remercie pour l'intérêt qu'ils ont montré à l'égard de mon travail, pour le temps qu'ils m'ont consacré, pour leurs questions, leurs remarques et les commentaires exprimés lors de ma soutenance.

Je tiens à remercier mes encadrants, Yann Le Bouar et Thomas Jourdan, pour m'avoir donné l'opportunité de faire cette thèse, et pour tout ce qu'ils m'ont apporté durant ces trois ans. Je remercie Thomas qui a été mon encadrant et m'a accompagné au quotidien. Merci de m'avoir accordé ta confiance, j'espère avoir été à la hauteur de tes attentes. Je te remercie pour ta patience, ta très grande pédagogie et ta gentillesse. Je garderai un excellent souvenir de nos échanges, et une grande fierté d'avoir été ton apprentie pendant ces trois années. Merci Yann d'avoir été un directeur de thèse aussi disponible et à l'écoute, nos réunions ont toujours été des moments très agréables. Je suis très heureuse d'avoir eu l'opportunité de travailler avec toi, de profiter de ton expertise et de ta bienveillance. Grâce à vous deux, cette thèse a été une expérience très riche et agréable du premier au dernier jour.

Je souhaite aussi remercier sincèrement tout le personnel du Service de Recherches de Métallurgie Physique, où j'ai passé trois années très enrichissantes scientifiquement et humainement. Je vous remercie pour votre accueil et votre gentillesse, j'ai énormément appris grâce à chacun d'entre vous. Je ne peux malheureusement pas vous remercier tous individuellement, mais je tiens à remercier quelques personnes à qui je dois beaucoup. Tout d'abord merci à Jean-Luc Bechade, qui m'a accueilli au SRMP, pour ses conseils et sa bienveillance, ainsi qu'à Patricia, qui prend en charge tous les problèmes administratifs avec une efficacité redoutable. Je tiens à remercier Cosmin, pour tout le temps que tu m'as consacré, je suis très fière d'avoir eu la chance de travailler avec toi durant cette thèse. Je remercie aussi Camille Flament, j'ai été très heureuse d'être ta première co-bureau au SRMP, merci pour ton sourire et ta bonne humeur. Enfin je remercie Manuel et Jean-Paul pour leur sympathie et leur humour qui ont ponctué ces trois années.

Je remercie aussi les doctorants, stagiaires, post-doctorants, jeunes docteurs et autres camarades de pauses qui ont rendu ces trois années inoubliables. Merci à Camille J., Elric et Olivier pour votre infinie gentillesse, votre soutien sans faille et votre humour, à Lisa

pour ton indéfectible enthousiasme et ton sourire permanent. Merci à Aurélien et Pierre pour votre humour et pour les bons moments que nous avons partagés. Merci aussi à Anshuman, et aux autres doctorants qui ont soutenu ou vont soutenir en 2018. Merci à Anton, Marie et Ivan pour votre bonne humeur. Merci aussi à Anne-Hélène pour ta positivité et ton sourire, ainsi qu'à Emile et Antoine pour vos encouragements. Merci enfin à Claire et Adrien pour toutes nos discussions qui ont coloré mes journées.

Je veux aussi remercier mes amis sans qui ces années auraient été radicalement différentes. Merci à Laëtitia qui m'a encouragé et rassuré au moindre doute, merci pour ta positivité, ta maturité, ta patience et ton humour. Merci à Loïc, pour tous les bons moments que nous avons partagé et que nous partagerons encore. Merci aussi à Marie-Anne d'être une amie aussi fidèle depuis toutes ces années malgré la distance, t'avoir à mes côtés est une vraie force. Merci à Alexia, Julie, Hermine et Marie-Emeline, grâce à qui la thèse a été une très belle aventure !

Je remercie aussi toute ma famille, ma très grande famille. Merci à mes grands-parents qui ont toujours cru en moi, et à ma marraine qui est venue de loin pour assister à ma soutenance. Merci à Fabienne, Denis, Lucas et Mathias qui m'ont beaucoup apporté toutes ces années. Merci aussi à Alice et Louis, qui m'ont beaucoup soutenue et rassurée dans les moments difficiles. Je voudrais également remercier infiniment mes parents, pour leurs encouragements, leur soutien permanent, et pour m'avoir donné un très bon modèle à suivre dans ma vie professionnelle et personnelle.

Je tiens enfin à remercier Thibault. Je ne serais pas la personne que je suis aujourd'hui si je ne t'avais pas eu à mes côtés toutes ces années. Merci pour ton soutien, et pour tout le reste.

Table des matières

Remerciements	i
Introduction	1
Chapitre 1 – Microstructures sous irradiation : modèle du biais des dislocations et forces de puits	5
1.1 Évolution des microstructures sous irradiation : influence des biais élastiques	6
1.2 Diffusion des défauts ponctuels dans un champ élastique	12
1.3 Forces de puits	19
1.4 Résumé et définition des premiers objectifs de la thèse	35
Chapitre 2 – Techniques de modélisation des microstructures	37
2.1 Introduction	37
2.2 Calcul <i>ab initio</i> – Théorie de la Fonctionnelle de la Densité	38
2.3 Monte Carlo Cinétique	43
2.4 Dynamique d’amas	48
2.5 Objectifs et démarche	60
2.6 Résumé	60
Chapitre 3 – Étude de l’influence des interactions élastiques et des dipôles élastiques sur les forces de puits	62
3.1 Introduction	63
3.2 Méthodes	63
3.3 Dislocation droite	69
3.4 Cavité sphérique	78
3.5 Boucle de dislocation	83
3.6 Influence des polarisabilités diaélastiques	92
3.7 Conclusion	99
Chapitre 4 – Étude des effets de voisinage	101
4.1 Introduction	102
4.2 Création des microstructures	102
4.3 Étude des forces de puits dans les microstructures	109
4.4 Amas sphériques sans interactions élastiques	112

4.5	Amas toriques sans interactions élastiques	122
4.6	Amas toriques avec interactions élastiques	128
4.7	Résumé	133
Chapitre 5 – Développement d’une méthode pour intégrer les effets de voisinage dans la dynamique d’amas		135
5.1	Introduction	135
5.2	Dynamique d’amas sans effets de voisinage	136
5.3	Développement d’une expression de force de puits prenant en compte les effets de voisinage	147
5.4	Introduction de la dispersion des forces de puits dans la dynamique d’amas	160
5.5	Résumé et conclusion	170
Conclusion		172
Annexe A – Évaluation de l’erreur sur les forces de puits par la méthode des moyennes par blocs		176
Annexe B – Comparaison des résultats OKMC et des calculs analytiques pour la dislocation droite (cas 0 – défauts sans interactions)		179
Annexe C – Comparaison des résultats OKMC et des calculs analytiques pour la dislocation droite (cas 1 – inclusions sphériques)		182
Annexe D – Évaluation de l’erreur sur les forces de puits dans les microstructures		184
Annexe E – Reproduction de la dispersion des forces de puits en utilisant les volumes de Voronoï		187
Bibliographie		I
Liste des abréviations		XIII

Introduction

Les matériaux de structure des centrales nucléaires sont exposés à un flux de neutrons qui créent du dommage dans le matériau et qui entraînent une modification des propriétés du matériau à l'échelle macroscopique. On observe par exemple une évolution des propriétés mécaniques, comme le durcissement, ou encore des changements dimensionnels comme le gonflement. Ces phénomènes s'expliquent par les évolutions de la microstructure, notamment par la germination et la croissance de cavités et boucles de dislocation. Par exemple, le gonflement, qui est une augmentation isotrope du volume du matériau, est dû à la croissance des cavités. La prévision de l'évolution des microstructures sous irradiation est donc nécessaire à la prédiction des changements dimensionnels ou mécaniques et de la durée de vie des matériaux irradiés.

La germination et la croissance de cavités et de boucles de dislocation sont liées au comportement des défauts ponctuels d'irradiation (atomes auto-interstitiels et lacunes) qui s'agglomèrent du fait de leur sursaturation provoquée par l'irradiation. Les interstitiels et les lacunes étant produits en nombre égal, la croissance de cavités et de boucles requiert des mécanismes physiques supplémentaires à la simple diffusion aléatoire des auto-défauts.

Plusieurs modèles ont été proposés pour expliquer les phénomènes observés sous irradiation, dont le *modèle du biais des dislocations*. Ce dernier suppose une absorption préférentielle d'interstitiels par les dislocations et amas interstitiels. Cette absorption préférentielle est en général due au couplage des champs élastiques générés par les défauts avec ceux générés par les puits (dislocations, cavités, joints de grains, etc.). On parle alors de biais élastiques. Dans le cas du gonflement, il est généralement admis que c'est l'absorption préférentielle des interstitiels par les dislocations et les amas interstitiels qui permet l'apparition d'un excès de lacunes dans la matrice, permettant la formation de cavités, aboutissant au gonflement. Pour pouvoir prédire précisément l'évolution des matériaux sous irradiation, il est donc important de décrire précisément le comportement des défauts ponctuels vis-à-vis des puits.

La simulation de l'évolution des matériaux sous irradiation nécessite de considérer des volumes importants et des temps longs. De ce fait, les méthodes permettant une description explicite des défauts et de leur migration, comme les méthodes de Monte Carlo cinétique (KMC), sont inadaptées car trop limitées aux petits volumes et faibles temps.

On a donc recours à des méthodes en champ moyen, comme la dynamique d'amas (DA). Dans ce type d'approche, les défauts et puits ne sont considérés qu'au travers de leurs concentrations. Les interactions élastiques entre les défauts et les puits ne sont prises en compte que de manière effective, au travers de paramètres appelés *forces de puits*. Ils permettent en particulier d'intégrer les biais d'absorption dans les équations en champ moyen. Ce sont ces paramètres qui représentent la capacité des puits à absorber les défauts ponctuels, et donc incluent les effets des interactions élastiques et les propriétés des défauts ponctuels. Cette approche permet de simuler efficacement l'évolution des microstructures et également de prédire les taux de gonflement des matériaux sous irradiation. Ce formalisme impose cependant des limites conséquentes. En effet, les résultats de DA sont très sensibles aux valeurs des forces de puits. Or, ces paramètres sont mal connus, leur détermination reposant la plupart du temps sur des hypothèses concernant les interactions élastiques ou les propriétés des défauts ponctuels. De plus, ce formalisme, négligeant les corrélations spatiales, aboutit le plus souvent à des distributions trop piquées par rapport aux observations expérimentales. Une évaluation précise des forces de puits prenant en compte les propriétés des défauts, les interactions élastiques et les corrélations spatiales semble donc nécessaire.

Ces travaux de thèse portent sur l'étude des forces de puits.

Le premier objectif est de déterminer les valeurs des forces de puits en prenant en compte les corrélations spatiales ainsi que les interactions entre les puits et les défauts ponctuels. On cherche également à identifier les propriétés des défauts ponctuels qui influencent les valeurs de forces de puits, afin de déterminer le niveau de précision nécessaire dans leur description pour le calcul des forces de puits.

Le second objectif est d'identifier le rôle des effets de voisinage. D'une part, on étudie leur influence sur les forces de puits. Il s'agit de mettre en lumière les variations des forces de puits en présence de différents environnements. D'autre part, on cherche à quantifier les imprécisions de la DA résultant de l'absence des corrélations spatiales dans son formalisme.

L'objectif final est de proposer une modification du formalisme de la DA pour intégrer les résultats de cette étude, afin d'en améliorer la précision.

Les simulations de ce travail sont réalisées dans l'aluminium pur. Il s'agit d'un matériau de structure cubique faces centrées (CFC), modèle des aciers austénitiques utilisés pour les structures internes des réacteurs à eau pressurisée. De plus, ce matériau est très faiblement anisotrope élastiquement, ce qui devrait nous permettre de négliger les effets dus à l'anisotropie élastique et donc de simplifier les calculs. Par ailleurs, il a été largement étudié sous irradiation, ce qui nous permet de disposer d'un très grand nombre de données.

La démarche adoptée dans ce travail est la suivante. Dans le chapitre 1, nous présentons d'abord les évolutions observées dans les microstructures sous irradiation. Ces dernières sont mises en relation avec l'existence de biais d'absorption, et avec le modèle du biais des dislocations. Ce chapitre introduit également la notion de force de puits, utilisée dans ce modèle pour représenter le comportement des défauts vis-à-vis des puits.

La description des défauts ponctuels et de leur migration dans le cadre de la théorie de l'élasticité est également présentée, avant une revue des formules de forces de puits développées dans la littérature, plus précisément centrée sur les hypothèses faites pour les obtenir.

Le chapitre 2 est consacré aux méthodes de simulation des microstructures sous irradiation. Tout d'abord, une brève présentation de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) est donnée. Cette méthode permet notamment de calculer les propriétés des défauts ponctuels nécessaires à la calibration des modèles cinétiques. Les résultats de ces calculs permettent d'alimenter les calculs cinétiques ou en champ moyen. On s'intéresse ensuite aux méthodes Monte Carlo cinétique (KMC), en particulier le Monte Carlo cinétique sur objets (OKMC). Cette méthode est limitée à des faibles temps de calcul et à de petits volumes. Elle permet cependant de simuler la diffusion des défauts ponctuels, en prenant en compte les interactions élastiques entre défauts et puits, et ainsi de déterminer les forces de puits. Enfin, on présente la DA. À la présentation de son formalisme succède l'identification de ses forces et faiblesses, celles-ci étant notamment liées à l'utilisation des forces de puits. Au terme de ce chapitre, les objectifs de ce travail sont formulés et les méthodes numériques qui permettront de les atteindre sont identifiées.

Le chapitre 3 est dédié à la détermination des valeurs de forces de puits, dans des configurations simples de réseaux de puits. On s'intéresse aux forces de puits des objets présents dans les microstructures irradiées comme la dislocation droite, la cavité sphérique et la boucle de dislocation. Les calculs sont effectués par OKMC, ce qui permet de prendre en compte les interactions élastiques entre puits et défauts ponctuels. Les défauts sont représentés par leurs dipôles élastiques, calculés en DFT. Au-delà des valeurs de forces de puits, on cherche surtout à quantifier l'influence des interactions élastiques, mais également à identifier les propriétés des défauts ponctuels qui influencent les forces de puits. Le rôle des polarisabilités diaélastiques, responsables de la variation des dipôles élastiques des défauts ponctuels avec la déformation locale, est également brièvement abordé dans ce chapitre.

Le chapitre 4 est ensuite consacré à l'étude des effets de voisinage. Pour cela, des microstructures sont créées par des simulations OKMC, avant de calculer les forces de puits des amas dans chaque microstructure. Ceci permet de quantifier les effets des différents environnements sur les valeurs des forces de puits, et d'identifier le rôle des effets de voisinage sur ces paramètres.

Enfin, le chapitre 5 vise à déterminer les conséquences de l'absence des corrélations spatiales et des effets de voisinage dans le formalisme de la DA sur les résultats obtenus par cette méthode. Pour cela, les distributions de tailles d'amas obtenues en DA sont comparées à celles issues de simulations OKMC. Les différences observées permettent d'identifier les conséquences de l'absence des corrélations spatiales en DA. Une méthode pour intégrer les effets de voisinage dans la DA est ensuite proposée, en procédant en deux étapes. D'abord, une nouvelle expression de force de puits intégrant les effets de voisinage est construite pour reproduire les effets de voisinage. Ensuite, une adaptation

du formalisme de la DA est proposée pour permettre de prendre en compte ces effets. Au terme de ce chapitre, des simulations sont réalisées avec ce nouveau modèle de DA et les résultats sont comparés à ceux de l'OKMC.

Chapitre 1 —

Microstructures sous irradiation : modèle du biais des dislocations et forces de puits

Sommaire

1.1	Évolution des microstructures sous irradiation : influence des biais élastiques	6
1.1.1	Évolutions sous irradiation	6
1.1.2	Modèle du biais des dislocations	9
1.2	Diffusion des défauts ponctuels dans un champ élastique	12
1.2.1	Description des défauts ponctuels : modèle élastique	12
1.2.2	Diffusion des défauts ponctuels	14
1.3	Forces de puits	19
1.3.1	Dislocation droite de type coin	22
1.3.2	Cavité sphérique	25
1.3.3	Boucle de dislocation	27
1.3.4	Résumé et commentaires	30
1.3.5	Évaluation numérique des forces de puits	33
1.4	Résumé et définition des premiers objectifs de la thèse	35

Ce chapitre vise à introduire la notion de force de puits et à présenter le modèle du biais des dislocations. Ce modèle est couramment utilisé pour expliquer certaines évolutions sous irradiation, comme le gonflement.

Dans la section 1.1, on s'intéresse aux évolutions des métaux sous irradiation. Nous partons des changements visibles à l'échelle macroscopique, en particulier le gonflement, pour remonter aux causes de ces derniers à l'échelle microscopique. Nous nous intéressons particulièrement au modèle du biais des dislocations. Ce modèle est en général utilisé dans le cadre de la cinétique chimique homogène, et repose sur l'utilisation de paramètres, appelés forces de puits, qui décrivent la faculté des puits (dislocations, joints de grains,

etc.) à absorber les défauts ponctuels qui migrent dans la matrice, sous l'influence du champ élastique créé par ces puits.

La diffusion des défauts ponctuels dans un champ élastique est décrite dans la section 1.2.

Dans la section 1.3, nous décrivons le calcul des forces de puits de certains objets de la microstructure. Les différentes approximations pour les calculs de ces forces de puits sont discutées.

1.1 Évolution des microstructures sous irradiation : influence des biais élastiques

1.1.1 Évolutions sous irradiation

Les matériaux de structure des centrales, pour la plupart des alliages métalliques, sont exposés à des irradiations aux neutrons. On observe alors des évolutions, visibles et mesurables à l'échelle macroscopique. Ces évolutions dépendent de la dose reçue par le matériau, qui est mesurée en « déplacements par atome » (dpa). Il s'agit d'une mesure du nombre moyen de déplacements effectué par chaque atome du fait de l'irradiation.

Parmi les principaux phénomènes observés, on compte des changements dimensionnels, tels que le gonflement qui est un changement de dimensions isotrope. Ce phénomène, illustré figure 1.1 (a), est l'une des évolutions sous irradiation les plus emblématiques. Cette augmentation de volume se produit après une certaine dose, appelée dose d'incubation. L'évolution est linéaire avec la dose (voir figure 1.1 (b)). Le taux de gonflement est en général plus élevé dans les matériaux CFC que dans les matériaux cubiques centrés (CC). Dans les CFC, il peut être significatif pour des doses reçues en conditions

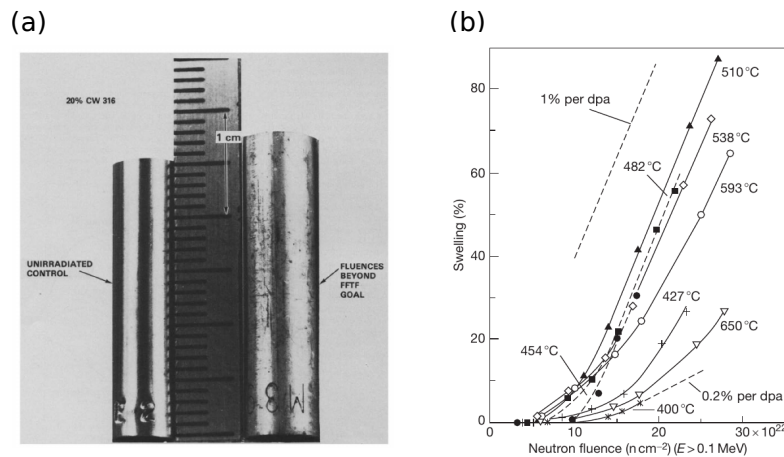


FIGURE 1.1 – (a) Gonflement d'un tube en alliage AISI 316 écroui, irradié à environ 75 dpa, à 783 K [1]. (b) Mesure de gonflement à différentes températures d'un alliage AISI 316 écroui [2].

opérationnelles.

Il existe aussi des phénomènes de croissance et de fluage sous irradiation, qui sont des changements de dimensions anisotropes. La croissance est une modification de la forme à volume constant. Il touche en particulier les gaines de combustible en alliage de zirconium de structure hexagonale compacte (HC) [3], comme illustré sur la figure 1.2. Le fluage survient quant à lui lorsqu'une contrainte est appliquée au matériau. Hors irradiation, ce phénomène apparaît à haute température, mais l'irradiation rend possible le fluage à basse température [4].

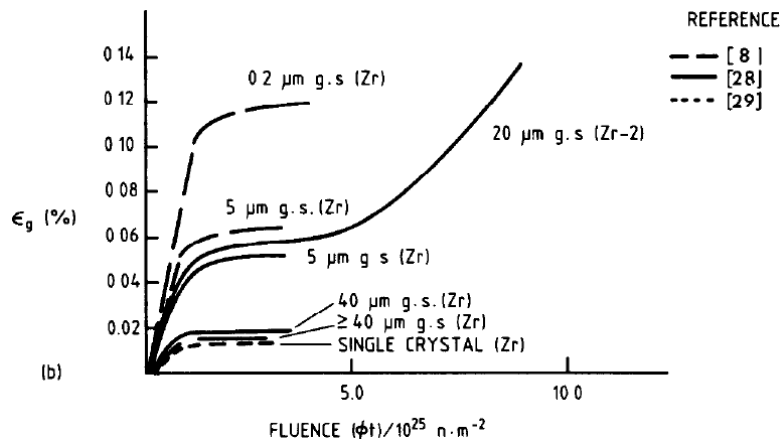


FIGURE 1.2 – Courbe de croissance du zirconium pur et d'un alliage industriel de Zircaloy-2 sous irradiation aux neutrons à 550–590 K, pour différentes tailles de grains [3].

Ces évolutions à l'échelle macroscopique sont dues aux changements des microstructures, particulièrement à la formation et la croissance d'amas de défauts tels que des cavités (figure 1.3) et des boucles de dislocation (figure 1.4). Le gonflement est par exemple lié à la croissance de cavités dans la matrice métallique, tandis que la croissance de boucles de dislocation peut expliquer l'apparition du fluage ou de la croissance sous irradiation, lorsque celles-ci se forment dans les plans favorablement orientés.

Dans les métaux CFC, on peut observer la formation de cavités [5, 6] et de boucles de dislocations. Les boucles de dislocation sont principalement interstitielles [7, 8], les boucles lacunaires pouvant être formées par trempe [7, 9]. Des tétraèdres de faute d'empilement sont également observés [10]. Dans le cas particulier de l'aluminium, auquel nous nous intéressons dans ce travail, des cavités ont été observées sous irradiation [5, 7, 11], ainsi que des boucles de dislocation de type interstitiel [7, 8, 12] et de type lacunaire (sous trempe) [7]. Les tétraèdres de fautes d'empilement sont cependant très rarement observés, probablement du fait de l'énergie de faute d'empilement élevée [10].

Dans les métaux de structure hexagonale compacte, comme le zirconium et ses alliages, on observe sous irradiation, la formation de boucles de dislocation de types interstitiels et lacunaires [3, 10]. Les cavités ont pu être observées dans le zirconium irradié aux neutrons ou aux électrons entre 625 et 775 K, mais n'ont pas été observées dans les alliages de zirconium [3]. La formation de boucles de différents types (interstitiel ou

lacunaire) dans les différents plans de la structure hexagonale (plans prismatiques ou plans basaux), joue un rôle dans la croissance des gaines de combustible.

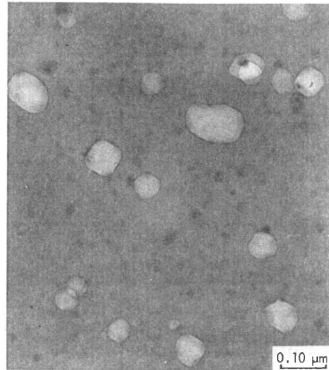


FIGURE 1.3 – Cavités observées à proximité de précipités de silicium, dans un alliage d'aluminium irradié aux neutrons à 328 K environ [5].

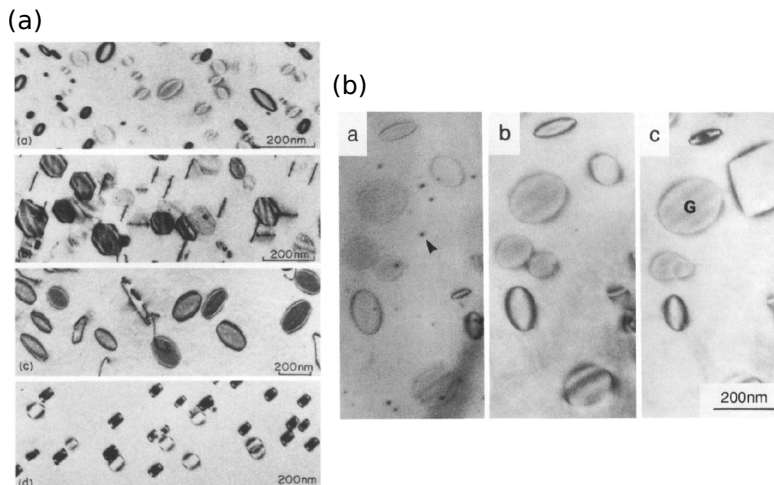


FIGURE 1.4 – (a) Boucles de dislocation observées dans différents métaux irradiés aux électrons à haute température (de haut en bas : aluminium, cuivre, nickel et fer) [7]. (b) Évolution des boucles de dislocation durant l'irradiation. Observation réalisée dans l'aluminium pur irradié aux électrons [8].

La formation des amas de défauts ponctuels peut se produire de deux manières sous irradiation. La particule incidente (neutron, ion ou électron), si elle a une énergie suffisante, va déplacer un atome de son site, créant une paire de Frenkel, constituée de

- l'atome *auto-interstitiel* (ou *interstitiel*), l'atome déplacé,
- et la *lacune*, le site laissé vacant par cet atome.

Pour des énergies transférées faibles, comme pour des irradiations aux électrons, seul un très faible nombre de paires de Frenkel est créé par une particule incidente. Dans ce

cas, la germination des amas se produit par migration des défauts ponctuels à longue distance et agglomération, c'est le cas classique d'une saturation d'espèce en solution solide. Pour des énergies plus importantes, l'atome déplacé par la particule incidente va pouvoir lui-même transférer de l'énergie cinétique à d'autres atomes, créant ainsi une cascade de collisions. Un échauffement local se produit. Des amas peuvent se former dans la cascade de déplacements, sans migration des défauts ponctuels à longue portée. Les amas peuvent ensuite croître par absorption des défauts ponctuels qui migrent dans la matrice.

Pour qu'un amas croisse, il faut qu'il absorbe plus d'auto-défauts du type dont il est constitué (par exemple, pour une cavité, plus de lacunes que d'interstitiels). Or, l'irradiation produit le même nombre de lacunes que d'interstitiels.

Pour expliquer ce paradoxe, deux principaux modèles ont été développés : le modèle du biais de production (notamment développé par B. N. Singh *et al.* [13]), et le *modèle du biais des dislocations* (initialement proposé par G. W. Greenwood *et al.* [14]). Contrairement au modèle du biais de production, qui ne s'applique que dans les régimes de cascades, le modèle du biais des dislocations est plus général. Seul le modèle du biais des dislocations est discuté dans la suite de ce travail.

1.1.2 Modèle du biais des dislocations

G. W. Greenwood *et al.* [14] furent les premiers à proposer l'existence d'un biais d'absorption des dislocations en faveur des interstitiels comme cause de la croissance des cavités, et donc du gonflement. L'absorption préférentielle des atomes auto-interstitiels par les dislocations permet la formation d'un excès de lacunes. Cet excès permet la formation et la croissance de cavités.

L'absorption préférentielle des interstitiels par les dislocations est justifiée par l'interaction élastique à longue portée entre ces puits et les interstitiels, qui ont un important volume de relaxation, tandis que les lacunes, de volume de relaxation plus faible interagissent moins avec les dislocations. Dans ce cas, les biais sont causés par les couplages entre les champs élastiques créés par le défaut et par les puits, notamment les dislocations. Ces biais sont donc appelés biais élastiques. Le « modèle du biais des dislocations » a été formalisé par A. D. Brailsford *et al.* [15], dans une approche de type cinétique chimique homogène (en anglais, *rate theory*), afin de déterminer les taux de croissance des amas. Il s'agit d'écrire des équations pour déterminer l'évolution des concentrations des espèces en présence, en considérant le milieu comme homogène. Dans le cas de l'irradiation, on écrit donc deux équations [15], décrivant les concentrations des interstitiels (désignés par l'indice i) et lacunes (désignées par l'indice v ¹), donnant le système

$$\begin{cases} \frac{dc_i}{dt} = G - \alpha c_i c_v - \sum_p k_{p,i}^2 D_i c_i \\ \frac{dc_v}{dt} = G - \alpha c_i c_v - \sum_p k_{p,v}^2 D_v c_v. \end{cases} \quad (1.1)$$

1. L'indice v qui désigne les lacunes fait référence au terme anglais *vacancy*. Il est utilisé dans ce document pour éviter la confusion de la lettre l avec le chiffre 1.

Dans ces équations, c_i (respectivement c_v) est la concentration d'interstitiels (respectivement de lacunes). La température est supposée suffisamment basse pour négliger la concentration de défauts générée par les puits par activation thermique. G est un terme source représentant le taux de création de défauts ponctuels par l'irradiation, la génération d'amas de défauts dans les cascades est supposée nulle (cas de l'irradiation aux particules légères). α est le taux de recombinaison entre interstitiels et lacunes et D_i et D_v sont les coefficients de diffusion des défauts ponctuels. L'indice p désigne les puits, tels que les dislocations ou cavités. Le taux d'absorption, pour chacun des défauts ponctuels dépend de la nature, taille et concentration des puits présents. Les paramètres appelés *forces de puits*, notés k^2 , servent à décrire cette absorption. Pour chaque puits p , deux valeurs de forces de puits sont donc définies, une pour les interstitiels $k_{p,i}^2$ et une pour les lacunes $k_{p,v}^2$. Les forces de puits sont liées au libre parcours moyen d_{lpm} des défauts mobiles par $d_{\text{lpm},j} = k_j^{-1}$, $j \in \{i, v\}$.

En supposant que l'état stationnaire est atteint, le système (1.1) donne la relation

$$k_{\text{tot},i}^2 D_i c_i = k_{\text{tot},v}^2 D_v c_v, \quad (1.2)$$

où $k_{\text{tot},j}^2 = \sum_p k_{p,j}^2$ ($j = i$ ou v).

On peut alors évaluer le taux de croissance d'une cavité. Pour cela, on note $Z_{c,j} = k_{c,j}^2 / (4\pi r_c C_c)$, où $k_{c,j}^2$ est la force de puits des cavités pour le défaut j , C_c est la concentration de cavités, toutes supposées de même rayon r_c . Le flux net de lacunes vers une cavité sphérique s'écrit

$$\varphi = 4\pi r_c (Z_{c,v} D_v c_v - Z_{c,i} D_i c_i). \quad (1.3)$$

Le nombre de lacunes n dans la cavité étant lié au rayon par

$$n\Omega = \frac{4}{3}\pi r_c^3, \quad (1.4)$$

où Ω est le volume atomique, on a

$$\frac{dr_c}{dt} = \frac{dr_c}{dn} \frac{dn}{dt} = \frac{dr_c}{dn} \varphi \quad (1.5)$$

soit

$$\frac{dr_c}{dt} = \frac{\Omega}{r_c} (Z_{c,v} D_v c_v - Z_{c,i} D_i c_i). \quad (1.6)$$

En utilisant l'équation (1.2), on trouve finalement

$$\frac{dr_c}{dt} = \frac{\Omega}{r_c} Z_{c,i} (B_{\text{tot}} - B_c) D_v c_v, \quad (1.7)$$

où $B_{\text{tot}} = 1 - k_{\text{tot},v}^2 / k_{\text{tot},i}^2$ est le *biais d'absorption* total et $B_c = (k_{c,i}^2 - k_{c,v}^2) / k_{c,i}^2$ est celui des cavités.

Il est possible de définir de manière analogue un biais pour chaque puits, comme la différence relative entre les forces de puits pour les lacunes et pour les interstitiels.

$$B = \frac{k_i^2 - k_v^2}{k_i^2} \quad (1.8)$$

On note que si le biais total est supérieur au biais des cavités, les cavités absorbent un flux net de lacunes et croissent. Bien souvent dans les modèles de cinétique chimique homogène, on fait porter le biais sur les dislocations et on suppose que $B_c = 0$. On dit alors que les cavités sont des puits neutres [15]. La relation (1.7) devient alors une simple relation entre le taux de gonflement et le biais des dislocations.

Le modèle du biais des dislocations permet ainsi d'apporter une explication au gonflement sous irradiation. De nombreux développements ont ensuite été réalisés pour affiner ce modèle [15, 16].

De la même façon, les valeurs de forces de puits et de biais d'absorption sont utilisées dans le cadre de la cinétique chimique homogène, avec différents modèles de fluage, tels que le SIPA (*stress-induced preferred absorption*) ou SIPA-I [17, 18], fluage I (*I-creep*), SIPA-G [19] et SIPA-AD [20, 21]. Par exemple, dans le modèle SIPA-I [18] (modèle dit « de montée pure »), l'application d'une contrainte uniaxiale modifie les biais des boucles selon leur orientation par rapport à la contrainte. Les différences entre les taux de croissance des différents types de boucles conduisent au fluage.

Des arguments portant sur les biais sont aussi avancés pour expliquer la croissance du zirconium. Le modèle DAD (*Diffusion Anisotropy Difference*) [22, 23] postule que les interstitiels migrent de manière anisotrope, ce qui conduit à un biais négatif pour les boucles basales. Notons cependant que dans ce cas, le biais n'a pas d'origine élastique. Plus récemment, le modèle SAS (*shape anisotropy of the SIAs*) [24] a permis de fournir une autre explication pour le biais des boucles basales pour les lacunes, basée sur l'anisotropie de l'interstitiel au point stable (voir section suivante).

En résumé, la théorie du biais des dislocations est introduite dans la cinétique chimique homogène au travers des paramètres de *forces de puits*, dont il existe une valeur pour les interstitiels et une valeur pour les lacunes. La différence entre ces deux valeurs permet de définir le biais d'absorption.

La capacité de la cinétique chimique homogène à fournir des prédictions précises des évolutions sous irradiation dépend donc largement de la précision avec laquelle les expressions et valeurs des forces de puits sont connues. Or, dans cette approche en champ moyen, les forces de puits représentent à la fois les caractéristiques des puits (dislocations, cavités) et les propriétés des défauts ponctuels qui migrent vers ces puits. L'évaluation des forces de puits nécessite donc d'étudier la diffusion des défauts ponctuels dans les champs élastiques générés par les puits.

Nous allons donc d'abord nous intéresser aux propriétés des défauts ponctuels et à leur diffusion dans le réseau cristallin (section 1.2). Nous verrons ensuite comment ces éléments sont pris en compte dans l'évaluation des forces de puits (section 1.3).

1.2 Diffusion des défauts ponctuels dans un champ élastique

1.2.1 Description des défauts ponctuels : modèle élastique

Les défauts ponctuels génèrent une distorsion de la matrice et interagissent donc avec les autres éléments de la microstructure qui créent des champs de déformation, comme les dislocations dont le champ de déformation est à longue portée.

Si la distance entre les défauts et les puits est suffisamment grande, les défauts peuvent être décrits dans le cadre de la théorie de l'élasticité linéaire. Plusieurs modèles peuvent être utilisés pour décrire les défauts ponctuels : dipôles élastiques, inclusion d'Eshelby ou boucle infinitésimale. Ces approches sont équivalentes [25], et dans ce travail nous utilisons la description par dipôles élastiques.

Dipôle élastique

Un défaut ponctuel peut être représenté par un ensemble équilibré de forces [25–27], dites *forces de Kanzaki* [28] $\mathbf{f}^\alpha(\mathbf{R}^\alpha)$, $\alpha = 1, \dots, z$, qui s'appliquent sur les z positions atomiques autour du défaut, comme illustré sur la figure 1.5. Il s'agit des forces qu'il faudrait appliquer au réseau parfait pour aboutir au même champ de déplacement qu'en présence du défaut ponctuel.

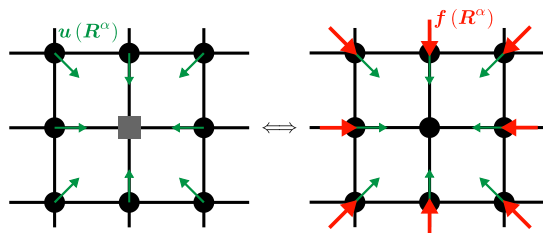


FIGURE 1.5 – Représentation d'un défaut ponctuel (ici une lacune) par des forces de Kanzaki. \mathbf{u} représente le champ de déplacement généré par le défaut et \mathbf{f} représente les forces de Kanzaki, qui doivent être appliquées au réseau parfait pour générer le même champ de déplacement.

Dans le cadre de la théorie élastique linéaire, le champ de déplacement créé en \mathbf{r} , par un défaut ponctuel situé à l'origine et représenté par ces forces ponctuelles, est donné par

$$u_i(\mathbf{r}) = \sum_{\alpha=1}^z G_{ij}(\mathbf{r} - \mathbf{R}^\alpha) f_j^\alpha \quad (1.9)$$

où $G_{ij}(\mathbf{r})$ est la fonction de Green élastique. Ici et dans la suite, on utilise la sommation implicite sur les indices répétés, sauf indication contraire.

L'expression (1.9) peut être développée en série de Taylor, si l'on se place suffisamment loin du défaut ($\|\mathbf{r}\| \gg \|\mathbf{R}^\alpha\|$) :

$$u_i(\mathbf{r}) = G_{ij}(\mathbf{r}) \sum_{\alpha=1}^z f_j^\alpha - G_{ij,k}(\mathbf{r}) \sum_{\alpha=1}^z R_k^\alpha f_j^\alpha + \frac{1}{2!} G_{ij,kl}(\mathbf{r}) \sum_{\alpha=1}^z R_k^\alpha R_l^\alpha f_j^\alpha + \dots \quad (1.10)$$

Ici, on a utilisé la notation $G_{ij,k} = \partial G_{ij} / \partial r_k$ et $G_{ij,kl} = \partial^2 G_{ij} / \partial r_k \partial r_l$.

L'ensemble de forces étant à l'équilibre, $\sum_{\alpha=1}^z f_j^\alpha = 0$ et l'équation (1.10) peut être réécrite, au premier ordre, sous la forme

$$u_i(\mathbf{r}) = -G_{ij,k}(\mathbf{r}) P_{jk}, \quad (1.11)$$

où P_{jk} est le *dipôle élastique*, défini par

$$P_{jk} = \sum_{\alpha=1}^z R_j^\alpha f_k^\alpha. \quad (1.12)$$

Il s'agit d'un tenseur de rang 2, symétrique, car l'ensemble de forces est à l'équilibre, donc ne crée pas de couple, c'est-à-dire que $\sum_{\alpha=1}^z R_j^\alpha f_k^\alpha - \sum_{\alpha=1}^z R_k^\alpha f_j^\alpha$ doit être nul.

Pour un cristal cubique, le volume de relaxation des défauts ponctuels est lié au dipôle élastique par la relation

$$\Delta V = \frac{\text{Tr}(\mathbf{P})}{3K}, \quad (1.13)$$

où K est le module d'élasticité isostatique. Ainsi, on peut différencier « l'interaction de taille », qui implique la trace du dipôle élastique, et « l'interaction de forme », définie par sa partie déviatorique (reflétant la différence entre les termes diagonaux et la présence de termes hors-diagonaux).

L'énergie d'interaction du défaut ponctuel avec un champ de déplacement extérieur \mathbf{u}^{ext} peut également être exprimée à l'aide du dipôle élastique. En effet, en reprenant l'ensemble de forces \mathbf{f}^α représentant le défaut ponctuel, l'énergie d'interaction s'écrit comme le travail des forces de Kanzaki :

$$E^{\text{int}}(\mathbf{u}^{\text{ext}}) = - \sum_{\alpha=1}^z f_i^\alpha u_i^{\text{ext}}(\mathbf{R}^\alpha). \quad (1.14)$$

En supposant que ce champ varie peu sur la région du défaut, où sont appliquées les forces, un développement de Taylor donne

$$E^{\text{int}}(\mathbf{u}^{\text{ext}}) \simeq -u_i^{\text{ext}}(\mathbf{0}) \sum_{\alpha=1}^z f_i^\alpha - u_{i,j}^{\text{ext}}(\mathbf{0}) \sum_{\alpha=1}^z f_i^\alpha R_j^\alpha. \quad (1.15)$$

Le premier terme s'annule du fait de l'équilibre des forces, et on obtient donc l'expression de l'énergie d'interaction sous la forme

$$E^{\text{int}}(\mathbf{u}^{\text{ext}}) = -P_{ij} u_{i,j}^{\text{ext}}. \quad (1.16)$$

Le dipôle étant symétrique, l'énergie peut aussi s'écrire

$$E^{\text{int}}(\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext}}) = -P_{ij}\varepsilon_{ij}^{\text{ext}}, \quad (1.17)$$

où $\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext}}$ est le champ de déformation, défini par $\varepsilon_{ij}^{\text{ext}} = \frac{1}{2}(u_{i,j}^{\text{ext}} + u_{j,i}^{\text{ext}})$.

Polarisabilité diaélastique

L'application d'un champ élastique extérieur peut modifier l'ensemble de forces représentant le défaut ponctuel. Dans ce cas, on dit que le défaut est polarisable. Ceci conduit à un dipôle élastique qui dépend du champ extérieur selon la formule

$$P_{ij}(\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext}}) = P_{ij}^0 + \alpha_{ijkl}\varepsilon_{kl}^{\text{ext}}. \quad (1.18)$$

Dans cette équation, P_{ij}^0 est le dipôle élastique en absence de champ élastique extérieur (équation (1.12)), et α_{ijkl} est le tenseur de *polarisabilité diaélastique* du défaut ponctuel (tenseur d'ordre 4). La polarisabilité décrit le fait que la réponse élastique du matériau dans le voisinage du défaut est modifiée par la présence du défaut.

Ainsi, l'énergie d'interaction du défaut avec le champ élastique extérieur est exprimée, d'après H. R. Schober [29], par

$$E^{\text{int}}(\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext}}) = -P_{ij}^0\varepsilon_{ij}^{\text{ext}} - \frac{1}{2}\alpha_{ijkl}\varepsilon_{ij}^{\text{ext}}\varepsilon_{kl}^{\text{ext}}. \quad (1.19)$$

Il résulte de cette équation que l'application de deux champs de déformation $\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext},1}$ et $\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext},2}$ donne une énergie d'interaction qui s'écrit comme la somme des énergies $E^{\text{int}}(\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext},1})$ et $E^{\text{int}}(\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext},2})$, à laquelle il faut ajouter un terme de couplage, qui n'est présent qu'à cause de la polarisabilité, en $\alpha_{ijkl}\varepsilon_{ij}^{\text{ext},1}\varepsilon_{kl}^{\text{ext},2}$.

Les propriétés des défauts ponctuels peuvent être déduites d'expériences, comme par l'intermédiaire de la mesure des constantes élastiques [30] ou par des mesures de relaxation inélastique [31]. Il est difficile d'accéder par ces méthodes à toutes les composantes des tenseurs \mathbf{P} et $\boldsymbol{\alpha}$. C'est pourquoi les calculs numériques sont également intéressants, les tenseurs pouvant être déterminés par calculs de structure électronique. Dans cette thèse, nous utiliserons des calculs reposant sur la théorie de la fonctionnelle de la densité qui seront présentés au chapitre 2, section 2.2.

1.2.2 Diffusion des défauts ponctuels

Dans un réseau cristallin, les défauts ponctuels migrent en se déplaçant de position stable (les positions atomiques du réseau) en position stable voisine. Les positions stables sont appelées « points stables » dans la suite de ce document.

Pour effectuer ce déplacement, les défauts passent par un maximum d'énergie. La configuration où ce maximum d'énergie est atteint est appelée configuration col, situé à une position appelée « point col ».

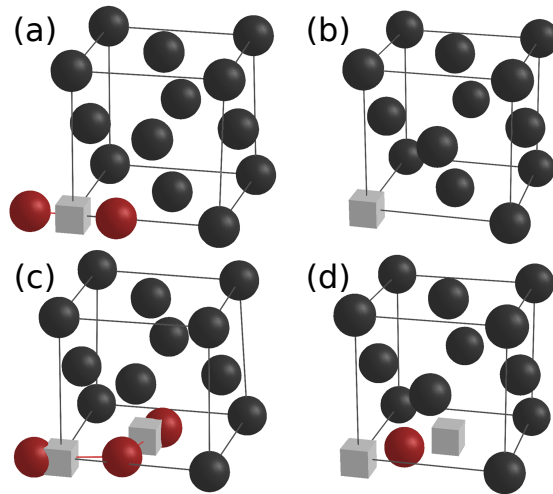


FIGURE 1.6 – Configuration des défauts ponctuels dans le réseau CFC : atome auto-interstitiel (a) au point stable et (c) au point col, et lacune (b) au point stable et (d) au point col.

Migration de l'interstitiel dans les CFC

Dans les métaux CFC, les interstitiels les plus stables sont généralement assimilés à des haltères (*dumbbell*) orientés selon $\langle 100 \rangle$, constitués des deux atomes partageant le site du réseau cristallin [32]. Il s'agit donc d'un objet asymétrique, tel qu'illustré sur la figure 1.6 (a). Il existe donc dans l'aluminium 3 configurations au point stable.

La migration de cet interstitiel se fait par un mécanisme de « translation-rotation » d'une orientation $\langle 100 \rangle$ vers une orientation $\langle 100 \rangle$ différente. Chaque configuration stable dispose de 8 sauts possibles vers l'une des deux autres configurations stables, vers 8 positions stables proches voisines (voir figure 1.7 (a)), 4 n'étant pas accessibles. Ce mécanisme de diffusion crée quatre canaux de diffusion indépendants [32]. Les 8 configurations de point col associées à ces déplacements sont alignées selon les directions de saut $\langle 110 \rangle$, comme illustré sur la figure 1.6 (c).

Migration de la lacune dans les CFC

La lacune est constituée du site cristallin laissé vacant. Il s'agit donc d'un objet isotrope, avec une seule configuration de point stable, illustrée figure 1.6 (b).

Cet objet se déplace par le mouvement de l'atome situé sur la position stable d'arrivée de la lacune vers la position initiale de cette dernière, comme le montre la figure 1.6 (d). En conséquence, la lacune est orientée au point col selon la direction de saut $\langle 110 \rangle$. Les 12 sauts sont donc accessibles à partir de la configuration stable (voir figure 1.7 (b)).

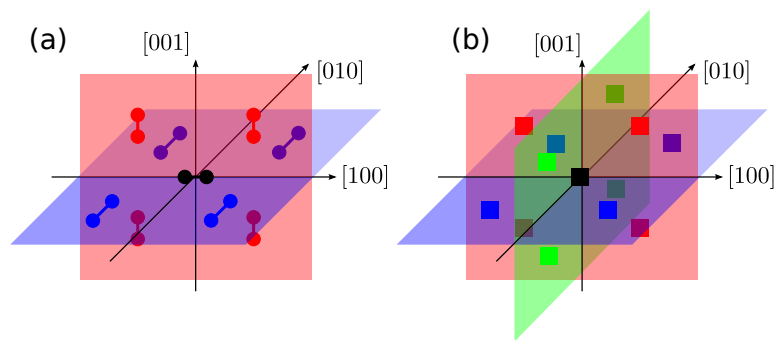


FIGURE 1.7 – Positions stables accessibles par le saut d’un défaut ponctuel : (a) exemple de l’interstitiel selon $[100]$, 4 sauts vers l’orientation $[010]$ (en bleu) et 4 sauts vers l’orientation $[001]$ (en rouge), (b) lacune, 12 sauts possibles.

Diffusion des défauts dans un champ élastique

La diffusion des défauts dans le réseau cristallin parfait et sans application de champ élastique extérieur nécessite de franchir une barrière d’énergie dont la valeur est appelée l’énergie de migration E_0^m .

L’application d’un champ de déformation au matériau, ou encore la présence de défauts cristallins générant un champ de déformation (comme une dislocation) conduit à l’apparition d’une énergie d’interaction (équations (1.17) et (1.19)). Cette énergie dépend des propriétés du défaut et de sa position, par la valeur du champ à cette position. Ainsi, en général, l’énergie d’interaction n’est pas identique au point stable et au point col, car le défaut n’y a pas les mêmes propriétés et le champ peut également varier entre ces deux points. En conséquence, la migration du défaut est impactée par la variation de l’énergie au point stable et au point col. Pour un défaut initialement en \mathbf{r} et sautant d’un vecteur de saut \mathbf{h} , la barrière d’énergie s’écrit

$$E_{\mathbf{h}}^m(\mathbf{r}) = E_0^m - E^{\text{sta}}(\mathbf{r}) + E_{\mathbf{h}}^{\text{col}}(\mathbf{r}). \quad (1.20)$$

E^{sta} et $E_{\mathbf{h}}^{\text{col}}$ sont les énergies d’interaction du défaut au point stable et au point col respectivement, qui au premier ordre, suivent l’équation (1.17) :

$$E^{\text{sta}}(\mathbf{r}) = -P_{ij}^{\text{sta}}\varepsilon_{ij}(\mathbf{r}), \quad (1.21)$$

$$E_{\mathbf{h}}^{\text{col}}(\mathbf{r}) = -P_{ij}^{\text{col}}(\mathbf{h})\varepsilon_{ij}(\mathbf{r} + \mathbf{h}/2), \quad (1.22)$$

où \mathbf{P}^{sta} est le dipôle élastique du défaut au point stable, et $\mathbf{P}^{\text{col}}(\mathbf{h})$ est le dipôle dans la configuration col associée au saut \mathbf{h} . Enfin, on a supposé que le point col se situe en $\mathbf{r} + \mathbf{h}/2$, soit à mi-distance du saut. La modification de l’énergie de migration du défaut lors de sa migration dans le cristal en présence de source de déformation est illustrée figure 1.8.

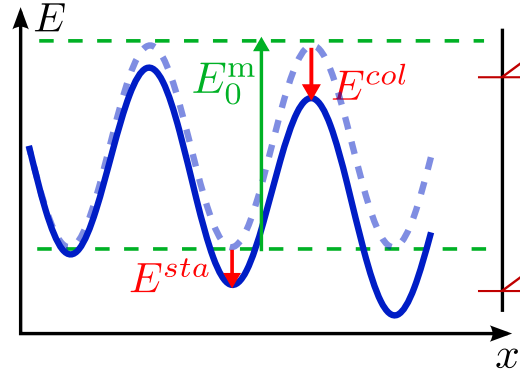


FIGURE 1.8 – Modification de l'énergie de migration du défaut ponctuel migrant vers un puits (une dislocation) en conséquence des énergies d'interaction au point stable E^{sta} et au point col E^{col} .

Tenseur de diffusion et influence de l'anisotropie au point col

La diffusion des défauts ponctuels dans le réseau cristallin peut être représentée par le tenseur de diffusion \mathbf{D} . P. H. Dederichs et K. Schroeder [33] ont montré que le flux de défauts ponctuels dans un réseau cristallin pouvait s'écrire sous la forme

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}) = -\tilde{\mathbf{D}}(\mathbf{r})\nabla U_{\text{tot}}(\mathbf{r}), \quad (1.23)$$

avec

$$U_{\text{tot}}(\mathbf{r}) = \sum_{k=1}^s U^k(\mathbf{r}), \quad (1.24)$$

où $U^k(\mathbf{r})$ est la concentration normalisée de la configuration k ($k = 1, \dots, s$), qui s'écrit

$$U^k(\mathbf{r}) = C^k(\mathbf{r}) \exp\left(\frac{E^{\text{sta},k}(\mathbf{r})}{k_{\text{B}}T}\right). \quad (1.25)$$

Dans cette équation, $C^k(\mathbf{r})$ est la concentration de la configuration k , k_{B} est la constante de Boltzmann et T la température.

En supposant l'équilibre entre les configurations, on peut écrire

$$\frac{C^k(\mathbf{r})}{C^l(\mathbf{r})} = \frac{\exp(-E^{\text{sta},k}(\mathbf{r})/k_{\text{B}}T)}{\exp(-E^{\text{sta},l}(\mathbf{r})/k_{\text{B}}T)}, \quad (1.26)$$

et, dans ce cas, $U^k(\mathbf{r})$ est indépendant de la configuration k . On obtient donc l'expression de la concentration de la configuration k par

$$C^k(\mathbf{r}) = \frac{1}{s} U_{\text{tot}}(\mathbf{r}) \exp\left(-\frac{E^{\text{sta},k}(\mathbf{r})}{k_{\text{B}}T}\right). \quad (1.27)$$

Le coefficient de diffusion normalisé est donné par

$$\tilde{D}_{ij}(\mathbf{r}) = \frac{1}{2}\nu K \sum_{\mathbf{h}} h_i h_j \exp\left(-\frac{E_{\mathbf{h}}^{\text{col}}(\mathbf{r})}{k_{\text{B}}T}\right), \quad (1.28)$$

où la sommation se fait sur les différents sauts \mathbf{h} . On a utilisé $E_{\mathbf{h}}^{\text{col}}$ au lieu de $E^{\text{col},k}$ pour identifier l'énergie d'interaction d'un défaut au point col pour un saut \mathbf{h} , puisqu'une seule configuration est associée à un saut \mathbf{h} donné. Dans cette équation, on a supposé que la fréquence de saut sans interactions élastiques est la même pour tous les sauts $\nu = \nu_0 \exp(-E_0^{\text{m}}/k_{\text{B}}T)$, où ν_0 est la fréquence d'attaque et E_0^{m} est l'énergie de migration. Enfin, K vaut 1 pour les lacunes, et $\frac{2}{3}$ pour les interstitiels (haltères $\langle 100 \rangle$).

Les flux peuvent également être écrits en fonction de la concentration totale C_{tot} , par

$$C_{\text{tot}}(\mathbf{r}) = \sum_{k=1}^s C^k(\mathbf{r}) \quad (1.29)$$

$$= \sum_{k=1}^s \frac{1}{s} U_{\text{tot}}(\mathbf{r}) \exp\left(-\frac{E^{\text{sta},k}(\mathbf{r})}{k_{\text{B}}T}\right) \quad (1.30)$$

$$= U_{\text{tot}}(\mathbf{r}) \exp\left(-\frac{E^{\text{sta,eff}}(\mathbf{r})}{k_{\text{B}}T}\right), \quad (1.31)$$

où $E^{\text{sta,eff}}(\mathbf{r})$ est une énergie effective d'interaction au point stable, donnée par

$$\exp\left(-\frac{E^{\text{sta,eff}}(\mathbf{r})}{k_{\text{B}}T}\right) = \frac{1}{s} \sum_{k=1}^s \exp\left(-\frac{E^{\text{sta},k}(\mathbf{r})}{k_{\text{B}}T}\right). \quad (1.32)$$

On obtient donc

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}) = -\tilde{\mathbf{D}}(\mathbf{r}) \nabla \left(C_{\text{tot}}(\mathbf{r}) \exp\left(E^{\text{sta,eff}}(\mathbf{r})/k_{\text{B}}T\right) \right) \quad (1.33)$$

$$= -\tilde{\mathbf{D}}(\mathbf{r}) \exp\left(E^{\text{sta,eff}}(\mathbf{r})/k_{\text{B}}T\right) \nabla C_{\text{tot}}(\mathbf{r}) - \tilde{\mathbf{D}}(\mathbf{r}) C_{\text{tot}}(\mathbf{r}) \frac{1}{k_{\text{B}}T} \exp\left(E^{\text{sta,eff}}(\mathbf{r})/k_{\text{B}}T\right) \nabla E^{\text{sta,eff}}(\mathbf{r}) \quad (1.34)$$

$$= -\mathbf{D}(\mathbf{r}) \nabla C_{\text{tot}}(\mathbf{r}) - \mathbf{D}(\mathbf{r}) \frac{1}{k_{\text{B}}T} C_{\text{tot}} \nabla E^{\text{sta,eff}}(\mathbf{r}) \quad (1.35)$$

où le tenseur de diffusion \mathbf{D} s'écrit

$$D_{ij}(\mathbf{r}) = \frac{1}{2}\nu K \sum_{\mathbf{h}} h_i h_j \exp\left(-\frac{1}{k_{\text{B}}T} \left(E^{\text{col},\mathbf{h}}(\mathbf{r}) - E^{\text{sta,eff}}(\mathbf{r}) \right)\right). \quad (1.36)$$

En première approximation, si le champ de déformation ε varie peu spatialement, et si P_{ij}^{col} est indépendant de la position, on a

$$E_{\mathbf{h}}^{\text{col}}(\mathbf{r}) = -\varepsilon_{ij}(\mathbf{r}) P_{ij}^{\text{col},\mathbf{h}}. \quad (1.37)$$

Si le dipôle est isotrope au point col, $P_{ij}^{\text{col},\mathbf{h}} = P^{\text{col}}\delta_{ij}$. Comme de plus $\sum_{\mathbf{h}} h_j h_j = 0$ si $i \neq j$, on obtient $D_{ij}(\mathbf{r}) = 0$ pour $i \neq j$. Le tenseur de diffusion est donc isotrope si le dipôle est isotrope au point col.

On a alors

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}) = -D(\mathbf{r})\nabla C_{\text{tot}}(\mathbf{r}) - D(\mathbf{r})\frac{1}{k_{\text{B}}T}C_{\text{tot}}\nabla E^{\text{sta,eff}}(\mathbf{r}), \quad (1.38)$$

où $D(\mathbf{r})$ est le coefficient de diffusion dépendant de la position, qui s'écrit, pour un réseau CFC,

$$D(\mathbf{r}) = \nu K a_0^2 \exp\left(-\frac{1}{k_{\text{B}}T}\left(E^{\text{col}}(\mathbf{r}) - E^{\text{sta,eff}}(\mathbf{r})\right)\right), \quad (1.39)$$

où a_0 est le paramètre de maille du réseau.

Si de plus, le défaut a les mêmes propriétés au point stable et au point col, $E^{\text{col}}(\mathbf{r}) = E^{\text{sta,eff}}(\mathbf{r}) = E(\mathbf{r})$, et D ne dépend plus de la position. On obtient

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}) = -D\nabla C_{\text{tot}}(\mathbf{r}) - D\frac{1}{k_{\text{B}}T}C_{\text{tot}}\nabla E(\mathbf{r}). \quad (1.40)$$

Cette équation est très souvent utilisée dans le calcul des forces de puits [34–36]. Elle n'est valide que pour un dipôle isotrope de mêmes propriétés au point col et au point stable.

La diffusion des défauts est donc a priori fortement influencée par leurs propriétés au point stable et au point col. La représentation de ces flux de défauts ponctuels par le calcul des forces de puits nécessite donc de prendre en compte ces propriétés. Mais la plupart des évaluations de forces de puits reposent sur des hypothèses simplificatrices comme l'absence d'interactions élastiques ou l'isotropie du défaut ponctuel afin de pouvoir utiliser l'équation (1.40). La section suivante (1.3) vise à présenter les expressions de forces de puits qui ont été développées dans la littérature, en résumant les hypothèses associées.

1.3 Forces de puits

L'évaluation des forces de puits se fait généralement en résolvant l'équation de diffusion. À cette fin, on suppose que le puits est entouré d'une région sans puits, dont la taille est liée à la densité de puits dans le matériau ρ (par exemple, on peut la définir comme la mi-distance entre les puits). On impose ensuite des conditions aux limites à la surface du puits $\delta\Omega_{\text{in}}$ et sur la surface de la région sans puits qui l'entoure $\delta\Omega_{\text{out}}$. Les interactions élastiques peuvent être prises en compte dans la migration des défauts ponctuels.

Trois approches principales peuvent être utilisées pour déterminer la force de puits. Les deux approches dites de Laplace et de Poisson sont deux approches de type « cellulaire » qui consistent à imposer des conditions aux limites « strictes » sur $\delta\Omega_{\text{out}}$ (en flux ou en concentration), tandis que des conditions aux limites de continuité avec un milieu

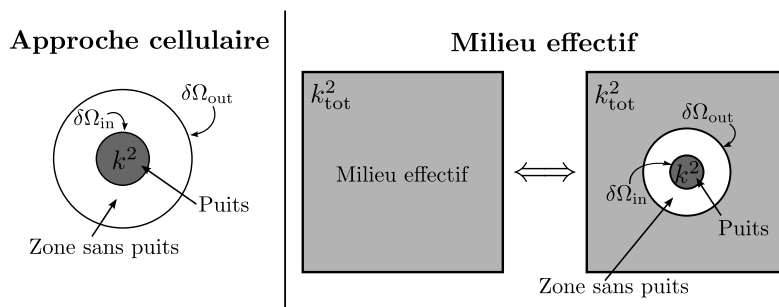


FIGURE 1.9 – Représentation schématique des approches cellulaire et « milieu effectif » pour la détermination d'une force de puits.

effectif de force de puits totale k_{tot}^2 sont imposées dans la troisième approche, dite du « milieu effectif ».

1. Approche de type Laplace :

Il s'agit d'imposer les valeurs des concentrations sur les surfaces $\delta\Omega_{\text{in}}$ et $\delta\Omega_{\text{out}}$. Le taux de création de défauts est considéré comme nul, et le système à résoudre est donc le suivant :

$$\begin{cases} \nabla \cdot \mathbf{j} = 0 \\ C(\delta\Omega_{\text{in}}) = C_{\text{in}} \\ C(\delta\Omega_{\text{out}}) = C_{\text{out}} \end{cases} \quad (1.41)$$

La force de puits est alors déterminée en calculant le flux de défauts vers le puits φ , par la relation

$$k^2 = \frac{\varphi \rho}{D(C_{\text{out}} - C_{\text{in}})}, \quad (1.42)$$

où ρ est la densité de puits.

2. Approche de type Poisson :

Ici, la valeur de la concentration sur la surface du puits est fixée, et on impose un flux nul sur le bord de la région sans puits $\delta\Omega_{\text{out}}$. Le taux de création de défauts G est non nul, et il donne la valeur du flux de défauts vers le puits $\varphi = G$. Le système à résoudre est donc le suivant :

$$\begin{cases} \nabla \cdot \mathbf{j} = G \\ C(\delta\Omega_{\text{in}}) = C_{\text{in}} \\ \mathbf{j}(\delta\Omega_{\text{out}}) = 0 \end{cases} \quad (1.43)$$

Ici, la valeur de la force de puits est déterminée à partir de la concentration sur la surface $\delta\Omega_{\text{out}}$:

$$k^2 = \frac{\varphi \rho}{D(C_{\text{out}} - C_{\text{in}})}. \quad (1.44)$$

L'approche de **Wiedersich** [37] repose également sur la résolution du système (1.43), mais dans ce cas l'évaluation se fait par l'intermédiaire du calcul de la

concentration moyenne dans la zone entourant le puits \bar{C} :

$$k^2 = \frac{\varphi\rho}{D(\bar{C} - C_{\text{in}})}. \quad (1.45)$$

Cette approche nécessite donc de résoudre le système (1.43) pour obtenir l'expression de la concentration, et d'en réaliser l'intégration spatiale entre les surfaces $\delta\Omega_{\text{in}}$ et $\delta\Omega_{\text{out}}$. Ce modèle est réputé pour être plus réaliste que les approches de Poisson et de Laplace [38].

3. Approche du milieu effectif :

Cette approche, développée notamment par A. D. Brailsford *et al.* [15, 39], vise à considérer le matériau comme un milieu absorbant effectif de force de puits k_{tot}^2 , qui est une conséquence de la présence de tous les puits dans le matériau. Le système (le puits et la zone qui l'entoure) est donc lui-même immergé dans un milieu absorbant dont on cherche à calculer la force de puits. Il s'agit donc de déterminer le flux de défauts ponctuels vers le puits p pour en déduire sa force de puits k_p^2 en fonction de la force de puits du milieu k_{tot}^2 . Cette dépendance vient des conditions aux limites de continuité en $\delta\Omega_{\text{out}}$. La résolution se fait par auto-cohérence, en imposant $k_{\text{tot}}^2 = \sum_p k_p^2$ où p est le type de puits. Il est donc nécessaire de réaliser le calcul de toutes les forces de puits simultanément.

Plusieurs études ont été consacrées à la détermination de ces forces de puits. Notamment, une revue des équations existantes dans le cas où les interactions sont négligées est proposée par F. A. Nichols [38]. Une revue est également proposée par A. D. Brailsford et R. Bullough [40] qui s'intéressent plus particulièrement à l'approche « milieu effectif ». Cette section est consacrée à la présentation des principales formules qui seront utilisées dans la suite de ce manuscrit.

Les formules présentées dans cette section reposent généralement sur les hypothèses suivantes :

- le tenseur de diffusion est isotrope, et le coefficient de diffusion D est considéré comme une constante, sauf mention contraire,
- les recombinaisons entre interstitiels et lacunes sont négligées.

Il est nécessaire d'introduire ici la notion d'*efficacité d'absorption*, déjà évoquée dans la sous-section 1.1.2. Pour chaque puits, cette grandeur sans unité, notée Z_j , est liée à la force de puits k_j^2 ($j \in \{\text{i}, \text{v}\}$) par un facteur qui dépend de la géométrie du puits et de sa densité dans le volume ρ . Par exemple,

- pour une dislocation, $k^2 = \rho Z$ (ρ est exprimé en m^{-2}),
- pour une cavité sphérique de rayon r_c , $k^2 = 4\pi r_c \rho Z$ (ρ est exprimé en m^{-3}),
- pour une boucle de dislocation de rayon r_L , $k^2 = 2\pi r_L \rho Z$ (ρ est exprimé en m^{-3}).

Cette quantité permet de comparer les forces de puits pour les interstitiels et les lacunes, en enlevant la contribution venant de la densité de puits. Nous comparerons

donc dans la suite de cette section les valeurs des efficacités d'absorption. Notons que ces quantités permettent également de calculer le biais défini en (1.8), car

$$B = \frac{k_i^2 - k_v^2}{k_i^2} = \frac{Z_i - Z_v}{Z_i}. \quad (1.46)$$

Introduisons enfin la grandeur $\kappa = k^2/\rho$ qui sera utilisée dans ce manuscrit, qui vise à identifier les variations des forces de puits ne venant pas de la variation de la densité, donc intrinsèque au puits.

1.3.1 Dislocation droite de type coin

Dans ce cas, on s'intéresse au problème dont la géométrie à symétrie cylindrique est illustrée figure 1.10. La dislocation est considérée comme un puits cylindrique de rayon r_c (rayon de capture de la dislocation) immergée dans une zone sans puits cylindrique de rayon R . En conséquence, la densité de dislocations est donnée par $\rho = (\pi R^2)^{-1}$.

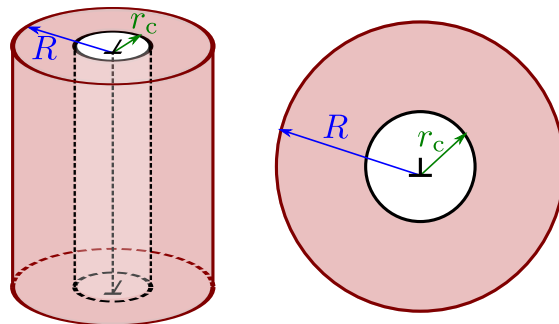


FIGURE 1.10 – Géométrie à symétrie cylindrique pour déterminer la force de puits de la dislocation droite.

Tout d'abord, passons en revue les expressions existantes pour le cas où les interactions élastiques entre les défauts et le puits sont négligées. Dans ce cas, la force de puits est identique pour les deux types de défauts ponctuels, et le flux de défauts (équation 1.40) s'écrit simplement comme

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = -D\nabla C(\mathbf{r}, t). \quad (1.47)$$

Solution de l'équation de Laplace

La résolution du système (1.41) appliqué à la géométrie cylindrique de la figure 1.10 permet d'aboutir à la formule de force de puits k^2 dont on déduit l'efficacité d'absorption :

$$Z_{\text{Laplace}}^{\text{dislo.}} = \frac{2\pi}{\ln\left(\frac{R}{r_c}\right)}. \quad (1.48)$$

Solution de l'équation de Poisson

La solution du système (1.43) en géométrie cylindrique donne l'efficacité d'absorption :

$$Z_{\text{Poisson}}^{\text{dislo.}} = \frac{2\pi}{\ln\left(\frac{R}{r_c}\right) - \frac{1}{2} + \frac{1}{2}\left(\frac{r_c}{R}\right)^2}. \quad (1.49)$$

Notons que si $r_c \ll R$ le résultat (1.49) tend vers la solution de Laplace (1.48).

Solution de Wiedersich

La résolution du système (1.43) est suivie de l'évaluation de la concentration moyenne \bar{C}

$$\bar{C} = \frac{1}{\pi(R^2 - r_c^2)} \int_{r_c}^R C(r)\pi r dr. \quad (1.50)$$

Ceci permet d'obtenir la solution :

$$Z_{\text{Wiedersich}}^{\text{dislo.}} = 2\pi \frac{\left(1 - \left(\frac{r_c}{R}\right)^2\right)}{\ln\left(\frac{R}{r_c}\right) - \frac{3}{4} + \left(\frac{r_c}{R}\right)^2 - \frac{1}{4}\left(\frac{r_c}{R}\right)^4}. \quad (1.51)$$

Milieu absorbant effectif

L'approche milieu effectif a été appliquée aux dislocations droites par A. D. Brailsford *et al.* [39] qui considèrent une diffusion des défauts dans la zone entourant la dislocation sans interactions élastiques. Ces dernières sont représentées par une augmentation de la vitesse de transfert pour le dernier saut, qui est considéré de longueur a_0 , le paramètre de maille. La zone sans puits est réduite à zéro ($R \rightarrow r_c$), ce qui est une hypothèse courante dans cette approche. Le calcul ne sera pas développé ici, car cette approche n'est pas discutée dans la suite de ce travail. Notons cependant qu'en l'absence d'autres types de puits dans le milieu absorbant, et pour les fractions volumiques faibles de puits, l'expression obtenue se réduit à

$$Z_{\text{BBH}}^{\text{dislo}} \simeq \frac{2\pi}{\ln\left(\frac{2}{\sqrt{2\pi\rho r_c}}\right)} \simeq \frac{2\pi}{\ln\left(\sqrt{2}\frac{R}{r_c}\right)}, \quad (1.52)$$

où ρ est la densité de dislocation. Cette expression est donc très proche de la solution du système de Laplace (eq. (1.48)).

Prise en compte des interactions élastiques

La prise en compte des interactions élastiques dans le calcul de la force de puits a été réalisée par plusieurs auteurs [41–44]. La solution proposée par A. Rauh et D. Simon [41] consiste à considérer que la diffusion est affectée par le champ de déformation généré par la dislocation, selon l'équation (1.40), avec une énergie d'interaction

$$E(r, \theta) = \pm k_B T L \frac{\cos(\theta)}{r}, \quad (1.53)$$

où r et θ sont des coordonnées définies sur la figure 1.11. Le signe \pm vient de la valeur du volume de relaxation ΔV , qui peut être positif ou négatif. k_B est la constante de Boltzmann, T la température et L est une constante proportionnelle au volume de relaxation du défaut ponctuel :

$$L = \mu b \frac{1 + \nu}{3\pi(1 - \nu)} \frac{|\Delta V|}{k_B T}. \quad (1.54)$$

Ceci revient à considérer uniquement le défaut comme une inclusion sphérique, isotrope. Dans cette équation, μ est le module de cisaillement et ν est le coefficient de Poisson du matériau supposé isotrope, et b est le module du vecteur de Burgers de la dislocation. Enfin ΔV est le volume de relaxation du défaut ponctuel. L caractérise ainsi la portée des interactions entre la dislocation et le défaut ponctuel.

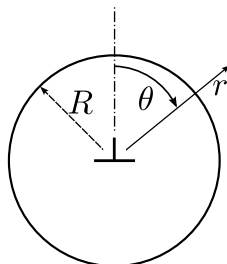


FIGURE 1.11 – Géométrie de la dislocation telle que considérée par A. Rauh et D. Simon [41], définissant la distance r et l'angle θ .

La résolution analytique est possible pour le système de (1.41), ce qui aboutit à l'expression d'efficacité d'absorption

$$Z_{\text{Rauh}}^{\text{dislo.}} = 2\pi \sum_{n=0}^{\infty} (2 - \delta_{n,0}) (-1)^n \frac{I_n \left(\frac{L}{2r_c} \right) I_n \left(\frac{L}{2R} \right)}{I_n \left(\frac{L}{2r_c} \right) K_n \left(\frac{L}{2R} \right) - I_n \left(\frac{L}{2R} \right) K_n \left(\frac{L}{2r_c} \right)} \quad (1.55)$$

où I_n et K_n sont les fonctions de Bessel modifiées, respectivement de première espèce et de deuxième espèce, et $\delta_{n,0} = 1$ si $n = 0$ et 0 sinon.

Les solutions proposées par W. G. Wolfer et M. Ashkin [44] et par I. G. Margvelashvili et Z. K. Saralidze [42] sont équivalentes à la solution de A. Rauh et D. Simon pour des densités de dislocations faibles (c'est-à-dire pour R très grand). En effet, on peut montrer [36] que ces solutions sont obtenues en imposant des conditions aux limites différentes sur $\delta\Omega_{\text{out}}$: $C(\delta\Omega_{\text{out}}) = C_{\text{out}} \exp(-\frac{E(r)}{k_B T})$ pour W. G. Wolfer et M. Ashkin [44], et $C(\delta\Omega_{\text{out}}) = C_{\text{out}} \exp(-\frac{E(r)}{2k_B T})$ pour I. G. Margvelashvili et Z. K. Saralidze [42].

L'expression (1.55) se simplifie pour $L \gg 2R$ et $L \gg 2r_c$ [36] à l'expression

$$Z_{\text{Rauh}_1}^{\text{dislo.}} = \frac{2\pi}{\ln \left(\frac{4R}{L \exp(\gamma)} \right)} \quad (1.56)$$

où γ est la constante d'Euler. Cette expression est généralement approximée par

$$Z_{\text{Rauh}_1}^{\text{dislo.}} \simeq \frac{2\pi}{\ln \left(\frac{2R}{L} \right)}, \quad (1.57)$$

qui correspond à l'expression (1.48), où r_c a été remplacé par $\frac{L}{2}$.

A. D. Brailsford et R. Bullough ont également déterminé la force de puits d'une dislocation coin, dans l'approche du milieu effectif, utilisant la grandeur physique L . Cette approche n'étant pas discutée dans la suite de ce travail, nous ne développons pas le calcul ici. Les détails sont donnés dans la référence [40].

1.3.2 Cavité sphérique

La détermination de la force de puits d'une cavité se fait en considérant la géométrie à symétrie sphérique illustrée sur la figure 1.12. Une cavité sphérique de rayon r_c est immergée dans un milieu sans puits sphérique de rayon R . La densité de cavités se calcule dans ce cas selon $\rho = (\frac{4}{3}\pi R^3)^{-1}$.

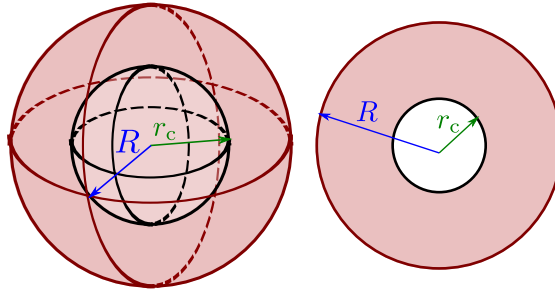


FIGURE 1.12 – Géométrie à symétrie sphérique pour déterminer la force de puits de la cavité.

La résolution des systèmes (1.41) et (1.43) en coordonnées sphériques donne les solutions suivantes :

Solution de l'équation de Laplace

$$Z_{\text{Laplace}}^{\text{cav.}} = \frac{1}{1 - \frac{r_c}{R}} \quad (1.58)$$

Solution de l'équation de Poisson

$$Z_{\text{Poisson}}^{\text{cav.}} = \frac{1 - \left(\frac{r_c}{R}\right)^3}{1 - \frac{3}{2}\left(\frac{r_c}{R}\right) + \frac{1}{2}\left(\frac{r_c}{R}\right)^3} \quad (1.59)$$

Solution de Wiedersich

$$Z_{\text{Wiedersich}}^{\text{cav.}} = \frac{1 - \left(\frac{r_c}{R}\right)^3}{1 - \frac{9}{5}\frac{r_c}{R} + \left(\frac{r_c}{R}\right)^3 + \frac{1}{5}\left(\frac{r_c}{R}\right)^6} \quad (1.60)$$

Ces trois expressions tendent vers 1 quand $R \gg r_c$.

Milieu absorbant effectif

Cette méthode a été appliquée au cas de la cavité sphérique par A. D. Brailsford *et al.* [39], qui aboutissent à l'expression suivante, dans laquelle k_{tot}^2 est la force de puits du milieu effectif, où seules les cavités et dislocations sont présentes :

$$Z_{\text{BBH}}^{\text{cav.}} = F(k_{\text{tot}}) [1 + g(k_{\text{tot}})], \quad (1.61)$$

où

$$\begin{cases} F(k_{\text{tot}}) = \frac{1+k_{\text{tot}}R}{1+k_{\text{tot}}(R-r_c)} \\ g(k_{\text{tot}}) = \frac{k_{\text{tot}}^2(R-r_c)}{6(1+k_{\text{tot}}R)} ((R+r_c)(3+k_{\text{tot}}R) - 2k_{\text{tot}}r_c^2) \end{cases} \quad (1.62)$$

Au terme de la résolution autocohérente, cette expression devient finalement au premier ordre $Z_{\text{BBH}_1}^{\text{cav.}} = 1$.

Le choix de R a été discuté par A. D. Brailsford *et al.* [39]. Dans le cas où les seuls puits sont les cavités ($k_{\text{tot}}^2 = k_c^2$), un choix raisonnable est $R = (\frac{3}{4\pi\rho})^{\frac{1}{3}}$. Cependant, il semble que le choix $R = r_c$ produise des résultats assez satisfaisants. Cela conduit à une expression beaucoup plus simple :

$$Z^{\text{cav.}} = 1 + r_c k_{\text{tot}}. \quad (1.63)$$

Cette expression, également autocohérente, est souvent utilisée comme formule pour la force de puits des cavités à forte fraction volumique [40, 45].

Prise en compte des interactions élastiques

Comme pour la dislocation droite, les interactions élastiques ont été prises en compte dans la migration des défauts ponctuels pour la détermination des forces de puits. Le champ de déformation généré par une cavité sphérique ε vérifie $\text{Tr}(\varepsilon) = 0$ [46, 47]. En conséquence, un défaut ponctuel isotrope a une énergie d'interaction nulle avec la cavité. Pour calculer les forces de puits en prenant en compte les interactions élastiques, il est donc nécessaire de considérer l'anisotropie des défauts.

V. A. Borodin *et al.* [47] ont réalisé le calcul en prenant en compte l'anisotropie des défauts ponctuels, à partir de leurs dipôles élastiques. Le tenseur de diffusion dépend donc des dipôles élastiques des défauts ponctuels.

Le système résolu est un système de type (1.43), avec un flux dépendant des composantes du tenseur de diffusion :

$$\nabla \cdot \mathbf{j} = -\frac{\partial}{\partial x_i} D_{ij} \frac{\partial u(r)}{\partial x_j}. \quad (1.64)$$

correspondant à l'approche de P.H. Dederichs et K. Schroeder [33], c'est-à-dire à l'équation (1.23).

L'analyse aboutit à l'expression de force de puits (1.65) :

$$Z_{\text{Borodin}}^{\text{cav.}} = \frac{1}{4\pi r_c \rho} (1 + q\sigma_0) \quad (1.65)$$

où

- σ_0 est la contrainte de surface de la cavité $\sigma_0 = P - \frac{2\gamma}{r_c}$, P étant la pression interne et γ la tension de surface,
- q est un terme dépendant du dipôle élastique au point col du défaut ponctuel. En supposant que le dipôle élastique du défaut ponctuel au point col (orienté selon [110]) s'écrit selon

$$\mathbf{P}^{\text{col}} = \begin{pmatrix} P_{11} & P_{12} & 0 \\ P_{12} & P_{11} & 0 \\ 0 & 0 & P_{33} \end{pmatrix}, \quad (1.66)$$

l'expression de q est donnée, dans un réseau CFC, par l'expression

$$q = -\frac{1}{40\mu k_B T} (P_{11} + 3P_{12} + P_{33}). \quad (1.67)$$

Dans cette équation, μ est le module de cisaillement du matériau.

1.3.3 Boucle de dislocation

Dans ce cas, la géométrie du puits est toroïdale (figure 1.13). On considère une boucle de rayon r_L , purement prismatique et de section circulaire de rayon r_c . La zone sans puits reste cependant une sphère, de rayon R . La densité de boucles se calcule donc selon $\rho = (\frac{4}{3}\pi R^3)^{-1}$.

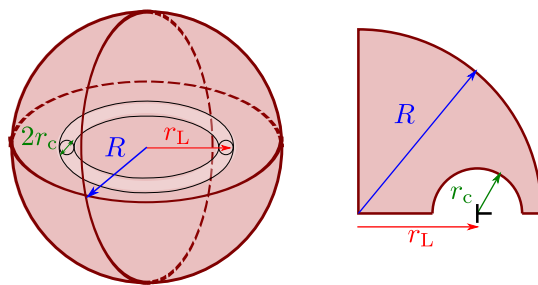


FIGURE 1.13 – Géométrie pour déterminer la force de puits de la boucle de dislocation.

Le traitement analytique est d'abord réalisé en supposant que la boucle est immergée dans un milieu infini, i. e. $R \rightarrow \infty$, en négligeant les interactions élastiques. Il n'existe pas de solution à l'approche de (1.43) (ni à celle de Wiedersich), on présente d'abord deux solutions proposées pour l'équation de Laplace (système (1.41)).

Solution de Laplace

L'étude par un système de type (1.41) avec $R \rightarrow \infty$ a été réalisée par A. Seeger et U. Gösele. L'expression obtenue est

$$Z_{\text{Seeger}}^{\text{boucle}} = \frac{4}{\pi} \left[1 - \left(\frac{r_c}{r_L} \right)^2 \right]^{1/2} \sum_{n=0}^{\infty} (2 - \delta_{n,0}) \frac{Q_{n-1/2} \left(\frac{r_L}{r_c} \right)}{P_{n-1/2} \left(\frac{r_L}{r_c} \right)}, \quad (1.68)$$

où $P_{n-1/2}$ et $Q_{n-1/2}$ sont les fonctions de Legendre de première et seconde espèce.

Dans le cas où $r_L \gg r_c$ cette expression se simplifie en

$$Z_{\text{Seeger},1}^{\text{boucle}} = \frac{2\pi}{\ln \left(\frac{8r_L}{r_c} \right)}. \quad (1.69)$$

Par la même approche, F. A. Nichols [38] propose la solution suivante :

$$Z_{\text{Nichols}}^{\text{boucle}} = 2\pi \frac{\sqrt{1 - \frac{r_c}{r_L}}}{\ln \left(\frac{8r_L}{r_c} \right)}. \quad (1.70)$$

Milieu absorbant effectif

L'étude de la boucle de dislocation dans le cadre du milieu effectif a été proposée d'abord par R. Bullough *et al.* [48]. Dans cette étude, la boucle toroïdale est remplacée par une sphère de même rayon r_L . Les interactions élastiques entre les défauts et la boucle, ainsi que la forme toroïdale sont représentées par une vitesse de transfert \bar{K}_L imposée sur la surface de la sphère.

Cette étude a ensuite été reprise par C. H. Woo [49] qui cherche à obtenir plus de précision en séparant la condition aux limites sur le tore, représentée par la vitesse de transfert \bar{K}_L , et l'influence des interactions élastiques qui sont représentées par des potentiels effectifs à symétrie sphérique.

Dans ces calculs, que nous ne développerons pas dans cette section, l'auteur propose une expression incluant les effets des interactions élastiques (équation (12) de [49]), qui permet de retrouver la solution de type Laplace (équation (1.68)) dans le cas sans interactions élastique, par l'expression de \bar{K}_L . Une expression est également proposée pour prendre en compte les effets de milieu fini (équation (14) de cet article), que ce soit avec ou sans interactions élastiques. Ces calculs sont finalement intégrés dans une approche de type milieu effectif. Le détail de ces calculs peut être trouvé dans la référence [49].

Prise en compte d'un milieu fini et des interactions élastiques

La prise en compte des interactions élastiques pour une boucle de dislocation passe souvent par la simplification de la géométrie, comme pour W. G. Wolfer et M. Ashkin [46] ou C. H. Woo [49], qui considèrent la boucle équivalente à une inclusion sphérique.

T. Jourdan [36] a réalisé une étude consacrée au calcul des forces de puits d'une boucle de dislocation telle qu'illustrée sur la figure 1.13, basée sur des calculs éléments finis.

Dans un premier temps, la formule est dérivée par analogie avec l'électrostatique, d'après les calculs de R. Cade [50]. Il s'agit d'une approche de type Laplace (système (1.41)), avec $R \rightarrow \infty$ l'expression obtenue est donnée par

$$Z_{\text{Cade}}^{\text{boucle}} = \frac{2\pi \left\{ 1 + \frac{1}{2} \left(\frac{r_c}{r_L} \right)^2 \left[\ln \left(\frac{8r_L}{r_c} \right) - \frac{3}{2} \right] \right\}}{\ln \left(\frac{8r_L}{r_c} \right) + \frac{1}{4} \left(\frac{r_c}{r_L} \right)^2 \left\{ \left[\ln \left(\frac{8r_L}{r_c} \right) \right]^2 - \ln \left(\frac{8r_L}{r_c} \right) - \frac{5}{4} \right\}}. \quad (1.71)$$

Cette expression tend vers l'expression plus simple (1.69) quand $r_L \gg r_c$, mais est plus précise pour les faibles valeur de r_L [36]. Elle permet de s'affranchir de la somme infinie (1.68)

La prise en compte de la taille finie du milieu peut être faite à partir du résultat obtenu par C. H. Woo [49]. La condition limite à la surface du tore peut être remplacé par une condition de flux limite sur la surface de la sphère englobant la boucle. L'efficacité d'absorption peut alors être déterminée par le calcul suivant, où $Z(R \rightarrow \infty)$ peut être calculé par l'une des expressions proposée dans le cas d'un milieu infini, telle que (1.69) ou (1.71) :

$$Z_R^{\text{boucle}} (Z(R \rightarrow \infty), r_L, R) = \frac{1}{\frac{1}{Z(R \rightarrow \infty)} - \frac{r_L}{2R}}. \quad (1.72)$$

Enfin, T. Jourdan a développé une expression incluant les effets des interactions élastiques, pour un défaut isotrope, en cherchant à reproduire ces calculs éléments finis, en s'appuyant sur les formules (1.71) et (1.72). Par analogie avec le cas de la dislocation droite, pour laquelle la prise en compte des interactions remplaçait la valeur de r_c par celle de $\frac{L}{2}$, la valeur de r_c est remplacée par une fonction de L .

Pour cela r_c est remplacé par r_c^{eff} , qui est un rayon de capture effectif du tore prenant en compte les effets des interactions élastiques :

$$r_c^{\text{eff}} = r_c^{\text{eff},\infty} - \frac{\beta_1 L^{\beta_2}}{\frac{\beta_3}{L^{\beta_4}} + \exp\left(\frac{r_L^{\beta_5}}{L^{\beta_6}}\right)}, \quad (1.73)$$

où

$$r_c^{\text{eff},\infty} = \alpha_1 L + 2 \exp(-\alpha_2 L^{\alpha_3}). \quad (1.74)$$

Dans ces équations, toutes les grandeurs sont normées par la norme du vecteur de Burgers b .

L dépend du matériau et des propriétés du défaut ponctuel selon l'équation (1.54). Les paramètres α_i et β_i sont déterminés pour correspondre aux résultats des calculs éléments finis. Les valeurs sont données dans la référence [36] et rappelées dans le tableau 1.1.

$r_c^{\text{eff},\infty}$					
α_1	0.446272	α_2	0.217068	α_3	1.139611
r_c^{eff}					
β_1	0.449669	β_3	34.628024	β_5	0.568653
β_2	1.013009	β_4	1.936475	β_6	0.487119

TABLEAU 1.1 – Coefficients α_i et β_i pour les équations (1.73) et (1.74).

Ainsi la formule de force de puits prenant en compte les interactions élastiques et la taille finie du milieu est

$$Z_{\text{Jourdan}}^{\text{boucle}} = Z_R^{\text{boucle}} \left(Z_{\text{Cade}}^{\text{boucle}}(r_c^{\text{eff}}), r_L, R \right). \quad (1.75)$$

V. I. Dubinko *et al.* [35] et W. A. Coghlan et M. H. Yoo [51] ont également évalué la force de puits des boucles de dislocations en prenant en compte les interactions élastiques. Par exemple, V. I. Dubinko *et al.* ont procédé par la méthode numérique des différences finies. Dans ce cas, le défaut est considéré comme isotrope, et l'efficacité d'absorption, obtenue par ajustement des résultats numériques, donnée par

$$Z_{\text{Dubinko}}^{\text{boucle}} = Z_d + \frac{3.6L^{0.255} - Z_d}{(r_L/b)^{2/3} + 0.2}. \quad (1.76)$$

Dans cette formule, Z_d est l'efficacité d'absorption de la dislocation droite, qui est donnée par l'équation (1.55).

La comparaison des formules proposées dans le cadre de ces différentes études a été réalisée par T. Jourdan [36].

1.3.4 Résumé et commentaires

Un résumé des valeurs proposées pour les trois types de puits étudiés ici, et des hypothèses associées, est présenté dans le tableau 1.2.

On peut d'abord remarquer que les expressions obtenues sans les interactions élastiques par les approches de (1.41) et (1.43) sont équivalentes aux très faibles densités de puits, c'est-à-dire quand $R \rightarrow \infty$.

L'approche de Wiedersich, reposant sur le calcul de la concentration moyenne, est recommandée par F. A. Nichols [38], car considérée comme plus réaliste. Dans leur revue [40], A. D. Brailsford et R. Bullough recommandent de proscrire l'approche de Laplace, qui revient à supposer que le milieu au-delà de la zone sans puits a une force de puits infinie. C'est l'approche du milieu effectif qui est recommandée. Mais cette méthode oblige le plus souvent à utiliser des hypothèses fortes pour permettre aux calculs difficiles d'aboutir à une expression analytique, qui est souvent équivalente à la solution de Laplace, au moins pour les faibles fractions volumiques.

L'approche de Wiedersich, quant à elle, ne permet d'aboutir à une expression analytique que dans le cas sans interactions élastiques, et il n'existe pas de solution pour la boucle de dislocation.

Il existe peu d'expressions permettant la prise en compte des interactions élastiques. Les expressions qui les prennent en compte supposent le plus souvent que le défaut ponctuel qui migre est isotrope, et possède le même volume de relaxation au point stable et au point col. Enfin, ces expressions n'ont pas été obtenues par l'approche de Wierdersich.

Il existe donc un besoin pour évaluer les forces de puits de façon précise. En particulier, les effets des interactions élastiques et de l'anisotropie du défaut ne sont pas bien représentés par les expressions de force de puits communément utilisées dans le cadre de la cinétique chimique homogène. Ceci est d'autant plus problématique que le formalisme impose que tous les puits de même type présents aient la même force de puits, masquant l'influence du voisinage, et amplifiant les effets dus à l'imprécision des valeurs de forces de puits.

Dislocation droite			
Géométrie cylindrique (Figure 1.10) – $k^2 = \rho Z$			
Nom/Type	R	Interactions élastiques	Z
Laplace	fini	non	eq. (1.48)
Poisson	fini	non	eq. (1.49)
Wiedersich	fini	non	eq. (1.51)
Milieu effectif	$R \rightarrow r_c$	oui : vitesse de transfert du dernier saut	voir ref. [39]
		oui : portée L Défaut isotrope	voir ref. [40]
Rauh & Simon/Laplace	fini	oui Portée L Défaut isotrope	eq. (1.55) $\xrightarrow{L \gg 2r_c \text{ et } L \gg 2R}$ eq. (1.57)
Cavité sphérique			
Géométrie sphérique (Figure 1.12) – $k^2 = 4\pi r_c \rho Z$			
Nom/Type	R	Interactions élastiques	Z
Laplace	fini	non	eq. (1.58)
Poisson	fini	non	eq. (1.59)
Wiedersich	fini	non	eq. (1.60)
Milieu effectif	fini	non	eq. (1.61)
Borodin/Poisson	fini	oui via q (eq. (1.67))	eq. (1.65)
Boucle de dislocation			
Géométrie torique (Figure 1.13) – $k^2 = 2\pi r_L \rho Z$			
Nom/Type	R	Interactions élastiques	Z
Laplace	infini	non	eq. (1.70)
Seeger & Gösele/ Laplace	infini	non	eq. (1.68) $\xrightarrow{r_L \gg r_c}$ eq. (1.69)
Milieu effectif	fini	oui par des potentiels effectifs	voir ref. [49]
Jourdan/Laplace	fini	oui via r_c^{eff} (eq. (1.73)) Portée L Défaut isotrope	eq. (1.75)

TABLEAU 1.2 – Valeurs de force de puits proposées dans la littérature avec les approches de Laplace (1.41), Poisson (1.43) et Wiedersich, et l’approche du « milieu effectif ».

1.3.5 Évaluation numérique des forces de puits

L'évaluation numérique des forces de puits est rendue nécessaire par plusieurs éléments qui rendent impossibles les calculs analytiques. Il peut s'agir d'étudier des géométries plus complexes que celles présentant des symétries simples, comme pour les figures 1.10, 1.12 et 1.13, ou encore de prendre en compte de façon plus détaillée les propriétés des défauts ponctuels ou les champs élastiques générés par les puits.

On distingue dans cette section les approches reposant sur la résolution numérique de l'équation de diffusion, et les approches simulant la diffusion des défauts ponctuels vers les puits par méthode KMC.

Résolution numérique de l'équation de diffusion

L'évaluation numérique des forces de puits peut se faire en résolvant numériquement l'équation de diffusion, notamment par la méthode des éléments finis (EF) [36, 52, 53] ou par différences finies (DF) [35, 51, 54–56]. Le problème a récemment été reformulé dans une approche de type « champ de phase » (CP) [57, 58].

L'étude par la méthode des EF ou DF passe en général par la définition d'une zone de taille finie, dans laquelle se situe le puits, en imposant des conditions aux limites en concentration, c'est-à-dire en adoptant une approche de type Laplace.

La résolution numérique permet de prendre en compte les interactions élastiques. Par exemple, C. H. Woo *et al.* [54] ont repris l'approche de Laplace décrite ci-dessus pour la boucle de dislocation, la méthode des DF leur permet de déterminer le flux de défauts ponctuels vers la boucle en prenant en compte les interactions élastiques. Cette méthode a également été employée par R. Bullough *et al.* [55] pour déterminer la force de puits d'une dislocation droite et d'une boucle de dislocation, et par W. A. Coghlan et M. H. Yoo [51] pour étudier la variation de la force de puits avec le rayon de la boucle de dislocation, chaque étude prenant en compte les interactions élastiques. T. Jourdan a également réalisé l'étude de la force de puits d'une dislocation droite et d'une boucle de dislocation par la méthode des EF. L'énergie d'interaction est exprimée de façon analytique et le flux est ensuite exprimé par l'équation (1.40). Dans ce cas, le défaut est également supposé comme isotrope, représenté par son volume de relaxation. Cette étude a permis le développement de l'expression (1.75). De même, V. I. Dubinko *et al.* [35] ont évalué le biais des boucles de dislocation par la méthode des DF en prenant en compte l'énergie d'interaction des défauts considérés comme isotrope. Plus récemment, Z. Chang *et al.* [34, 52, 53] ont développé une méthode permettant de coupler l'énergie d'interaction, déterminée par des calculs atomistiques, et les calculs EF. Cette méthode est utilisée pour l'étude d'une dislocation dans le réseau CFC du cuivre [52]. Dans cette étude, le défaut est assimilé à une inclusion sphérique et l'anisotropie du champ de contrainte généré par la dislocation est prise en compte. Cette approche permet d'étudier l'influence de la forme du réservoir ainsi que de prendre en compte la séparation du cœur de la dislocation en partielles. Cette analyse est également réalisée dans d'autres métaux CFC [53], puis dans le fer CC [34]. Dans cette dernière étude, l'anisotropie au point stable des défauts ponctuels est prise en compte pour le calcul de l'énergie d'interaction, mais c'est l'énergie

moyenne qui est utilisée pour le calcul EF.

Très peu d'études par éléments finis utilisent des conditions aux limites différentes. C N. Tomé *et al.* [56] ont réalisé le calcul de force de puits d'une dislocation droite en utilisant l'approche de Wiedersich. Ces calculs ont été réalisés pour étudier l'influence d'un champ de contrainte appliqué au matériau.

Le développement des calculs de force de puits par méthode champ de phase est plus récent [59]. L'intérêt de cette méthode est qu'elle permet de traiter le problème en élasticité anisotrope de manière naturelle, en passant dans l'espace de Fourier. Elle permet de plus de prendre en compte l'anisotropie de forme des défauts ponctuels [24] et d'étudier des géométries complexes [58]. Les résultats obtenus pour une dislocation droite sans interactions élastiques sont en bon accord avec la solution de Wiedersich [59]. Cette méthode a ensuite été appliquée au cas des boucles de dislocation [57, 58].

Détermination de la force de puits par KMC

L'évaluation numérique de force de puits peut aussi être faite par des calculs Monte Carlo cinétique. Cette méthode sera présentée plus en détail dans la section 2.3.

Elle consiste à laisser migrer des défauts dans une boîte de simulation contenant un ou plusieurs puits. La migration de ces défauts dépend de leurs propriétés et de celles du milieu. La force de puits est ensuite déduite par [60]

$$k^2 = \frac{2N}{d^2 \langle n \rangle}. \quad (1.77)$$

Dans cette équation, N est la dimensionalité de la migration ($N = 3$ pour une migration 3D) et $\langle n \rangle$ est le nombre moyen de sauts, dont la longueur est d , effectués par le défaut avant d'être absorbé. Une autre méthode est également possible pour déduire la force de puits, en utilisant l'équation [61]

$$k^2 = \frac{G}{D\bar{C}}. \quad (1.78)$$

Ici, G est le taux de création de défauts ponctuels dans la boîte de simulation, D est leur coefficient de diffusion, et \bar{C} est la concentration moyenne de défauts à l'état stationnaire. Cette approche coïncide avec l'approche de Wiedersich. Ces deux méthodes de calculs, utilisant (1.77) et (1.78), sont équivalentes en l'absence d'interactions élastiques, mais l'expression (1.77) n'est plus valide en présence d'interactions [25]. Dans ce cas, la fréquence de saut est modifiée par le champ élastique, et il faut donc mesurer le temps moyen avant l'absorption du défaut par le puits, et non le nombre de sauts.

La méthode reposant sur l'équation (1.77) est d'abord utilisée par H. L. Heinisch *et al.* [60] pour étudier l'effet de la diffusion 1D sur les forces de puits d'amas intersititels. Elle est aussi utilisée par L. Malerba *et al.* pour étudier les forces de puits de cavités sphériques et de joints de grains avec une migration 1D ou 3D [45]. De même, cette méthode a été utilisée pour étudier la force de puits d'une dislocation droite par J. Hou *et al.* [62] et de cavités sphériques par T. Ahlgren et L. Bukonte [63]. Leur résultats montrent que la distance finie de saut considérée dans la méthode KMC est responsable

d'une légère différence avec les solutions issues des calculs analytiques. Dans ces études, les interactions élastiques ne sont pas prises en compte.

Les interactions élastiques peuvent également être intégrées dans les calculs KMC [61, 64, 65]. G. Subramanian *et al.* ont développé une méthode permettant de prendre en compte un champ de déformation dans un calcul KMC en calculant les barrières d'énergies en fonction des dipôles élastiques et du champ de déformation. Cette méthode est appliquée au calcul de la force de puits d'une dislocation droite. A. B. Sivak *et al.* [65, 66] ont également effectué des simulations KMC prenant en compte l'énergie d'interaction entre défauts et dislocations. A. Vattré *et al.* [61] ont étudié les forces de puits d'interfaces semi-cohérentes. Dans cette étude, l'énergie d'interaction est calculée au point stable et au point col en utilisant les dipôles élastiques des défauts ponctuels, déterminés par des calculs de structure électronique utilisant la théorie de la fonctionnelle de densité (DFT, voir section 2.2). La barrière d'énergie pour chaque saut est calculée de façon explicite. Ce type de calculs permet notamment de prendre en compte les orientations des défauts ponctuels et leur anisotropie.

En résumé, les évaluations numériques des forces de puits permettent donc de considérer les interactions élastiques de façon plus simple que pour les évaluations analytiques. La résolution numérique de l'équation de diffusion par DF et EF permet de prendre en compte les interactions élastiques, mais seule l'étude de Z. Chang [34] prend en compte l'anisotropie des défauts pour déterminer l'énergie d'interaction. Une valeur moyenne des énergies obtenues est ensuite utilisée pour les calculs EF. La détermination par calculs KMC permet également de prendre en compte l'énergie d'interaction, avec la prise en compte précise des propriétés des défauts ponctuels [61].

1.4 Résumé et définition des premiers objectifs de la thèse

Dans ce chapitre, nous avons vu que certaines évolutions sous irradiation des matériaux, notamment le gonflement, peuvent s'expliquer par le modèle du biais des dislocations. Ce modèle repose sur une absorption préférentielle des interstitiels par les dislocations. Ce biais d'absorption est responsable d'un excès de lacunes dans le cristal, qui favorise la germination des cavités.

Ce modèle est en général utilisé dans le cadre de la cinétique chimique homogène. Il s'agit d'une approche en champ moyen, qui décrit l'évolution des concentrations de lacunes et d'interstitiels et permet de prédire le taux de croissance des amas. La théorie du biais des dislocations est introduite dans ce formalisme via des paramètres appelés forces de puits. Ils décrivent la capacité des puits à absorber les défauts ponctuels.

Il est donc nécessaire d'évaluer précisément les valeurs de forces de puits. Quelques approches analytiques sont possibles pour déterminer les valeurs de ces paramètres, mais elles utilisent de nombreuses approximations, notamment en négligeant les interactions élastiques entre le puits et les défauts ponctuels, afin de permettre la résolution du problème. On peut également recourir à une évaluation numérique des forces de puits, par résolution numérique de l'équation de diffusion ou par méthode KMC. Ceci permet

de prendre en compte l'énergie d'interaction entre puits et défauts ponctuels. Cependant, les propriétés des défauts ponctuels sont la plupart du temps simplifiées.

Il paraît donc nécessaire d'apporter une évaluation précise des forces de puits. Une attention particulière doit être apportée aux interactions élastiques ainsi qu'à l'anisotropie des défauts ponctuels.

Dans le chapitre suivant, nous nous intéresserons aux méthodes numériques permettant de simuler les évolutions des microstructures et le comportement des défauts ponctuels.

Chapitre 2 –

Techniques de modélisation des microstructures

Sommaire

2.1	Introduction	37
2.2	Calcul <i>ab initio</i> – Théorie de la Fonctionnelle de la Densité	38
2.2.1	Calculs <i>ab initio</i>	38
2.2.2	Théorie de la Fonctionnelle de la Densité	39
2.2.3	Méthode pour le calcul des propriétés des défauts ponctuels	41
2.3	Monte Carlo Cinétique	43
2.3.1	Approche et formalisme	43
2.3.2	Exemples de simulations en KMC : avantages et limitations des méthodes KMC	46
2.3.3	Méthode pour les simulations OKMC et EKMC : description des codes	47
2.4	Dynamique d’amas	48
2.4.1	Équations	49
2.4.2	Méthodes de résolution	52
2.4.3	Méthode pour la DA : code CRESCENDO	54
2.4.4	Exemples de simulations en dynamique d’amas : forces et limites de la DA	55
2.5	Objectifs et démarche	60
2.6	Résumé	60

2.1 Introduction

Ce chapitre est consacré à la présentation des méthodes numériques pour la simulation des microstructures utiles pour la suite de ce travail.

On donne dans la section 2.2 une présentation succincte de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT), qui permet de calculer certaines propriétés des défauts ponctuels.

Nous nous intéressons ensuite dans la section 2.3 aux méthodes Monte Carlo cinétique, en particulier le Monte Carlo cinétique sur objets (OKMC), qui permet la prise en compte des corrélations spatiales en considérant les amas individuellement et en simulant leur diffusion, agglomération et dissociation.

Enfin, la section 2.4 vise à présenter la dynamique d’amas (DA). Il s’agit d’une méthode numérique reposant sur une approche de type cinétique chimique homogène, qui permet la simulation des microstructures sous irradiation à des échelles de temps longs.

Dans ce chapitre, nous identifions également certains objectifs du travail de thèse.

2.2 Calcul *ab initio* – Théorie de la Fonctionnelle de la Densité

La détermination des propriétés des matériaux à l’échelle atomique, en particulier le calcul des propriétés des défauts ponctuels comme les dipôles élastiques ou les polarisabilités, peut être faite par des calculs de structure électronique, dits *ab initio*.

2.2.1 Calculs *ab initio*

Les calculs *ab initio*, c’est-à-dire à partir des premiers principes, visent à étudier les propriétés des matériaux à partir de l’équation fondamentale de la mécanique quantique, l’équation de Schrödinger, sans ajustement préalable :

$$\hat{H}\Psi = E\Psi. \quad (2.1)$$

Dans cette équation Ψ est la fonction d’onde du système étudié, et E son énergie. \hat{H} est l’Hamiltonien, qui s’écrit

$$\hat{H} = \hat{T}_n + \hat{T}_e + \hat{V}_{ee} + \hat{V}_{nn} + \hat{V}_{ne}, \quad (2.2)$$

où \hat{T}_n (respectivement \hat{T}_e) est l’opérateur d’énergie cinétique des noyaux (respectivement des électrons) et les \hat{V}_{ij} correspondent aux potentiels d’interaction entre électrons (\hat{V}_{ee}), entre noyaux (\hat{V}_{nn}) ou entre noyaux et électrons (\hat{V}_{ne}).

Les électrons sont corrélés à cause de l’interaction d’échange-corrélation. La fonction d’onde est donc une fonction à plusieurs corps, pour laquelle l’équation ne peut pas être résolue. Il est donc nécessaire de procéder à des approximations pour simplifier ce problème. La première approximation, l’approximation adiabatique de Born-Oppenheimer, vise à supposer que les noyaux, beaucoup plus lourds que les électrons, sont immobiles, d’où $\hat{T}_n = 0$, et \hat{V}_{nn} est constant. La théorie de la fonctionnelle de la densité (abrégée DFT, pour *Density Functional Theory*) est ensuite utilisée. Cette théorie rend possibles les calculs à plusieurs électrons et domine largement les calculs de structure électronique dans le domaine de la physique des matériaux, la distinction entre *ab initio* et DFT devenant pratiquement inexistante.

2.2.2 Théorie de la Fonctionnelle de la Densité

La DFT a été introduite en 1964 par P. Hohenberg et W. Kohn [67]. Il s'agit d'un ensemble de théorèmes mathématiques établissant rigoureusement une méthode pour simplifier un problème à N_e électrons, en le ramenant à un problème à une seule variable, qui est la densité d'état électronique $\rho(\mathbf{r})$. W. Kohn et L. J. Sham [68] ont ensuite proposé une reformulation de ce problème remplaçant le système par un problème d'électrons indépendants évoluant dans un potentiel effectif V^{eff} . L'énergie du système s'écrit donc ensuite comme une fonctionnelle de la densité d'état électronique ρ :

$$E[\rho] = \int V^{\text{eff}}(\mathbf{r})\rho(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + E_{\text{int}}[\rho] + E_c[\rho] + E_{\text{ec}}[\rho], \quad (2.3)$$

où $E_c[\rho]$ est l'énergie cinétique de l'électron isolé, $E_{\text{int}}[\rho]$ représente l'interaction coulombienne et $E_{\text{ec}}[\rho]$ est la fonctionnelle d'échange-corrélation, qui est la seule inconnue. La variable devient donc la densité électronique, qui peut s'écrire :

$$\rho(\mathbf{r}) = \sum_{i=1}^{N_e} |\phi_i|^2. \quad (2.4)$$

où les ϕ_i sont les orbitales mono-électroniques dans le potentiel effectif.

Il n'existe pas d'expression analytique pour la fonctionnelle d'échange-corrélation, celle-ci peut être exprimée le plus souvent en physique des matériaux par deux approximations : l'approximation de la densité locale (LDA, *Local Density Approximation*), ou l'approximation du gradient généralisé (GGA, *Generalized Gradient Approximation*).

Approximations LDA et GGA

- **L'approximation de la densité locale** fait appel à une hypothèse forte qui est que l'énergie d'échange-corrélation n'est fonction que de la valeur de la densité électronique au point considéré :

$$E_{\text{ec}}^{\text{LDA}}[\rho] = \int \rho(\mathbf{r})\varepsilon_{\text{ec}}(\rho(\mathbf{r})) d\mathbf{r}. \quad (2.5)$$

Dans cette équation, $\varepsilon_{\text{ec}}(\rho(\mathbf{r}))$ est la densité d'énergie d'échange-corrélation d'un gaz d'électrons homogène, qui est connue.

- **L'approximation du gradient généralisé** prend également en compte les variations de la densité électronique, l'énergie d'échange-corrélation dépendant de la densité et de son gradient :

$$E_{\text{ec}}^{\text{GGA}}[\rho] = \int \rho(\mathbf{r})\varepsilon_{\text{ec}}(\rho(\mathbf{r}), \nabla\rho(\mathbf{r})) d\mathbf{r}. \quad (2.6)$$

Plusieurs expressions de $\varepsilon_{\text{ec}}(\rho(\mathbf{r}), \nabla\rho(\mathbf{r}))$ ont été développées, dont celle donnée par J. P. Perdew, K. Burke et M. Ernzerhof (PBE) [69].

Le choix de l'approximation LDA ou GGA dépend de l'étude réalisée. Pour les matériaux métalliques, GGA-PBE est l'approximation la plus répandue dans le domaine de la physique des matériaux, d'autres domaines comme la physique des surfaces utilisent plutôt l'approximation LDA.

Les calculs DFT ont pour objectif de déterminer l'état fondamental électronique du système. Pour cela, l'énergie est minimisée de façon auto-cohérente : à partir d'une valeur initiale ρ_0 , on calcule l'énergie $E[\rho_0]$, dont on déduit une nouvelle valeur de densité ρ_1 , etc. jusqu'à obtenir la valeur permettant de minimiser l'énergie. Une fois l'énergie électronique convergée, les forces sur chaque atome sont calculées. On peut donc minimiser l'énergie structurale par des relaxations atomiques qui permettent d'atteindre un minimum pour la force totale. Le calcul DFT s'arrête lorsque les forces sont inférieures à un seuil, qui doit permettre un compromis entre la précision visée et le temps de calcul.

Pseudo-potentiels

Les calculs DFT utilisant la technique des pseudo-potentiels, par opposition aux calculs DFT « tous électrons », cherchent à décrire la structure électronique des atomes sans considérer la totalité des électrons, dans le but d'accélérer les calculs.

Dans le cas de la matière condensée, il est souvent suffisant de ne pas prendre en compte les électrons de coeur. L'interaction entre les électrons de valence et ces éléments sont décrits par un pseudo-potentiel. L'approche *Projected Augmented Wave* (PAW) [70] est une amélioration de la méthode des pseudo-potentiels qui permet de reconstruire la fonction d'onde de tous les électrons à partir de la fonction d'onde PAW.

Fonctions de base et énergie de coupure

En pratique, les orbitales monoélectroniques ϕ_i des électrons sont recherchées sous la forme de combinaisons de fonctions de base φ_i . Les fonctions de base les plus souvent utilisées sont les ondes planes ou les ondes localisées.

En théorie, il faut sommer une infinité de fonctions de base pour calculer les orbitales monoélectroniques. En pratique, on utilise seulement un nombre fini de fonctions, en utilisant celles dont l'énergie cinétique est inférieure à l'énergie de coupure choisie.

Grille de points k

La résolution se fait dans l'espace réciproque. Les calculs se faisant dans un réseau périodique, le théorème de Bloch assure que la fonction d'onde électronique peut être déterminée uniquement à partir de la première zone de Brillouin, qui correspond à une maille élémentaire dans l'espace réciproque. Les valeurs sont donc seulement calculées sur un nombre fini de points dans la zone de Brillouin, appelés points k. La grille de points k doit être choisie correctement pour assurer la convergence du calcul, sachant cependant que plus le nombre de points k est grand, plus la précision est importante, mais aussi plus le temps de calcul est long. La convergence peut être améliorée pour un nombre de points k donné en introduisant une fonction d'élargissement, permettant

l'élargissement des niveaux d'énergie électroniques, dont la forme et la largeur sont des paramètres à choisir.

Quelques exemples de simulations en DFT : utilisation des résultats à l'échelle supérieure

On présente ici quelques cas d'application où la DFT a servi à déterminer les propriétés des défauts ponctuels, pour alimenter d'autres simulations.

Les calculs de structure électronique par DFT ont été utilisés pour déterminer les paramètres d'entrée de plusieurs types de calculs. Par exemple, les calculs DFT peuvent servir à déterminer les propriétés thermodynamiques et cinétiques de petits amas, comme les énergies de formation et de migration des complexes stables Fe-Cu [71] pour alimenter des calculs AKMC, ou les énergies d'interaction entre le carbone et les amas hélium-lacunes [72] pour effectuer des calculs DA. Les énergies de liaison issues de la DFT peuvent aussi être utilisées dans des calculs OKMC et DA [73–75]. Les calculs DFT permettent aussi de déterminer les propriétés des défauts ponctuels, tels que les dipôles élastiques, qui peuvent ensuite être utilisés en OKMC par exemple [61].

Ainsi, les calculs DFT permettent de calculer les énergies de liaison et les propriétés des défauts ponctuels, qui peuvent ensuite alimenter des calculs à l'échelle supérieure, en KMC ou DA.

Dans notre étude, nous utilisons la DFT pour déterminer les dipôles élastiques et polarisabilités des défauts ponctuels dans l'aluminium.

2.2.3 Méthode pour le calcul des propriétés des défauts ponctuels

Dans ces travaux, nous utilisons pour les calculs DFT le code VASP (pour *Vienna Ab initio Simulation Package*) [76–79], qui utilise les ondes planes, avec l'approximation GGA-PBE dans le cadre de l'approximation PAW. En effet l'approximation GGA-PBE est plus appropriée au traitement des matériaux CFC [80,81]. Les cellules de simulation contiennent 256 atomes (± 1 en présence de défauts). Les autres paramètres des calculs sont précisés au cas par cas dans le chapitre 3.

Les points cols des défauts ponctuels sont localisés en utilisant une méthode *nudged elastic band* (NEB) [82]. Dans le cas où une déformation est appliquée (par exemple pour déterminer les polarisabilités), nous utilisons une méthode simplifiée pour déterminer les propriétés au point col (*drag method*). Il s'agit de considérer le point col déterminé sans déformation, et de minimiser l'énergie par une relaxation dans l'hyper-plan perpendiculaire à la coordonnée de réaction en appliquant la déformation souhaitée. Cette méthode permet d'éviter de déterminer le point col par NEB pour chaque déformation appliquée, ce qui est beaucoup plus coûteux en temps de calcul.

Calcul des dipôles élastiques

Le calcul des dipôles élastiques des défauts ponctuels est fait par la méthode de la contrainte [83]. La boîte de simulation contient initialement un réseau parfait de

volume d'équilibre V . Le défaut ponctuel est ensuite introduit dans la boîte à la position souhaitée. Les positions des atomes sont relaxées en maintenant le volume de la boîte constant. La présence du défaut ponctuel induit une contrainte résiduelle σ_{ij} qui est liée au dipôle élastique \mathbf{P}^0 par la relation

$$P_{ij}^0 = -V\sigma_{ij}, \quad (2.7)$$

d'où l'on peut déduire le dipôle élastique.

Calculs des polarisabilités

D'une façon générale, la détermination des polarisabilités à partir des calculs DFT est faite en calculant l'énergie du système à $N(\pm 1)$ atomes dans différentes conditions.

1. Calcul de l'énergie de la boîte sans défauts (N atomes), ce qui permet de déterminer l'énergie résiduelle E_N^0 .
2. Minimisation de l'énergie de la boîte sans défaut, déformée par le champ $\boldsymbol{\varepsilon}^p$ (p est ici un indice désignant le type de déformation). L'énergie obtenue est alors

$$E_N(\boldsymbol{\varepsilon}^p) = E_N^0 + \frac{1}{2}VC_{ijkl}\varepsilon_{ij}^p\varepsilon_{kl}^p. \quad (2.8)$$

Le choix approprié d'un ensemble de déformations $\{\boldsymbol{\varepsilon}^p\}$ permet d'obtenir un système d'équations permettant de déterminer les composantes du tenseur élastique \mathbf{C} .

3. Minimisation de l'énergie d'une boîte contenant un défaut (ajout ou retrait d'un atome $d = \pm 1$) non déformée. L'énergie est alors celle de la boîte non déformée à laquelle s'ajoute l'énergie de formation du défaut :

$$E_{N+d}^0 = \frac{N+d}{N}E_N^0 + E_d^f \quad (2.9)$$

Dans cette équation, un terme de correction peut être ajouté pour prendre en compte l'énergie du défaut avec ses propres images périodiques [25, 83, 84].

4. On peut déduire la polarisabilité de l'énergie de la boîte contenant un défaut, déformée, en utilisant l'équation

$$E_{N+d}(\boldsymbol{\varepsilon}^p) = E_{N+d}^0 - P_{ij}^0\varepsilon_{ij}^p - \frac{1}{2}\alpha_{ijkl}\varepsilon_{ij}^p\varepsilon_{kl}^p + \frac{1}{2}VC_{ijkl}\varepsilon_{ij}^p\varepsilon_{kl}^p \quad (2.10)$$

Il s'agit d'ajuster par un terme parabolique la différence d'énergie

$$\Delta E = E_{N+d}(\boldsymbol{\varepsilon}^p) - E_{N+d}^0 + P_{ij}^0\varepsilon_{ij}^p - \frac{1}{2}VC_{ijkl}\varepsilon_{ij}^p\varepsilon_{kl}^p. \quad (2.11)$$

Une autre méthode utilisée dans la littérature [85, 86] est basée sur la méthode de la contrainte, visant à minimiser

$$\Delta\sigma_{ij} = \frac{1}{V}\frac{\partial E_{N+d}(\boldsymbol{\varepsilon}^p)}{\partial \varepsilon_{ij}^p} + \frac{1}{V}P_{ij}^0 - C_{ijkl}\varepsilon_{kl}^p. \quad (2.12)$$

Ceci consiste à résoudre une équation linéaire. En faisant le choix de résoudre l'équation quadratique (2.11), nous évitons le calcul d'une dérivée numérique dont la précision n'est pas suffisante pour le calcul des polarisabilités. De plus, nous pouvons imposer la symétrie de la matrice α , ce qui est beaucoup plus difficile à faire dans le cas de l'équation linéaire en contrainte.

Le choix des déformations appliquées à la boîte de simulation doit permettre de déterminer tous les termes des tenseurs au point stable et au point col. Les calculs peuvent être simplifiés en prenant en compte au préalable les symétries et les termes nuls du tenseur, comme pour les constantes élastiques. Pour les polarisabilités des défauts ponctuels, plusieurs ensembles de déformations peuvent être utilisés [29, 85, 86]. Ici, nous utiliserons au maximum 11 déformations pour prendre en compte les cas de basse symétrie traités dans ce travail. Ces déformations sont données dans le tableau 2.1.

$\varepsilon^1 = \begin{pmatrix} t & 0 & 0 \\ 0 & t & 0 \\ 0 & 0 & t \end{pmatrix}$	$\varepsilon^2 = \begin{pmatrix} t & 0 & 0 \\ 0 & -t & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\varepsilon^3 = \begin{pmatrix} t & 0 & 0 \\ 0 & t & 0 \\ 0 & 0 & -2t \end{pmatrix}$
$\varepsilon^4 = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2t \\ 0 & 2t & 0 \end{pmatrix}$	$\varepsilon^5 = \begin{pmatrix} 0 & 0 & t \\ 0 & 0 & t \\ t & t & 0 \end{pmatrix}$	$\varepsilon^6 = \begin{pmatrix} 0 & 2t & 0 \\ 2t & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
$\varepsilon^7 = \begin{pmatrix} t & t & 0 \\ t & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\varepsilon^8 = \begin{pmatrix} 0 & t & 0 \\ t & 0 & 0 \\ 0 & 0 & t \end{pmatrix}$	$\varepsilon^9 = \begin{pmatrix} t & 0 & 0 \\ 0 & t & 0 \\ 0 & 0 & -t \end{pmatrix}$
$\varepsilon^{10} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & t & 0 \\ 0 & 0 & 2t \end{pmatrix}$	$\varepsilon^{11} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & t & 0 \\ 0 & 0 & -t \end{pmatrix}$	

TABLEAU 2.1 – Ensemble de déformations utilisé pour déterminer les tenseurs de polarisabilités des défauts ponctuels dans l'aluminium à partir des simulations DFT, dans les cas de plus basse symétrie.

Les propriétés des défauts ponctuels ainsi déterminées serviront de données d'entrée pour nos calculs, notamment en OKMC. Dans la section suivante, nous présentons donc les méthodes KMC, qui permettent de simuler la diffusion des défauts ponctuels vers les puits.

2.3 Monte Carlo Cinétique

2.3.1 Approche et formalisme

Les méthodes Monte Carlo cinétique [87–91] sont des approches stochastiques pour déterminer l'évolution du système à partir des taux de transition de l'état actuel vers les autres états possibles.

Elles permettent de suivre la diffusion des défauts et des espèces chimiques dans un matériau et permettent donc en particulier de prendre en compte les corrélations spatiales.

Les simulations KMC que nous considérons ici utilisent un algorithme à temps de résidence [92, 93]. A partir d'un état donné, c'est le temps passé dans cet état qui est calculé, avant de faire évoluer le système par la transition choisie et d'incrémenter le temps de simulation en conséquence. Ainsi, les principales étapes d'une simulation KMC sont :

1. Calcul des taux de transition Γ_i pour les N transitions possibles.
2. Calcul de la distribution de fréquences cumulative.
3. Choix d'un nombre aléatoire $r_1 \in]0, 1]$ et de l'évènement i tel que

$$\sum_{k=1}^{i-1} \Gamma_k < r_1 \Gamma_{\text{tot}} \leq \sum_{k=1}^i \Gamma_k, \quad (2.13)$$

où $\Gamma_{\text{tot}} = \sum_{k=1}^N \Gamma_k$. Ce choix est illustré sur la figure 2.1.

4. Réalisation de l'évènement i (et éventuellement des évènements spontanés qui en découlent tels que absorptions ou réactions), et incrément du temps de simulation par Δt . Pour cela, un nombre aléatoire $r_2 \in]0, 1]$ est choisi, et Δt est déterminé par

$$\Delta t = -\frac{\ln(r_2)}{\Gamma_{\text{tot}}}. \quad (2.14)$$

5. Reproduction les étapes précédentes tant que le temps final de la simulation n'est pas atteint.

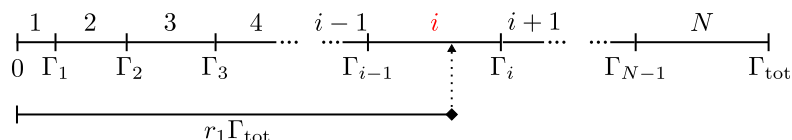


FIGURE 2.1 – Algorithme à temps de résidence : choix de l'évènement i .

Le cœur d'une simulation KMC est donc de bien définir les taux de transition de tous les évènements possibles. Par exemple, pour un phénomène thermiquement activé comme un saut atomique, la fréquence est exprimée sous la forme

$$\Gamma = \nu_0 \exp\left(-\frac{E^a}{k_B T}\right). \quad (2.15)$$

Dans cette équation ν_0 est la fréquence d'attaque, E^a est l'énergie d'activation, k_B la constante de Boltzmann et T la température.

Les évènements considérés dépendent du système simulé, mais aussi de l'approche adoptée. Les méthodes KMC regroupent en effet deux approches différentes, à différents niveaux de précision.

Monte Carlo cinétique atomique

Le KMC atomique (AKMC) est une méthode qui consiste à suivre la position de tous les atomes dans le système considéré. Elle repose donc sur un modèle d'interaction atomique, qui peut être du type potentiel inter-atomique ou réseau rigide [94]. Ainsi, cette méthode permet de prendre en compte l'influence de l'environnement local sur les fréquences de sauts. L'évolution de la microstructure dans une simulation AKMC est une conséquence des sauts des défauts ponctuels. Cette approche permet de rendre compte des corrélations entre sauts successifs des défauts ponctuels et des phénomènes de couplage de flux, notamment responsables des phénomènes de ségrégation induite [95]. Les simulations AKMC nécessitent de prendre en compte tous les atomes du système, ce qui limite la taille de ce dernier et le temps atteignable par ces simulations.

Monte Carlo cinétique sur objets (événements)

Dans le cas où la simulation concerne des alliages très dilués ou des métaux purs, l'efficacité peut être améliorée en ne prenant pas en compte les atomes de l'espèce majoritaire. On se limite donc à simuler la migration des défauts ponctuels et éventuellement des solutés, sans traiter les atomes de la matrice. Le système est alors vu comme un gaz d'amas. Un amas est défini par le nombre d'atomes de chaque soluté et de défauts ponctuels qu'il contient, et par sa forme.

Dans le KMC sur objets (OKMC) [89,96], les défauts ponctuels, ainsi que leurs amas, et les différents défauts de la microstructure sont traités comme des objets dont les propriétés sont définies a priori. Les événements pouvant se produire sont donc des sauts atomiques, la création de défauts ponctuels par l'irradiation, l'émission de défauts ou de solutés par les amas et les puits. L'absorption par les amas et puits (dislocations, joints de grains etc.) est une conséquence des sauts atomiques. Ces simulations permettent donc de considérer des systèmes plus grands et d'atteindre des temps plus longs que l'AKMC, mais les temps de simulation restent limités par les événements très fréquents comme les sauts atomiques.

En KMC sur événements (EKMC), au lieu de traiter les sauts atomiques, les événements possibles sont directement les conséquences de ces sauts, c'est-à-dire les réactions entre défauts et amas ou puits, qui font évoluer la population de défauts. Le temps de simulation est subdivisé en un « macro pas de temps » Δt , et tous les événements possibles durant le pas de temps sont réalisés. Pour cela, il est nécessaire de calculer les délais de réalisation des événements.

Par exemple, pour la rencontre de deux objets de rayons r_1 et r_2 , dont au moins un est mobile et réalise une marche aléatoire tridimensionnelle, on calcule la probabilité de réaction de ces deux objets avant l'instant t par

$$P(d, t) = \frac{r}{d} \operatorname{erfc} \left(\frac{d-r}{2\sqrt{Dt}} \right), \quad (2.16)$$

où

- d est la distance entre les deux objets,
- $r = r_1 + r_2 + d_{\text{reac}}$, où d_{reac} est la distance de réaction entre les deux objets,
- $D = D_1 + D_2$ est la somme des coefficients de diffusion des deux objets et
- erfc est la fonction d'erreur complémentaire.

Le délai de réaction est ensuite calculé en échantillonnant la densité de probabilité cumulée $P(d, t)$.

L'évènement ayant le délai le plus court τ_s est réalisé en premier, et le temps est incrémenté de τ_s . La liste des évènements est ensuite mise à jour, et l'évènement le plus rapide réalisé etc. Ces étapes sont répétées jusqu'à ce que le temps ait été incrémenté de Δt . Les espèces n'ayant pas réagi peuvent ensuite migrer en réalisant un « macro-saut » correspondant à une durée Δt , comme si la migration avait eu lieu pendant tout le temps Δt , ou une fraction de Δt si l'espèce a été créée pendant le macro-pas de temps.

L'utilisation de ce « macro-pas de temps » permet en théorie d'atteindre des temps physiques plus longs que dans les simulations OKMC. En revanche, le choix de ce Δt doit être un compromis entre efficacité et précision. Pour des pas de temps petits, l'EKMC est très précis et est équivalent à l'OKMC : sur le pas de temps Δt , les espèces mobiles font des sauts de faibles amplitude. Pour des pas de temps plus grands, l'amplitude des sauts augmente, mais de possibles évènements peuvent être masqués.

Une représentation schématique des différentes approches KMC est donnée figure 2.2.

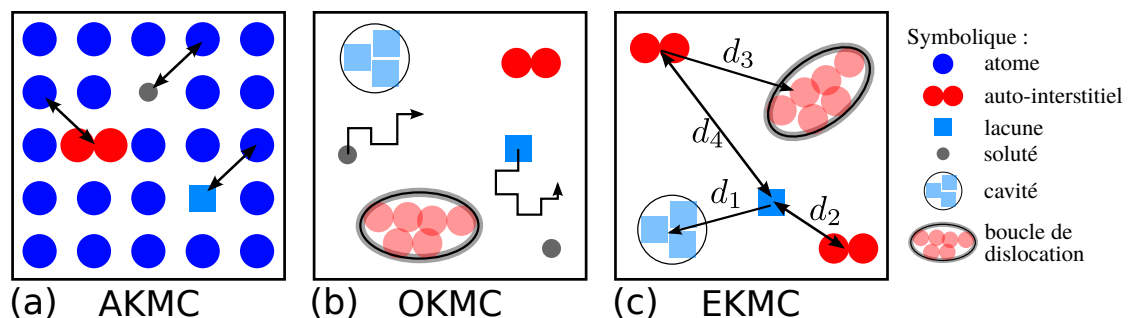


FIGURE 2.2 – Illustration des méthodes KMC (a) AKMC, (b) OKMC et (c) EKMC. Pour l'EKMC, les probabilités de réaction entre les différents objets sont calculées en fonction des distances d_i en échantillonnant des densités de probabilité cumulées du type (2.16).

2.3.2 Exemples de simulations en KMC : avantages et limitations des méthodes KMC

Les méthodes AKMC permettent la prise en compte des effets de l'environnement local et sont donc particulièrement adaptées à la simulation de phénomènes de ségrégation ou de précipitation induite par l'irradiation [94, 95] dans des alliages concentrés. Dans leur étude, F. Soisson *et al.* [95] étudient, par une méthode AKMC, la cinétique

de ségrégation dans un alliage binaire. La méthode permet de considérer les couplages entre flux de lacunes et flux de solutés dans la matrice métallique. En revanche, la taille du système reste limitée, ici à $512 \times 64 \times 64$ sites atomiques. L’AKMC est également utilisé par F. Soisson et C.-C. Fu [71] pour l’étude de la précipitation du cuivre dans le fer α . De même, l’emploi de cette méthode par E. Martínez *et al.* [97] permet l’étude de la cinétique de décomposition d’un alliage Fe-Cr. Les observations de sonde atomique tomographique sont bien reproduites. Là encore, le système simulé est de taille limitée ($2 \times 32 \times 32 \times 176$ sites atomiques).

Les simulations OKMC permettent quant à elles de suivre les microstructures irradiées à des échelles plus grandes. M. J. Caturla *et al.* [89] utilisent des simulations OKMC pour comparer les effets de l’irradiation dans le cuivre CFC et le fer CC. Le modèle utilisé, dans le code BIGMAC, permet d’utiliser les données issues de simulations de dynamique moléculaire pour suivre les concentrations d’amas interstitiels et lacunaires. De même N. Soneda *et al.* [98] s’intéressent aux effets de la température et du flux sur la microstructure de fer CC irradié aux neutrons. Dans cette étude, l’emploi de l’OKMC permet d’étudier tant les distributions d’amas dans le matériau que le comportement spatial des lacunes. Les simulations OKMC permettent également de prendre en compte les corrélations spatiales, notamment, comme identifié dans la sous-section 1.3.5, pour déterminer les forces de puits. Il est également possible d’intégrer dans les simulations OKMC les effets des champs élastiques [61, 64], qu’ils soient générés par les puits dans la matrice [65, 66, 99], ou dus à des contraintes extérieures [100]. Enfin, l’EKMC peut aussi être utilisé pour simuler efficacement des phénomènes tels que la cinétique des défauts ponctuels lors de recuits de résistivité [73, 74] ou la précipitation homogène [90]. Cependant, l’EKMC ne permet pas en l’état de prendre en compte les interactions élastiques, l’équation (2.16) n’étant valable que pour une marche aléatoire.

Dans ces travaux de thèse, le calcul des forces de puits est fait en OKMC. Cela permettra de prendre en compte les interactions élastiques et les corrélations spatiales. La formation de microstructures par l’irradiation pourra être simulée par OKMC pour être comparée à la DA. Pour accéder à des temps plus longs, quand les interactions élastiques ne seront pas prises en compte, nous pourrons utiliser des simulations EKMC.

2.3.3 Méthode pour les simulations OKMC et EKMC : description des codes

Dans cette thèse, les simulations OKMC sont réalisées avec le code STACCATO permettant la prise en compte des interactions élastiques [61]. Les fréquences de saut des défauts ponctuels sont calculées par

$$\Gamma_{\mathbf{h}} = \nu_0 \exp(-\Delta E_{\mathbf{h}}(\mathbf{r})/k_{\text{B}}T), \quad (2.17)$$

où \mathbf{h} est le saut considéré, ν_0 est la fréquence d’attaque supposée identique pour tous les sauts, et où $\Delta E_{\mathbf{h}}(\mathbf{r}) = E_0^{\text{m}} - E^{\text{sta}}(\mathbf{r}) + E_{\mathbf{h}}^{\text{col}}(\mathbf{r})$ (équation (1.20)). $E^{\text{sta}}(\mathbf{r})$ et $E_{\mathbf{h}}^{\text{col}}(\mathbf{r})$ sont données par les équations (1.21) et (1.22). Ces énergies dépendent donc au premier ordre des dipôles élastiques des défauts ponctuels, et des champs de déformation générés par

les puits. On utilisera les valeurs déterminées par DFT, comme indiqué dans la section précédente.

Les champs de déformation sont calculés dans le code OKMC. Dans la plupart des cas, lorsque les calculs sont réalisés en élasticité isotrope, une expression analytique du champ de déformation généré par chaque puits considéré existe et est implémentée dans le code. Dans le cadre de l'élasticité linéaire, les champs générés par les différents puits présents peuvent être sommés. Dans les cas où la somme numérique peut être faite efficacement, c'est-à-dire quand un faible nombre de puits est présent dans la boîte de simulation, les expressions sont utilisées directement pour évaluer les champs de déformation.

Dans le cas où de nombreux puits sont présents dans la boîte de simulation, la somme des champs de déformation est numériquement inefficace et demande un temps trop important. On a donc recours à une méthode multipolaire rapide (FMM, pour *Fast Multipole Method*) [101]. Il s'agit de découper la boîte de simulation selon un maillage hiérarchique, permettant de distinguer les sources lointaines des sources proches du point où les déformations doivent être évaluées. La contribution des sources proches reste faite de manière directe, tandis que celle des sources lointaines se fait par l'évaluation d'un développement local en harmoniques sphériques. Dans notre cas, les sources sont des points de Gauss sur les puits considérés. En pratique, la FMM est utilisée dans les simulations visant à créer des microstructures et à y étudier les forces de puits (voir chapitre 4).

Dans le cas où les calculs sont réalisés en élasticité anisotrope, en général, il n'existe pas d'expression analytique des champs de déformation. Dans ce cas, on s'appuie sur une méthode basée sur la transformation de Fourier rapide (FFT, pour *Fast Fourier Transform*), en utilisant une solution analytique de l'équilibre élastique dans l'espace de Fourier [102–104].

Pour les simulations EKMC, nous utilisons le code JERK décrit par J. Dalla-Tore *et al.* [105]. Ce code prend en compte les réactions de coalescence entre les amas lorsque ceux-ci sont trop proches les uns des autres. Ce n'est pas le cas du code OKMC : il faudra donc rester dans le régime où ces événements sont rares pour que ces approches soient équivalentes.

Dans la section suivante, nous nous intéressons à la DA, méthode en champ moyen qui permet la simulation de l'évolution des matériaux à plus grande échelle. Notre objectif est d'identifier les forces de faiblesses de cette approche pour aboutir à la formulation des objectifs de ces travaux de thèse.

2.4 Dynamique d'amas

La dynamique d'amas (DA) est une approche en champ moyen, permettant de simuler l'évolution dans le temps d'une population d'amas dans un matériau, par des équations de type cinétique chimique homogène [106–112]. On traite donc seulement les concentrations des espèces présentes, qui sont supposées homogènes dans l'espace, et on ignore les positions des différents éléments. Le système est considéré comme un gaz

d'amas. Cette méthode permet de simuler efficacement des temps longs, comparables aux temps expérimentaux.

2.4.1 Équations

La DA est donc un modèle de gaz d'amas reposant, dans sa version la plus simple, sur l'absorption et l'émission de mono-défauts par les amas, qui inclut de manière naturelle la nucléation, la croissance et la coalescence des amas, par la définition des taux de transition. On présente ci-dessous les équations de la DA pour la simulation de l'évolution des amas d'auto-défauts sous irradiation. Pour simplifier, on considère ici un métal pur, et on ignore donc le rôle des solutés.

Dans ce cas, les amas pouvant se former sous irradiation sont de nature interstitielle ou lacunaire, et sont donc définis par le nombre et le type d'auto-défauts qu'ils contiennent. On désignera ce nombre par l'entier $|n|$, avec $n < 0$ pour un amas lacunaire et $n > 0$ pour un amas interstitiel. On se place enfin dans le cas le plus simple où seuls les défauts ponctuels ($n = \pm 1$) sont mobiles.

Équations pour les amas immobiles

Pour les amas immobiles, l'évolution se fait par absorption ou émission d'espèces mobiles, ici uniquement de défauts ponctuels. L'équation décrivant l'évolution de la concentration C_n d'un amas de classe n est donc

$$\frac{dC_n}{dt} = G_n + J_{n-1 \rightarrow n} - J_{n \rightarrow n+1}. \quad (2.18)$$

Dans l'équation (2.18), G_n représente la création d'amas de taille n par l'irradiation, les deux termes suivants représentent l'évolution de la concentration par absorption et émission de défauts ponctuels par les amas.

Les amas peuvent donc évoluer par absorption ou émission d'interstitiels ou de lacunes. On définit les termes suivants :

- $\alpha_{n,-1}$ le taux d'émission d'une lacune par un amas de classe n ,
- $\alpha_{n,1}$ le taux d'émission d'un interstitiel par un amas de classe n ,
- $\beta_{n,-1}$ le taux d'absorption d'une lacune par un amas de classe n ,
- $\beta_{n,1}$ le taux d'absorption d'un interstitiel par un amas de classe n .

Ainsi, on peut écrire

$$J_{n \rightarrow n+1} = \beta_{n,1} C_n C_1 - \alpha_{n+1,1} C_{n+1} - \beta_{n+1,-1} C_{n+1} C_{-1} + \alpha_{n,-1} C_n. \quad (2.19)$$

$J_{n \rightarrow n+1}$ traduit donc une transition dans l'espace des tailles, de la taille n vers la taille $n + 1$ comme illustré sur la figure 2.3.

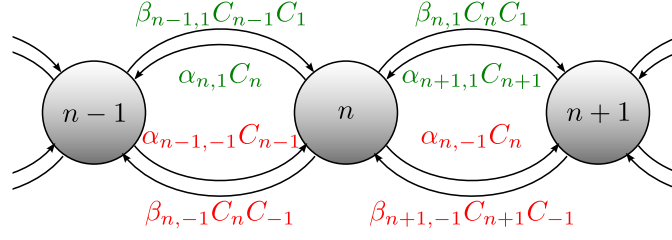


FIGURE 2.3 – Évolution des amas dans l'espace des tailles, définie par les coefficients d'absorption $\beta_{n,\pm 1}$ et d'émission $\alpha_{n,\pm 1}$. Les termes indiqués en vert sont relatifs à l'absorption ou l'émission d'interstitiels (+1), ceux en rouge sont relatifs aux lacunes (-1).

Les expressions générales des coefficients d'émission et d'absorption sont les suivantes :

$$\beta_{n,\pm 1} = 4\pi D_{\pm 1} Z (r_{\pm 1} + r_n + d_{\text{réac}}) \quad (2.20)$$

$$\alpha_{n\pm 1,\pm 1} = \frac{\beta_{n,\pm 1}}{\Omega} \exp\left(-\frac{E_{n\pm 1,\pm 1}^l}{k_B T}\right). \quad (2.21)$$

Ici, $D_{\pm 1}$ est le coefficient de diffusion du monomère considéré ($n = \pm 1$) et $r_{\pm 1}$ est son rayon, et r_n est le rayon de l'amas de classe n . $d_{\text{réac}}$ est une distance de réaction et Z un facteur d'efficacité lié à la force de puits, dont l'expression dépend du type d'amas traité. Pour le coefficient d'émission, Ω est le volume atomique, et $E_{n,\pm 1}^l$ est l'énergie de liaison du monomère à l'amas. Elle dépend des énergies de formation du monomère et des amas de classe n et $n \pm 1$. L'expression de ces dernières dépend du type d'amas traité. Par exemple, pour une cavité, on peut utiliser une loi capillaire [113, 114] et pour une boucle de dislocation, dans le cadre de l'élasticité linéaire, on peut utiliser une loi élastique [115].

Deux exemples pour le coefficient d'absorption sont donnés ci-dessous, pour les cas simples d'une cavité et d'une boucle, immergées dans un milieu infini et sans interactions élastiques. On peut utiliser les expressions des forces de puits données au chapitre 1 pour déterminer l'expression de $\beta_{n,\pm 1}$, sachant que d'une façon générale :

$$\beta_{n,\pm 1} = \frac{k_{n,\pm 1}^2}{C_n} D_{\pm 1}. \quad (2.22)$$

Pour une cavité, on a $k^2 = 4\pi r_c \rho Z$ (où $r_c = r_n + r_{\pm 1}$ et $\rho = C_n$) avec $Z = 1$ en milieu infini (eq. (1.58)), d'où :

$$\beta_{n,\pm 1} = 4\pi D_{\pm 1} (r_n + r_{\pm 1}). \quad (2.23)$$

Pour une boucle, avec $k^2 = 2\pi r_L \rho Z$ (où $r_L = r_n$ et $\rho = C_n$) et l'équation (1.69), on obtient :

$$\beta_{n,\pm 1} = 4\pi D_{\pm 1} \frac{\pi r_n}{\ln\left(\frac{8r_n}{r_c}\right)}. \quad (2.24)$$

Dans cette équation, on a négligé la dépendance en $r_{\pm 1}$, comme cela est souvent le cas dans la littérature [114].

Equations pour les espèces mobiles

Les équations décrivant l'évolution des concentrations de défauts ponctuels ($n = \pm 1$) sont semblables à l'équation (2.18), à laquelle il faut ajouter deux termes :

$$\begin{aligned} \frac{dC_1}{dt} = G_1 + J_{0 \rightarrow 1} - J_{1 \rightarrow 2} - \sum_n J_{n \rightarrow n+1} \\ - \sum_p k_{p,1}^2 D_1 (C_1 - C_{1,p}^{\text{eq}}), \end{aligned} \quad (2.25)$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_{-1}}{dt} = G_{-1} + J_{-2 \rightarrow -1} - J_{-1 \rightarrow 0} + \sum_n J_{n-1 \rightarrow n} \\ - \sum_p k_{p,-1}^2 D_{-1} (C_{-1} - C_{-1,p}^{\text{eq}}). \end{aligned} \quad (2.26)$$

Dans ces équations, G est le taux de création de défauts ponctuels par l'irradiation. D_{-1} et D_1 désignent les coefficients de diffusion. L'avant dernier terme provient de l'absorption et l'émission de défauts ponctuels mobiles par tous les amas. Le dernier terme est une somme sur chacun des types de puits considérés, désigné par l'indice p , pour lequel $k_{p,\pm 1}^2$ est la force de puits pour les interstitiels ($k_{p,1}^2$) et les lacunes ($k_{p,-1}^2$). La concentration notée $C_{\pm 1,p}^{\text{eq}}$ désigne la concentration d'équilibre locale au niveau du puits p .

Il est également possible de considérer dans la simulation la présence de solutés, tels que l'hélium, qui peuvent contribuer à la croissance de cavités. Les équations (2.18), (2.25) et (2.26) peuvent simplement être adaptées pour ces simulations, en remplaçant n par un ensemble (n, p, q, \dots) où n représente le nombre d'interstitiels ($n > 0$) ou de lacunes ($n < 0$) et les indices p, q, \dots représentent le nombre d'atomes de chaque soluté considéré. Dans ce cas, il y aura autant d'équations à résoudre que de combinaisons des (n, p, q, \dots) possibles. La DA nécessite donc de résoudre un grand nombre d'équations.

Formulation continue de la DA : L'équation de Fokker-Planck

Les équations de la DA pour les grandes tailles d'amas peuvent être exprimées dans une formulation continue, sous la forme de l'équation de Fokker-Planck.

Pour l'obtenir, on suppose ici que l'irradiation ne crée que des défauts ponctuels. Le terme G_n disparaît donc de l'équation (2.18). Dans le cas où $|n| \gg 1$, un développement de Taylor de l'équation (2.18) permet d'obtenir une formulation approchée, par une équation de Fokker-Planck (FP) [116] exprimée par

$$\frac{\partial C(x, t)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x} [F(x, t)C(x, t)] + \frac{\partial^2}{\partial x^2} [D(x, t)C(x, t)], \quad (2.27)$$

où x est une variable continue telle que si $x = n$, $C(x, t) = C_n(t)$, et avec

$$F(x, t) = \beta_1(x)C_1(t) - \alpha_1(x) - \beta_{-1}(x)C_{-1}(t) + \alpha_{-1}(x) \quad (2.28)$$

$$D(x, t) = \frac{1}{2} [\beta_1(x)C_1(t) + \alpha_1(x) + \beta_{-1}(x)C_{-1}(t) + \alpha_{-1}(x)]. \quad (2.29)$$

Ceci permet de faire apparaître deux contributions dans l'évolution des amas. Pour mieux la visualiser, on peut reformuler l'expression (2.27) sous la forme de flux :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\frac{\partial J}{\partial x} = -\frac{\partial J^a}{\partial x} - \frac{\partial J^d}{\partial x}, \quad (2.30)$$

où

$$J^a = F(x, t)C(x, t) \quad (2.31)$$

$$J^d = -\frac{\partial}{\partial x} [D(x, t)C(x, t)]. \quad (2.32)$$

Ainsi, on voit apparaître un flux d'advection J^a et un flux de diffusion J^d dans l'espace des amas. L'évolution des amas est donc dictée par un terme de dérive, donnée par F , et un terme de diffusion, par D . Le terme de dérive est lié à la croissance des amas, c'est-à-dire à la différence entre l'absorption et l'émission de monomères. Le terme de diffusion est lié aux fluctuations dues à l'absorption et l'émission aléatoires de monomères.

Spatialisation de la DA

Les équations présentées ci-dessus obligent à considérer les concentrations comme homogènes dans l'espace. Pour l'étude de certains systèmes, notamment des couches minces, où les concentrations ne peuvent pas être considérées comme homogènes, il peut être nécessaire de prendre en compte les variations spatiales. Il est alors possible de spatialiser les équations de la dynamique d'amas.

Plusieurs auteurs [108, 111, 112] proposent une adaptation des équations de la DA pour la prise en compte de la profondeur dans le matériau irradié. Pour cela, le système est découpé en plusieurs couches, qui sont couplées entre elles par la loi de Fick. Il est nécessaire que les concentrations varient peu d'une couche à l'autre pour que la concentration puisse être considérée comme localement homogène. Ce découpage permet de faire varier certaines propriétés avec la profondeur, comme par exemple le taux de création de défauts ponctuels. La spatialisation de la DA augmente de façon importante le nombre d'équations.

2.4.2 Méthodes de résolution

La DA consiste donc à résoudre un ensemble d'équations différentielles. Avec une équation par taille d'amas, le nombre d'équations explose très rapidement. De plus, ces systèmes d'équations sont généralement très raides, c'est-à-dire que les temps caractéristiques pour certaines équations peuvent être très grands, tandis qu'ils peuvent être très courts pour d'autres. La résolution numérique de ce système de façon déterministe doit alors faire appel à des méthodes implicites [106]. Ces dernières nécessitent de garder en mémoire un très grand nombre de données, et sont donc très difficiles à utiliser pour un grand nombre d'amas.

Afin de contourner ce problème, plusieurs méthodes et approximations ont été développées.

Approches déterministes

Une première idée est de réduire le nombre d'équations, tout en gardant une approche déterministe. Pour cela, on distingue deux types de méthodes :

- les méthodes de regroupement, initiées par M. Kiritani [117] et améliorées par S. I. Golubov *et al.* [118],
- les méthodes de discrétisation de l'équation de Fokker-Planck [107].

Méthode de regroupement

La première méthode vise à regrouper les amas en classes afin de limiter le nombre d'équations. Cette méthode a d'abord été développée par M. Kiritani [117] puis améliorée par S. I. Golubov *et al.* [118]. Elle permet de limiter le nombre d'équations en remplaçant un groupe d'équations par un nombre limité d'équations représentant l'évolution des premiers moments de la distribution dans le groupe. S. I. Golubov *et al.* [118] ont montré qu'il était au moins nécessaire de considérer les moments d'ordre zéro et d'ordre un de la distribution pour obtenir un schéma valide. La méthode ainsi proposée fournit des résultats satisfaisants, dans la mesure où les distributions obtenues sont identiques pour des tailles d'intervalle différentes (si la taille reste assez petite).

Elle peut cependant aboutir à des résultats non physiques comme des concentrations négatives [119]. Plus récemment, cette approche a aussi été utilisée dans une version dégradée par A. Kohnert et B. Wirth [120].

Résolution déterministe de l'équation de FP

La formulation continue n'est valide que pour $|n| \gg 1$, il est donc nécessaire de coupler la résolution des équations pour les petits amas, qui se fait par l'équation (2.18) et la discrétisation de l'équation de FP [112].

La résolution déterministe de l'équation de FP se fait en utilisant un schéma de discrétisation numérique [112, 119]. La discrétisation doit se faire avec un pas plus grand que l'unité permettant ainsi la réduction du nombre d'équations. Plusieurs schémas existent, mais souvent s'accompagnent de problèmes numériques, qui peuvent par exemple être identifiés en les comparant à la solution exacte pour l'agglomération des lacunes donnée par M. Koiwa [121] (voir notamment [119]). En particulier, le schéma proposé par J. S. Chang et G. Cooper [122] mène à de la diffusion numérique, c'est-à-dire un étalement de la distribution, tandis que le schéma centré donne des oscillations de la distribution. Le schéma plus récemment proposé par T. Jourdan *et al.* [119] permet d'éviter ces problèmes.

Ces méthodes déterministes restent cependant limitées par la taille des systèmes, en particulier lorsque l'on considère des solutés.

Approche stochastique

Une seconde idée est d'utiliser des approches stochastiques. Elles ont notamment été développées par J. Marian et V. V. Bulatov [123], qui ont proposé une résolution

stochastique des équations de la DA en adaptant l’algorithme de simulation stochastique (SSA, *stochastic simulation algorithm*) proposé par D. T. Gillespie [93]. Ces approches sont beaucoup plus efficaces que les approches déterministes dans le cas où un grand nombre d’espèces sont considérées, notamment lorsque des solutés sont présents dans le système. En revanche, l’efficacité des simulations est limitée par le pas de temps qui est imposé par les réactions les plus fréquentes. Il est donc souvent bien plus petit que pour les méthodes déterministes.

Approches hybrides

Enfin, un ensemble de méthodes dites « hybrides », visent à tirer avantage des résolutions déterministes et stochastiques. Pour cela, les équations pour les monomères et petits amas, jusqu’à une taille $|n^*|$, sont résolues de façon déterministe, tandis que les grands amas ($|n| > |n^*|$) sont traités de façon stochastique. La difficulté de ces approches réside donc surtout dans le couplage entre la partie stochastique et la partie déterministe.

M. Gherardi *et al.* [124] ont proposé un algorithme reposant sur la résolution stochastique des équations (2.18) reprenant la méthode de J. Marian et V. V. Bulatov [123]. Dans cette approche, le couplage est fait en introduisant un terme source effectif dans un petit nombre d’équations.

M.P. Surh *et al.* [125] ont quant à eux proposé un algorithme basé sur l’équation de FP qui est résolue de façon stochastique. Les particules stochastiques représentant les amas migrent ensuite dans l’espace des tailles par un processus de Langevin. La création de particules stochastiques se fait à chaque pas de temps, et l’efficacité de la simulation reste donc limitée.

Enfin, l’approche plus récente de P. Terrier *et al.* [126] utilise également la formulation continue par l’équation de FP. Les particules stochastiques créées migrent dans l’espace des tailles selon un processus de Langevin. Le couplage entre la partie déterministe et la partie stochastique est ici réalisé via une zone tampon, comme illustré sur la figure 2.4. À un pas de temps donné, la distribution est séparée en deux parties, correspondant aux petits amas ($|n| \leq |n^*|$) et aux grands amas ($|n| > |n^*|$). Les deux parties sont propagées indépendamment, de façon déterministe pour la première et de façon stochastique pour la seconde. La propagation est limitée par la taille de la zone tampon, où les deux distributions se superposent. La distribution au pas de temps suivant est ensuite obtenue en sommant les deux distributions propagées. Les amas entrant dans la zone tampon par la partie déterministe sont utilisés pour créer les particules stochastiques à chaque pas de temps, ce qui permet la conservation de la matière.

2.4.3 Méthode pour la DA : code CRESCENDO

Les simulations DA de cette thèse sont réalisées avec le code CRESCENDO (pour *cresc.*, *Chemical Rate Equation for the Simulation of Clustering*), co-développé par le CEA et EDF.

Le modèle utilisé est le modèle IVS, décrit par T. Jourdan *et al.* dans la référence [112]. Ce code permet de résoudre les équations de façon déterministe en utilisant

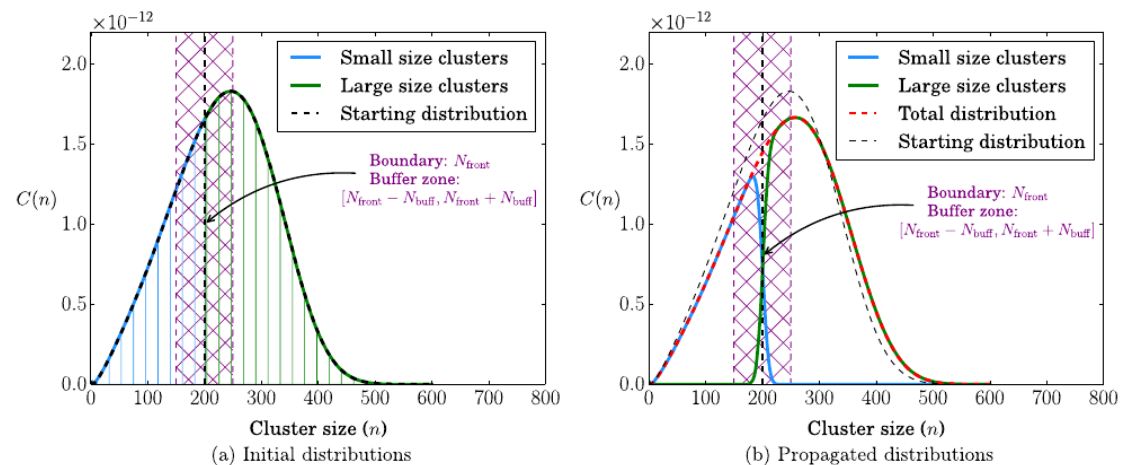


FIGURE 2.4 – Décomposition de la résolution des équations de la DA selon l’approche de P. Terrier *et al.* [126]. La distribution initiale (a) est séparée en 2 parties : les petits amas sont propagés de façon déterministe, et les grands amas sont propagés de façon stochastique. La propagation est limitée par une zone tampon où les distributions se superposent. La distribution finale (b) est obtenue en sommant les deux distributions.

une discrétisation de l’équation de Fokker-Planck [119], ou par un algorithme hybride reposant sur l’approche développée par P. Terrier [126], décrite ci-dessus.

Il est également possible de prendre en compte la présence d’un soluté en plus des défauts ponctuels ou d’utiliser une version spatialisée du code. Ces derniers éléments ne seront pas utilisés dans le cadre de ce travail.

2.4.4 Exemples de simulations en dynamique d’amas : forces et limites de la DA

Les simulations DA permettent, au travers d’une description effective, de reproduire certaines observations expérimentales, et également d’apporter une explication à certains phénomènes observés. La DA permet par exemple d’étudier le gonflement des aciers sous irradiation, notamment en permettant d’intégrer la présence d’hélium [127, 128]. Ceci permet donc d’étudier le rôle de ce soluté sur la formation des cavités, avec la possibilité d’étudier des doses élevées par des simulations de quelques minutes [127]. L’étude des phénomènes de désorption de l’hélium dans le fer α est également possible en DA. C. J. Ortiz *et al.* [72, 109] ont étudié ce phénomène par DA en utilisant des données issues de simulations *ab initio*. Ceci permet de retrouver un bon accord avec les données expérimentales et d’identifier le rôle du carbone. Le code développé par D. Xu et B. D. Wirth [110] permet une prédiction convenable de la désorption d’hélium dans le fer CC, et d’expliquer les observations faites sur un film de molybdène [129]. La méthode proposée par A. Dunn et L. Capolungo [130] permet également de reproduire de façon satisfaisante les concentrations d’amas interstitiels et lacunaires dans le fer et le cuivre irradiés aux neutrons. De même, les simulations DA permettent à S. Pellegrino *et*

al. [75] d'apporter une explication à la déformation mesurée dans un carbure de zirconium irradié, en la reliant au comportement des amas interstitiels. Enfin, la DA est également utilisée par B. Michaut *et al.* [131] pour identifier le rôle des interstitiels injectés dans l'évolution de la microstructure d'un acier austénitique 304L irradié. La DA permet donc de comparer les résultats expérimentaux à ceux de la simulation, avec de plus des temps de simulation très courts.

Cette méthode peut aussi être comparée à des méthodes plus précises, comme l'OKMC. En effet dans les régimes où les corrélations spatiales ont une faible influence, les résultats de la DA correspondent à ceux de l'OKMC. C'est le cas pour des fractions volumiques faibles, ou pour une irradiation ne créant que des paires de Frenkel [132–134], pour lesquels un excellent accord entre ces techniques est obtenu. On retrouve aussi un bon accord entre KMC et DA pour la simulation des stades à plus haute température d'un recuit de résistivité [135], ou encore dans le cas de la précipitation homogène en condition de vieillissement thermique [136].

Cependant, la DA ne prend en compte les effets élastiques que par les forces de puits uniquement, il s'agit donc d'une description très simplifiée qui n'inclut pas de description spatiale. De même, les effets dus aux cascades de déplacements ne sont pris en compte que par la valeur du terme source. Les corrélations spatiales dans les cascades ne sont pas traitées en DA, bien qu'il soit possible de les prendre en compte de manière effective dans une certaine mesure [137]. L'absence des corrélations spatiales constitue le principal inconvénient de la DA [138] et peut mener à des désaccords entre DA et des simulations qui les prennent en compte telles que celles réalisées en OKMC. Ceci a été montré dans le cas d'un recuit de résistivité par J. Dalla Torre [135]. De même, C. J. Ortiz et M. J. Caturla [139] se sont intéressés aux effets des agglomérations et recombinaisons dans les cascades d'irradiation sur le cas du fer irradié. Ils obtiennent une forte différence entre ces deux techniques aux basses températures, du fait de l'importance des corrélations spatiales. Les mêmes conclusions sont obtenues sur le cas d'un recuit isochrone [140].

De plus, les résultats de DA sont très sensibles aux valeurs des paramètres que sont le terme source [137], les forces de puits et les biais [36]. Pour illustrer simplement ce dernier point, nous réalisons deux simulations DA. Il s'agit de simuler l'agglomération de lacunes et d'interstitiels en présence de dislocations. Les deux simulations sont identiques, à l'exception de la valeur du biais des dislocations qui est modifiée. Les paramètres utilisés pour cet exemple sont présentés dans le tableau 2.2. Les résultats sont illustrés sur la figure 2.5 : on voit qu'une variation de valeur de force de puits d'une dislocation de seulement 10% environ impacte fortement la distribution finale.

Dans le matériau, les valeurs de forces de puits d'un amas varient certainement d'un endroit à un autre, selon son voisinage. On peut supposer que la forme des distributions d'amas est affectée par l'absence de prise en compte de ces effets de voisinage. Par exemple, on peut remarquer que les distributions de tailles d'amas issues de simulations DA sont très souvent asymétriques, tandis que celles mesurées expérimentalement sont plus symétriques (voir par exemple ref. [141] et fig. 2.6 (b)). De telles différences ont également été observées sur les microstructures de précipités en conditions de vieillissement thermique [142] (voir fig. 2.6 (a)). D'autres observations expérimentales ne peuvent pas

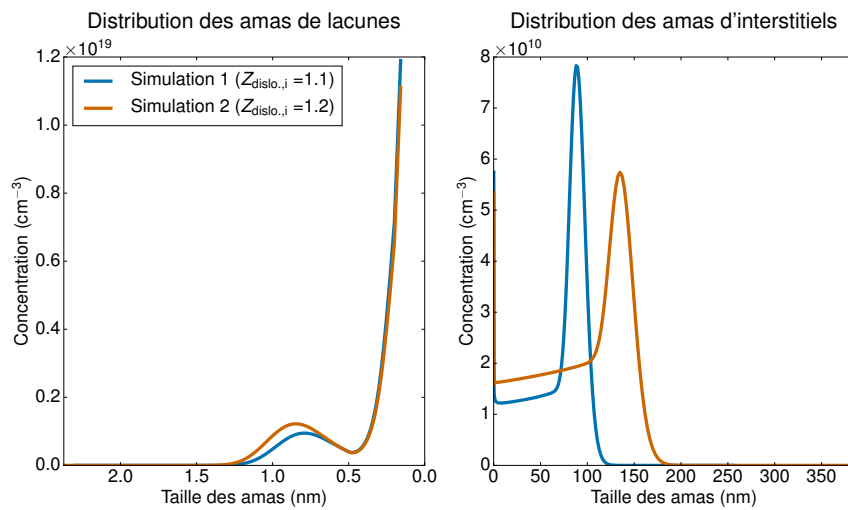


FIGURE 2.5 – Illustration de l’influence des valeurs de forces de puits sur les distributions de tailles d’amas lacunaires et interstitiels. Les valeurs de paramètres utilisées sont données dans le tableau 2.2.

non plus être reproduites par des simulations DA, comme celle de S. Jitsukawa et H. Hojou [8] qui ont observé des petites boucles de dislocation se rétracter dans le voisinage de boucles plus grandes qui continuent de croître (voir fig. 2.7 (a)). On peut également noter que la germination hétérogène de cavités dans le voisinage de dislocations, notamment observée par D. I. R. Norris [143], pourrait être expliquée par des hétérogénéités de forces de puits, qui ne sont pas prises en compte en DA. C’est également le cas pour la formation de boucles lacunaires dans le voisinage de boucles interstitielles observée par K. Urban [144] (voir fig. 2.7 (b)).

En résumé, la DA est une méthode qui permet de simuler efficacement les phénomènes survenant dans les matériaux, en particulier sous irradiation, grâce à une description en champ moyen. Cependant, la prise en compte simplifiée des effets élastiques et l’absence des corrélations spatiales et des effets de voisinage dans son formalisme mènent à des imprécisions vis-à-vis de l’expérience et des différences avec d’autres types de simulations. Les simulations sont de plus très sensibles aux paramètres utilisés, en particulier les valeurs de forces de puits.

Matériau : aluminium	
Paramètre de maille :	$a_0 = 0.40496 \text{ nm}$ (ref. [145])
Propriétés des défauts ponctuels	
Énergie de formation :	$E_i^f = 3.0 \text{ eV}$ $E_v^f = 0.67 \text{ eV}$ (ref. [145])
Énergie de migration :	$E_{0,i}^m = 0.105 \text{ eV}$ $E_{0,v}^m = 0.61 \text{ eV}$ (ref. [145])
Préfacteur du coefficient de diffusion :	$D_{0,i} = 0.05 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ $D_{0,v} = 0.1 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ (ref. [145])
Formation des amas	
Énergie de formation des boucles :	Loi élastique : (ref. [115]) - énergie de faute d'empilement : $\gamma = 0.120 \text{ J} \cdot \text{m}^{-2}$ - rayon de coupure : $\rho_c = 0.08 \cdot 10^{-10} \text{ m}$
Énergie de liaison du di-interstitiel :	$E_{i_2}^b = 0.8 \text{ eV}$ (ref. [145])
Énergie de formation des cavités :	Loi capillaire (ref. [113, 114])
Énergie de liaison de la bi-lacune :	$E_{v_2}^b = 0.3 \text{ eV}$ (ref. [145])
Autres paramètres de simulation	
Temps simulé :	$t = 10^4 \text{ s}$
Terme source :	$G = 10^{-4} \text{ dpa} \cdot \text{s}^{-1}$
Densité de dislocations :	$\rho = 10^{14} \text{ m}^{-2}$
Efficacité d'absorption pour les lacunes :	$Z_{\text{dislo},v} = 1.0$
Efficacité d'absorption pour les interstitiels :	Simulation 1 : $Z_{\text{dislo},i} = 1.1$ Simulation 2 : $Z_{\text{dislo},i} = 1.2$

TABLEAU 2.2 – Valeurs des paramètres utilisées pour les simulations DA illustrant l'influence des valeurs de forces de puits sur les distributions de tailles d'amas (fig. 2.5).

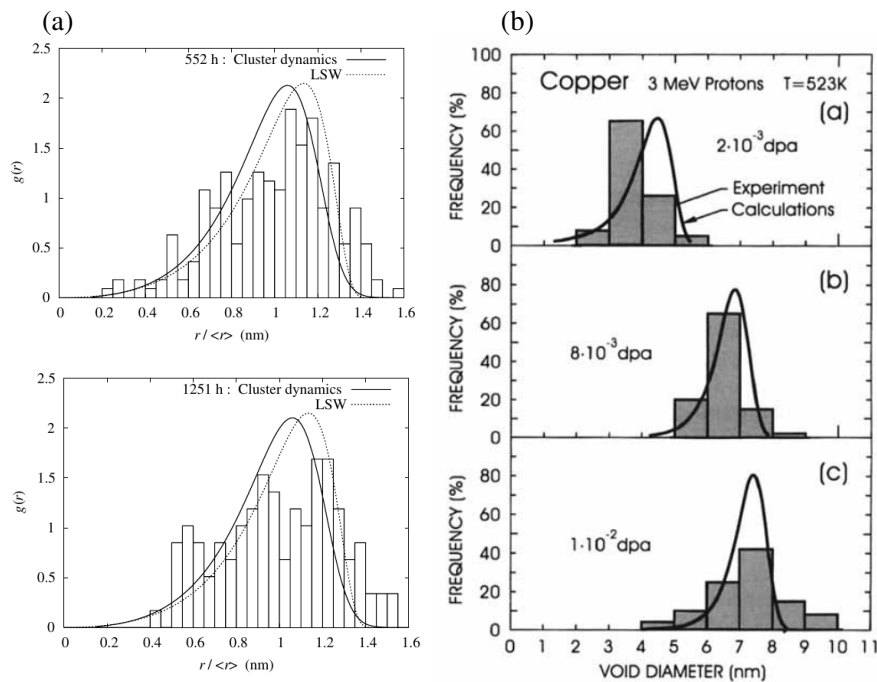


FIGURE 2.6 – (a) Exemple de distributions de tailles de précipités dans une solution solide sursaturée de Al_3Sc après vieillissement thermique, obtenues par DA et comparée aux données expérimentales (histogrammes) [142]. (b) Distributions de tailles de cavités mesurées et calculées dans du cuivre irradié à différentes doses [141].

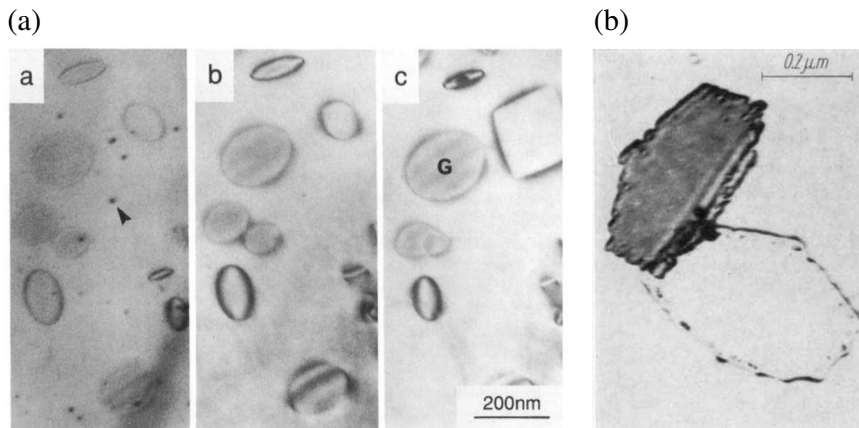


FIGURE 2.7 – (a) Observation de boucles interstitielles dans l'aluminium irradié au cours du temps : les petites boucles se rétractent et disparaissent [8]. (b) Grandes boucles interstitielles obtenues après irradiation de nickel, des petites boucles lacunaires sont présentes sur la périphérie intérieure [144].

2.5 Objectifs et démarche

Les observations précédentes nous permettent de formuler les objectifs de la thèse. Dans ce travail, nous chercherons à :

- **Évaluer précisément les forces de puits, pour quantifier l’influence des interactions élastiques et des propriétés des défauts ponctuels sur ces paramètres.** Pour cela, nous réaliserons des simulations OKMC, qui nous permettront de prendre en compte les interactions élastiques entre les puits et les défauts ponctuels, en étudiant des configurations simples de puits. On cherchera particulièrement à mettre en évidence les propriétés des dipôles élastiques ayant une forte influence sur les valeurs des forces de puits. L’idée est de savoir jusqu’à quel degré de raffinement il est nécessaire de décrire les défauts ponctuels pour calculer les forces de puits.
- **Évaluer les effets de voisinage sur les valeurs de forces de puits.** Pour cela, nous utiliserons des simulations OKMC pour former des microstructures, puis pour étudier les forces de puits dans ces microstructures. En comparant aux forces de puits d’objets isolés, nous identifierons les effets dus à la présence et à la proximité de plusieurs puits.
- **Évaluer l’influence des effets de voisinage sur les distributions de tailles d’amas.** Il s’agira donc de comparer les distributions obtenues à partir des microstructures formées en OKMC à celles issues de simulations DA. Ceci nous permettra d’identifier l’influence des corrélations spatiales (présentes en OKMC uniquement) sur les distributions, et donc de comprendre les conséquences de leur absence sur la DA.
- **Proposer une adaptation du formalisme de la DA permettant de prendre en compte les effets de voisinage.** Pour cela, nous devons développer une nouvelle expression de force de puits et une méthode pour intégrer les effets de voisinage dans le formalisme de cette méthode en champ moyen.

2.6 Résumé

Dans ce chapitre, nous avons d’abord présenté succinctement les simulations DFT, qui permettent de déterminer certaines propriétés des défauts ponctuels. Ces données peuvent ensuite alimenter les calculs DA et KMC. Il s’agit de l’approche que nous utilisons dans cette thèse pour calculer les dipôles élastiques et polarisabilités des défauts ponctuels.

Ensuite, les méthodes KMC ont été présentées. L’OKMC et l’EKMC permettent de prendre en compte les corrélations spatiales, tout en simulant de façon efficace l’évolution des microstructures. Dans ces méthodes, les atomes de la matrice sont ignorés. En OKMC, il est possible de prendre en compte les interactions élastiques entre défauts ponctuels et puits. Dans cette thèse, un code OKMC permettant de prendre en compte

les interactions élastiques sera utilisé, des temps plus longs pourront être atteints grâce à des simulations EKMC.

Enfin, nous avons présenté la DA. Il s'agit d'une approche en champ moyen, où l'on résout un ensemble d'équations sur les concentrations de défauts ponctuels et de leurs amas. Ce formalisme repose sur les valeurs de forces de puits qui décrivent l'absorption des défauts ponctuels par les puits. Le nombre d'équations étant rapidement très important, plusieurs techniques de résolution numérique ont été développées pour éviter la résolution déterministe du système. Les simulations DA permettent de simuler efficacement l'évolution des matériaux sous irradiation, à des temps comparables aux observations expérimentales. En revanche, les résultats sont très dépendants des valeurs de forces de puits. De plus, l'absence totale des corrélations spatiales est une limitation importante, qui empêche par exemple de prendre en compte les phénomènes se produisant dans les cascades de déplacements.

Chapitre 3 —

Étude de l'influence des interactions élastiques et des dipôles élastiques sur les forces de puits

Sommaire

3.1	Introduction	63
3.2	Méthodes	63
3.2.1	Simulations OKMC et calcul des forces de puits	63
3.2.2	Calcul des dipôles élastiques des défauts ponctuels	66
3.2.3	Mise en évidence de l'influence des interactions élastiques et des dipôles	68
3.3	Dislocation droite	69
3.3.1	Définition de l'étude	69
3.3.2	Force de puits et biais	71
3.3.3	Analyse et discussion	73
3.3.4	Importance de l'anisotropie élastique	77
3.4	Cavité sphérique	78
3.4.1	Définition de l'étude	78
3.4.2	Forces de puits et biais	79
3.4.3	Analyse et discussion	81
3.5	Boucle de dislocation	83
3.5.1	Définition de l'étude	83
3.5.2	Forces de puits et biais	84
3.5.3	Analyse et discussion	88
3.6	Influence des polarisabilités diaélastiques	92
3.6.1	Méthode : Détermination des polarisabilités	92
3.6.2	Dipôles élastiques	93
3.6.3	Polarisabilités	95
3.7	Conclusion	99

3.1 Introduction

Ce chapitre vise à évaluer de façon précise les forces de puits des principaux puits existant dans les microstructures irradiées, que sont les dislocations droites, les cavités sphériques et les boucles de dislocation, en prenant en compte les interactions élastiques. Il s'agit également de quantifier le rôle des interactions élastiques dans les valeurs de forces de puits, et d'identifier la contribution des propriétés des défauts ponctuels (dipôles élastiques et polarisabilités diaélastiques), en particulier de l'anisotropie des dipôles élastiques.

Pour ce faire, on réalise des simulations OKMC, qui prennent naturellement en compte les corrélations, et permettent de simuler la diffusion des défauts ponctuels en prenant en compte les interactions. Pour identifier les différentes contributions des interactions et dipôles élastiques des défauts ponctuels, différentes séries de simulations sont construites : un premier cas, ne prenant pas en compte les interactions élastiques, puis des séries les prenant en compte avec différents niveaux de précision pour la description des dipôles élastiques des défauts ponctuels. Ceci permet de déterminer l'influence des différents termes des dipôles sur les forces de puits. Cette méthode est présentée dans la section 3.2.

On présente ensuite les résultats des études consacrées à la dislocation droite (section 3.3), à la cavité sphérique¹ (section 3.4) et à la boucle de dislocation (section 3.5). Le rôle des interactions élastiques est mis en évidence, et l'influence de l'anisotropie au point col des défauts ponctuels sur les valeurs de force de puits est plus particulièrement étudiée. Le rôle de cette anisotropie est étudié en le reliant les trajectoires des défauts qui migrent vers les puits.

Les effets des polarisabilités diaélastiques des défauts ponctuels sont ensuite plus brièvement investigués dans la section 3.6.

3.2 Méthodes

3.2.1 Simulations OKMC et calcul des forces de puits

Comme indiqué dans le chapitre 2, les forces de puits sont calculées en utilisant un code OKMC [61], qui permet de simuler les trajectoires des défauts ponctuels en prenant en compte leurs propriétés et les interactions élastiques [61, 64, 65]. Les corrélations spatiales sont quant à elles naturellement prises en compte. Un seul type de puits est introduit dans la boîte de simulation. Il peut s'agir d'une dislocation droite, d'une cavité ou d'une boucle de dislocation. Les puits sont immobiles et restent inchangés après l'absorption d'un défaut ponctuel. La température est fixée à 300 K. A cette température, la concentration d'équilibre thermique de défauts ponctuels est très inférieure à la concentration due à l'irradiation. Cette concentration d'équilibre est donc négligée.

1. Les résultats concernant la dislocation droite et la cavité sphérique ont été publiés (D. Carpentier *et al.* *Acta Mater.* **136** (2017) 323-334 [146]).

Les interstitiels et les lacunes sont considérés séparément, dans des simulations dédiées. Les recombinaisons entre défauts ponctuels sont donc impossibles. Les défauts sont générés avec un taux de création G uniforme et constant, ici exprimé en s^{-1} .

Les défauts sont créés dans une position aléatoire dans la boîte de simulation et migrent ensuite dans la boîte de simulation par des sauts atomiques. Le réseau cristallin est donc géré de façon indépendante pour chaque défaut ponctuel. En effet, considérer un unique réseau parfait en présence d'une dislocation ou d'une boucle n'aurait pas vraiment de sens, le réseau étant perturbé au voisinage de ces puits. Ce mode de migration sans réseau unique permet d'être plus représentatif de ce qui est calculé dans une approche continue. Dans ce type d'approche, on résout l'équation de la diffusion, et les effets de réseau ne sont pas pris en compte. Cela nous permettra donc une comparaison plus fiable aux approches analytiques et EF.

Les défauts migrent jusqu'à être absorbés par le puits, ils ne réagissent pas entre eux pour former des amas et il n'y a pas d'interactions à longue portée entre les défauts ponctuels. La migration d'un défaut ponctuel n'est donc pas impactée par la présence d'autres défauts dans son environnement. On utilise des conditions aux limites périodiques dans les 3 dimensions de l'espace. Un défaut ponctuel est considéré comme absorbé par le puits s'il franchit la surface définissant le puits $\delta\Omega_{\text{in}}$.

Le code OKMC utilisé repose sur un algorithme à temps de résidence pour faire évoluer le temps de simulation (voir chapitre 2). Les événements possibles sont la création de défauts ponctuels par l'irradiation, avec une fréquence G , ou un saut atomique d'une position donnée vers une position de premier voisin. Les fréquences de saut sont données par

$$\Gamma_i = \nu_0 \exp\left(-\frac{E_i^m}{k_B T}\right) \quad (3.1)$$

pour un saut i , où ν_0 est la fréquence d'attaque, supposée identique pour tous les sauts, k_B est la constante de Boltzmann et T la température. E_i^m est la différence d'énergie entre le point stable et le point col du saut, donnée par (eq. (1.20)) :

$$E_i^m = E_0^m - E_i^{\text{sta}} + E_i^{\text{col}}, \quad (3.2)$$

où E_0^m est l'énergie de migration.

Les énergies d'interaction au point stable E_i^{sta} et au point col E_i^{col} sont exprimées par (eq. (1.17)) :

$$E_i^{\text{sta}} = E^{\text{sta}}(\mathbf{r}_i^{\text{sta}}) = -P_{i,jk}^{\text{sta}} \varepsilon_{jk}(\mathbf{r}_i^{\text{sta}}) \quad (3.3)$$

$$E_i^{\text{col}} = E_{\mathbf{h}_i}^{\text{col}}(\mathbf{r}_i^{\text{col}}) = -P_{i,jk}^{\text{col}} \varepsilon_{jk}(\mathbf{r}_i^{\text{sta}} + \mathbf{h}_i/2), \quad (3.4)$$

où la sommation sur les indices j et k est implicite. P_i^{sta} et P_i^{col} sont les dipôles élastiques décrivant le défaut au point stable et au point col pour le saut i , respectivement. On a ici considéré que le point col se situe à mi-distance du saut [64], dont le vecteur est \mathbf{h}_i , c'est-à-dire que $\mathbf{r}_i^{\text{col}} = \mathbf{r}_i^{\text{sta}} + \mathbf{h}_i/2$. Le champ de déformation ε est généré par le puits. Dans un premier temps, nous considérons que les dipôles ne dépendent pas de la déformation locale, c'est-à-dire que les effets de polarisabilité ne sont pas considérés. Ceux-ci seront

CHAPITRE 3 – ÉTUDE DE L'INFLUENCE DES INTERACTIONS ÉLASTIQUES ET DES DIPÔLES ÉLASTIQUES SUR LES FORCES DE PUIITS

étudiés dans la section 3.6. Les autres termes intervenant dans l'énergie tel que les termes d'ordre supérieur dans le développement multipolaire [26] ou les interactions images pour les cavités [147, 148], sont également négligés.

Dans les simulations, sauf indication contraire, les calculs sont réalisés en élasticité isotrope, en utilisant les expressions analytiques existantes pour les champs de déformation. Dans le cas de l'aluminium pur traité dans cette thèse, on peut s'attendre à ce que cette hypothèse soit correcte, car le tenseur des constantes élastiques \mathbf{C} n'est que faiblement anisotrope (voir le tableau 3.1). De cette façon, il est possible de se focaliser uniquement sur l'influence de l'anisotropie des défauts ponctuels. Cependant, nous vérifierons que l'influence de l'anisotropie du tenseur des constantes élastiques est bien faible en réalisant des simulations en élasticité anisotrope. Pour cela, nous utilisons une méthode basée sur la FFT, en utilisant une solution analytique de l'équilibre élastique dans l'espace de Fourier, comme indiqué au chapitre 2.

Termes du tenseur des constantes élastiques [149]	Facteur d'anisotropie de Zener $A = 2C_{44}/(C_{11} - C_{12})$
$C_{11} = 106.51$ GPa $C_{12} = 60.38$ GPa $C_{44} = 27.8$ GPa	$A = 1.21$
Constantes pour l'élasticité isotrope	
Coefficient de Poisson	$\nu = 0.35$
Module de cisaillement	$\mu = 25.91$ GPa

TABLEAU 3.1 – Constantes élastiques pour l'aluminium à 300 K. Les constantes élastiques isotropes sont calculées à partir des termes du tenseur des constantes élastiques par moyenne de Voigt [115].

Notre étude vise à déterminer les forces de puits des objets placés dans la boîte de simulation. L'équation en champ moyen équivalente pour décrire l'évolution du nombre moyen de défauts ponctuels \bar{N} dans la boîte est :

$$\frac{d\bar{N}}{dt} = G - k^2 D \bar{N}, \quad (3.5)$$

où D est le coefficient de diffusion du défaut ponctuel considéré, qui s'écrit

$$D = K a_0^2 \nu_0 \exp\left(-\frac{E^m}{k_B T}\right). \quad (3.6)$$

Dans cette équation, $K = \frac{2}{3}$ pour les interstitiels (haltère $\langle 100 \rangle$) et $K = 1$ pour les lacunes, et a_0 est le paramètre de maille du réseau CFC de l'aluminium, pour lequel on utilise la valeur $a_0 = 0.40496$ nm [145], comme indiqué dans la sous-section 2.4.4.

Le second terme du membre de droite de l'équation (3.5) exprime l'absorption des défauts ponctuels par les puits. Quand le régime permanent est atteint ($\frac{d\bar{N}}{dt} = 0$), la

force de puits est donnée par l'équation

$$k^2 = \frac{G}{D\bar{N}}. \quad (3.7)$$

Le calcul de la force de puits en OKMC correspond donc à une approche de Wiedersich : les conditions aux limites périodiques sur la surface extérieure $\delta\Omega_{\text{out}}$ sont équivalentes à un flux nul (en l'absence d'interactions élastiques, pour une géométrie de « haute symétrie », c'est-à-dire avec un puits au centre de la boîte par exemple), et l'absorption donne une concentration nulle sur la surface intérieure $\delta\Omega_{\text{in}}$.

On peut calculer les valeurs des forces de puits pour les interstitiels (k_i^2) et pour les lacunes (k_v^2). On en déduit ensuite la valeur du biais, exprimé par

$$B = \frac{k_i^2 - k_v^2}{k_i^2}. \quad (3.8)$$

Défini de cette façon, ce paramètre indique si le puits présente une absorption préférentielle pour les interstitiels, ce qui est le cas si $B > 0$.

Dans les simulations OKMC, le nombre de défauts ponctuels présents dans la boîte est relevé tous les 10^4 pas de simulation. À la fin de la simulation, le nombre moyen de défauts ponctuels en régime permanent est obtenu en moyennant les valeurs relevées (en excluant le régime transitoire). Les forces de puits et le biais sont ensuite calculés en utilisant les équations (3.7) et (3.8). Le temps de simulation est fixé pour obtenir une précision suffisante sur la valeur de \bar{N} , et donc sur k^2 . Pour déterminer l'erreur statistique sur les valeurs de forces de puits, une méthode de moyenne par blocs est utilisée [150]. Elle permet de déterminer une estimation de l'erreur σ sur les valeurs de forces de puits en prenant en compte le fait que les relevés effectués tous les 10^4 pas de temps peuvent être corrélés si les boîtes de simulations sont très grandes. Le détail de cette méthode est présenté en annexe A. Dans la suite de ce chapitre, les barres d'erreur indiquées sur les résultats correspondent à $\pm 3\sigma$.

3.2.2 Calcul des dipôles élastiques des défauts ponctuels

Pour calculer les interactions entre les puits et les défauts ponctuels, nous avons besoin des dipôles élastiques des défauts ponctuels au point stable \mathbf{P}^{sta} et au point col \mathbf{P}^{col} . Les valeurs des dipôles élastiques des interstitiels et lacunes dans l'aluminium sont déterminés par des calculs DFT. Comme indiqué au chapitre 2, les calculs sont réalisés en utilisant le code VASP, dans le cadre de l'approximation PAW [76–79], les boîtes de simulation DFT contiennent 256 ± 1 atomes, et l'énergie d'échange-corrélation est évaluée en utilisant l'approximation GGA-PBE [69]. L'énergie de coupure pour les ondes planes est fixée à 450 eV et l'élargissement, de type Hermite-Gauss, est de 0.2 eV. Les calculs sont réalisés en incluant les états de semi-cœur s [Ne]3s²3p¹. La grille de points k est une grille $3 \times 3 \times 3$ décalée. Les configurations sont relaxées en utilisant la technique du gradient conjugué. Les points col sont localisés en utilisant la méthode NEB avec "climbing image" [82]. Dans les configurations relaxées, au point stable ou au point

col, les forces sur chaque atome sont inférieures à $0.001 \text{ eV}/\text{\AA}$. Avec ces paramètres, on estime que l'erreur relative sur l'énergie et les termes des dipôles élastiques est inférieure à 0.5% et 0.4% respectivement, pour les valeurs les moins convergées [61], en comparant à des valeurs convergées en potentiels semi-empiriques. Plus tard dans la thèse, pour déterminer les valeurs des polarisabilités, il a été nécessaire de pousser la convergence et d'augmenter le nombre de points k . Les valeurs de dipôles obtenues ont alors été modifiées de façon conséquente. Ce point est discuté dans la section 3.6, nous utilisons dans ce manuscrit les valeurs de dipôles obtenus avec les paramètres cités ci-dessus.

Pour les configurations des défauts ponctuels dans le réseau CFC, illustrées sur la figure 1.6, les valeurs suivantes sont obtenues :

1. Pour les interstitiels, énergie de migration de $E_0^m = 0.105 \text{ eV}$, et
 - au point stable, pour un haltère orienté selon $[100]$:

$$\mathbf{P}_{i,\text{ref}}^{\text{sta}} = \begin{bmatrix} 19.652 & 0 & 0 \\ 0 & 18.518 & 0 \\ 0 & 0 & 18.518 \end{bmatrix} \text{ eV} \quad (3.9)$$

- au point col, pour une migration de l'orientation $[100]$ vers l'orientation $[010]$:

$$\mathbf{P}_{i,\text{ref}}^{\text{col}} = \begin{bmatrix} 19.498 & 1.133 & 0 \\ 1.133 & 19.498 & 0 \\ 0 & 0 & 19.034 \end{bmatrix} \text{ eV} \quad (3.10)$$

2. Pour les lacunes, énergie de migration de $E_0^m = 0.605 \text{ eV}$ et
 - au point stable :

$$\mathbf{P}_{v,\text{ref}}^{\text{sta}} = \begin{bmatrix} -3.238 & 0 & 0 \\ 0 & -3.238 & 0 \\ 0 & 0 & -3.238 \end{bmatrix} \text{ eV} \quad (3.11)$$

- au point col, pour une migration selon la direction $[110]$:

$$\mathbf{P}_{v,\text{ref}}^{\text{col}} = \begin{bmatrix} -2.866 & -0.080 & 0 \\ -0.080 & -2.866 & 0 \\ 0 & 0 & 1.000 \end{bmatrix} \text{ eV} \quad (3.12)$$

Ces valeurs montrent que les interstitiels sont faiblement anisotropes au point stable et au point col, tandis que les lacunes sont parfaitement isotropes au point stable et très anisotropes au point col. L'anisotropie des interstitiels au point stable est en excellent accord avec les valeurs expérimentales $|P_{11} - P_{22}| = 1.1(3) \text{ eV}$ [31]. Les volumes de relaxation au point stable et au point col, calculés par l'équation (1.13), semblent légèrement surestimés : ils sont de -0.4Ω pour les lacunes et de 2.35Ω pour les interstitiels (avec Ω le volume atomique), tandis que les valeurs expérimentales se situent entre -0.05Ω et -0.38Ω pour les lacunes et sont égales à $1.9 \pm 0.4\Omega$ pour les interstitiels [27, 151].

3.2.3 Mise en évidence de l'influence des interactions élastiques et des dipôles

Pour identifier les propriétés des défauts ponctuels qui ont une influence importante sur les valeurs de forces de puits, plusieurs cas de simulation sont construits, reposant sur les dipôles élastiques présentés ci-dessus, ou une version simplifiée de ces derniers. Les cas sont présentés dans le tableau 3.2.

Le premier cas, nommé cas 0, pour lequel $\mathbf{P}_0^{\text{sta}} = 0$ et $\mathbf{P}_0^{\text{col}} = 0$, correspond à des simulations sans interactions élastiques. Il est utilisé pour valider la méthode utilisée dans ces travaux, en comparant les forces de puits issues des calculs OKMC aux valeurs analytiques correspondantes. En effet, pour la méthode utilisée ici (correspondant à l'approche de Wiedersich), les seules expressions analytiques existantes sont obtenues dans le cas où les interactions élastiques entre les défauts et les puits sont négligées.

L'évaluation précise de l'influence des interactions élastiques sur les valeurs de forces de puits est faite en utilisant les dipôles obtenus par les calculs DFT (cas 2, $\mathbf{P}_2^{\text{sta}} = \mathbf{P}_{\text{ref}}^{\text{sta}}$ et $\mathbf{P}_2^{\text{col}} = \mathbf{P}_{\text{ref}}^{\text{col}}$).

Les approximations suivantes, 2' et 2'', sont utilisées pour identifier les propriétés des défauts ponctuels qui influencent les forces de puits. Le cas 2' correspond à des défauts ponctuels isotropes au point col de même volume de relaxation que dans le cas 2 :

$$\mathbf{P}_{2'}^{\text{sta}} = \mathbf{P}_{\text{ref}}^{\text{sta}} \quad (3.13)$$

$$\mathbf{P}_{2'}^{\text{col}} = \frac{1}{3} \text{Tr} \left(\mathbf{P}_{\text{ref}}^{\text{col}} \right) \mathbf{I}, \quad (3.14)$$

où \mathbf{I} est le tenseur identité. Cette approximation permet de mettre en évidence le rôle de l'anisotropie au point col des défauts ponctuels en comparant les forces de puits obtenues dans ce cas à celles obtenues dans le cas 2. Pour le cas 2'', une approximation supplémentaire est réalisée : le dipôle élastique est rendu isotrope au point stable, en conservant le volume de relaxation du cas dipôle de référence :

$$\mathbf{P}_{2''}^{\text{sta}} = \frac{1}{3} \text{Tr} \left(\mathbf{P}_{\text{ref}}^{\text{sta}} \right) \mathbf{I} \quad (3.15)$$

$$\mathbf{P}_{2''}^{\text{col}} = \frac{1}{3} \text{Tr} \left(\mathbf{P}_{\text{ref}}^{\text{col}} \right) \mathbf{I}. \quad (3.16)$$

De cette façon, en comparant les résultats du cas 2' à ceux du cas 2'', on peut évaluer l'influence de l'anisotropie au point stable.

Enfin, une approximation habituelle pour le calcul des forces de puits (voir chapitre 1) est de négliger les différences entre les propriétés du défaut ponctuel au point stable et au point col. Les propriétés du défaut ponctuel ne sont alors données que par le volume de relaxation au point stable [35,36,152–154]. On nommera ce cas « inclusions sphériques », en référence aux premiers traitements des défauts ponctuels qui reposaient sur ce type d'approximation [27, 155]. Ceci équivaut à utiliser le dipôle élastique suivant :

$$\mathbf{P}_1^{\text{sta}} = \mathbf{P}_1^{\text{col}} = \frac{1}{3} \text{Tr} \left(\mathbf{P}_{\text{ref}}^{\text{sta}} \right) \mathbf{I} \quad (3.17)$$

CHAPITRE 3 – ÉTUDE DE L'INFLUENCE DES INTERACTIONS ÉLASTIQUES ET DES DIPÔLES ÉLASTIQUES SUR LES FORCES DE PUIITS

		Interstitial	Lacune
Cas 0	Défauts sans interactions	$\mathbf{P}_i^{\text{sta}} = \mathbf{0}$ $\mathbf{P}_i^{\text{col}} = \mathbf{0}$	$\mathbf{P}_v^{\text{sta}} = \mathbf{0}$ $\mathbf{P}_v^{\text{col}} = \mathbf{0}$
Cas 1	Inclusions sphériques	$\mathbf{P}_i^{\text{sta}} = 18.896 \mathbf{I}$ $\mathbf{P}_i^{\text{col}} = 18.896 \mathbf{I}$	$\mathbf{P}_v^{\text{sta}} = -3.238 \mathbf{I}$ $\mathbf{P}_v^{\text{col}} = -3.238 \mathbf{I}$
Cas 2	Défauts réels	$\mathbf{P}_i^{\text{sta}} = \begin{bmatrix} 19.652 & 0 & 0 \\ 0 & 18.518 & 0 \\ 0 & 0 & 18.518 \end{bmatrix}$ $\mathbf{P}_i^{\text{col}} = \begin{bmatrix} 19.498 & 1.133 & 0 \\ 1.133 & 19.498 & 0 \\ 0 & 0 & 19.034 \end{bmatrix}$	$\mathbf{P}_v^{\text{sta}} = -3.238 \mathbf{I}$ $\mathbf{P}_v^{\text{col}} = \begin{bmatrix} -2.866 & -0.080 & 0 \\ -0.080 & -2.866 & 0 \\ 0 & 0 & 1.000 \end{bmatrix}$
Cas 2'	Défauts simplifiés au point col	$\mathbf{P}_i^{\text{sta}} = \begin{bmatrix} 19.652 & 0 & 0 \\ 0 & 18.518 & 0 \\ 0 & 0 & 18.518 \end{bmatrix}$ $\mathbf{P}_i^{\text{col}} = 19.343 \mathbf{I}$	$\mathbf{P}_v^{\text{sta}} = -3.238 \mathbf{I}$ $\mathbf{P}_v^{\text{col}} = -1.577 \mathbf{I}$
Cas 2''	Défauts simplifiés au point stable et au point col	$\mathbf{P}_i^{\text{col}} = 18.896 \mathbf{I}$ $\mathbf{P}_i^{\text{col}} = 19.343 \mathbf{I}$	$\mathbf{P}_v^{\text{col}} = -3.238 \mathbf{I}$ $\mathbf{P}_v^{\text{col}} = -1.577 \mathbf{I}$

TABLEAU 3.2 – Dipôles élastiques pour les différents cas de simulations. Les valeurs sont exprimées en eV, pour les configurations illustrées sur la figure 1.6. Pour les lacunes, qui sont isotropes au point stable, les cas 2' et 2'' sont identiques.

3.3 Dislocation droite

3.3.1 Définition de l'étude

Pour l'étude de la force de puits de la dislocation droite, la boîte de simulation contient deux dislocations, chacune ayant les caractéristiques suivantes : le vecteur de ligne est de $\mathbf{l} = \frac{1}{\sqrt{6}} [\bar{1}1\bar{2}]$, le vecteur normal au plan de glissement est de $\mathbf{n} = \frac{1}{\sqrt{3}} [11\bar{1}]$ et le vecteur de Burgers est de $\mathbf{b} = \pm \frac{a_0}{2} [\bar{1}10]$ ($\|\mathbf{b}\| = \frac{a_0}{\sqrt{2}}$). Ceci correspond à une dislocation coin parfaite dans le réseau CFC de l'aluminium. Le rayon de capture de la dislocation droite est fixé à $r_c = 2b$ [54, 156].

Les deux dislocations coin de vecteurs de Burgers opposés sont introduites dans une boîte de simulation orthorhombique, conformément à la configuration illustrée sur la figure 3.1. De ce fait, la densité de dislocations ne dépend que des dimensions de la boîte de simulation selon $\rho = 2/l_x l_y$, et différentes densités de dislocations peuvent être étudiées en faisant varier ces dimensions (en conservant les rapports de distances). Le réseau cristallin est tourné pour faire en sorte que le vecteur de ligne de la dislocation soit aligné selon la direction z et le vecteur de Burgers aligné selon la direction x . Avec cette configuration et en imposant des conditions aux limites périodiques, on s'assure que le champ de déformation est nul aux bords de la boîte de simulation. D'autres configurations auraient pu être étudiées, quelques unes ont été testées. Le choix de la configuration ne modifie pas la méthode décrite ci-dessus ni la généralité des résultats présentés.

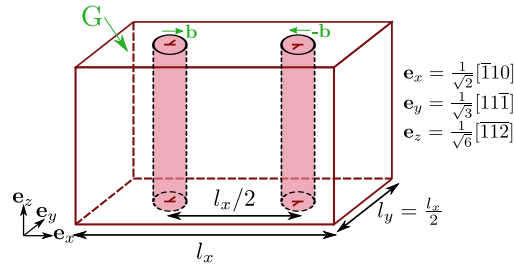


FIGURE 3.1 – Configuration de la boîte de simulation contenant deux dislocations coin de vecteurs de Burgers opposés.

Comme illustré sur la figure 3.2, à cause des conditions aux limites périodiques, la configuration étudiée est équivalente à un réseau 2D de dislocations dans le plan xy . Pour calculer le champ de déformation élastique, on somme selon la direction x les champs de déformation générés par des colonnes infinies selon y de dislocations ayant des vecteurs de Burgers de signes alternés, notés ε^+ pour $\mathbf{e}_x \cdot \mathbf{b} > 0$ et ε^- pour $\mathbf{e}_x \cdot \mathbf{b} < 0$. Les champs de déformation des colonnes infinies selon y sont donnés dans les références [157] et [115]. Le champ de déformation complet est ensuite calculé en sommant les contributions des boîtes voisines :

$$\varepsilon(x, y) = \sum_{k=-N}^N \left(\varepsilon^+(x + kl_x, y) + \varepsilon^-(x + kl_x, y) \right), \quad (3.18)$$

en utilisant un nombre N suffisamment grand pour obtenir la convergence de cette valeur. Dans ce travail, nous avons utilisé $N = 1$ pour obtenir une erreur relative sur la déformation inférieure à 10^{-3} .

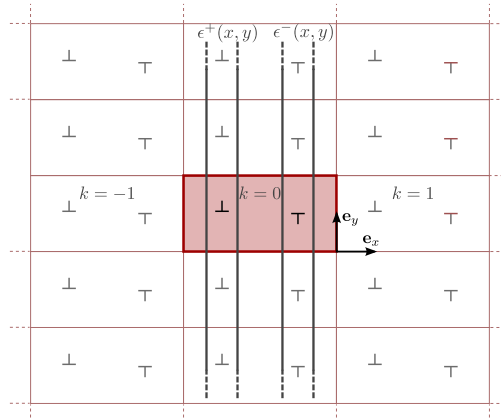


FIGURE 3.2 – Représentation schématique du calcul du champ de déformation avec les conditions aux limites périodiques. Les champs ε^+ et ε^- sont générés par les colonnes associées aux dislocations coins de vecteurs de Burgers \mathbf{b} tels que $\mathbf{e}_x \cdot \mathbf{b} > 0$ et $\mathbf{e}_x \cdot \mathbf{b} < 0$ respectivement.

3.3.2 Force de puits et biais

Les valeurs de l'efficacité d'absorption $Z = k^2/\rho$ et du biais pour des densités de dislocations allant de $5 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-2}$ à 10^{16} m^{-2} , comprenant les densités de dislocations généralement obtenues dans les matériaux irradiés [158], sont présentées sur la figure 3.3.

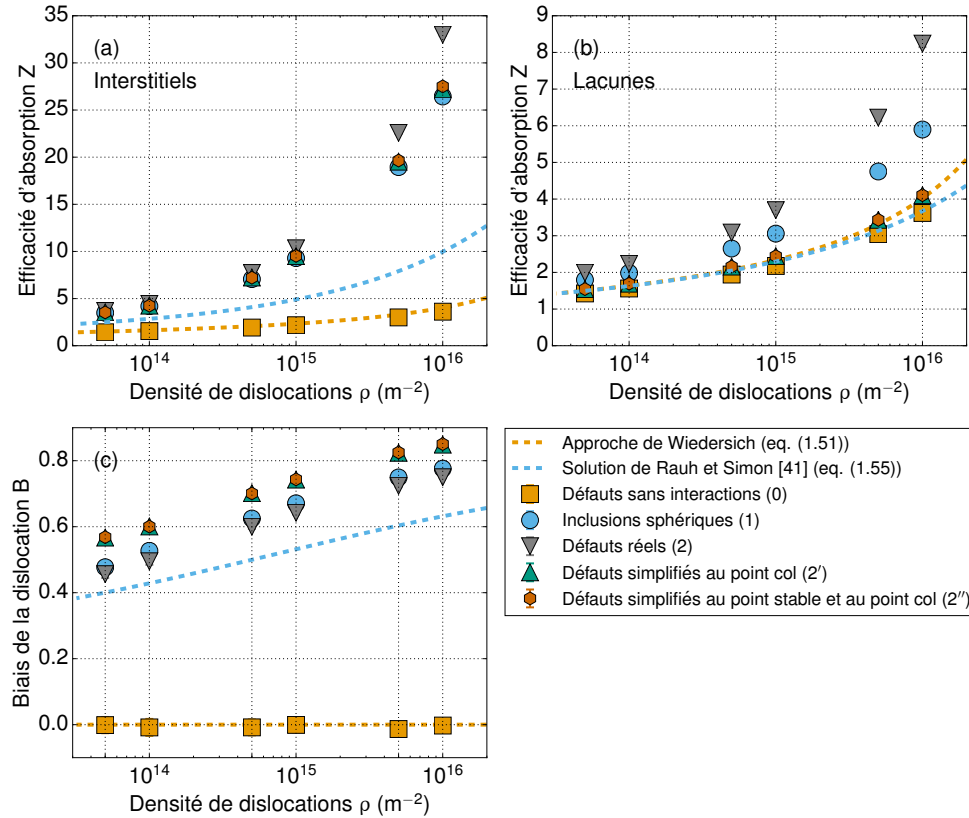


FIGURE 3.3 – Efficacité d'absorption $Z = k^2/\rho$ pour la dislocation droite pour (a) les interstitiels et (b) les lacunes, et (c) biais. Les barres d'erreur sont indiquées pour toutes les valeurs, certaines sont trop petites pour être visibles.

La validité de notre approche est démontrée par le bon accord obtenu entre les valeurs de forces de puits calculées dans le cas des défauts sans interactions élastiques (cas 0 – symboles carrés jaunes) et la solution analytique. Pour cette dernière, nous considérons l'approche de Wiedersich (eq. (1.51)), pour laquelle les conditions aux limites et la méthode de détermination de la force de puits coïncident avec celles de la simulation. Une faible différence est observée entre la courbe analytique et les résultats des simulations. Nous avons vérifié que celle-ci est due à la différence de conditions aux limites en $r = r_c$. En effet, dans le cas du traitement analytique, la concentration est supposée nulle exactement en $r = r_c$, tandis que dans les simulations OKMC, les défauts ne sont considérés comme absorbés qu'après le dernier saut qui entre dans la zone de capture

du puits, c'est-à-dire pour $r \leq r_c$. Ainsi, la concentration est nulle pour une valeur de $r \leq r_c$. Comme proposé par plusieurs auteurs [60, 62, 159], les deux approches peuvent être rendues cohérentes en utilisant un rayon de capture effectif \tilde{r}_c , légèrement inférieur à r_c , dans la formule analytique (1.51) pour reproduire la configuration OKMC. Nous avons vérifié (voir annexe B) que la valeur proposée par H. Rouchette [159] de $\tilde{r}_c = r_c - \frac{a_0}{4}$ permet d'avoir un bon accord entre la formulation analytique et les résultats OKMC. Il faut aussi noter que l'expression (1.51) est obtenue pour une dislocation droite immergée dans un milieu cylindrique, tandis que la boîte de simulation est ici orthorhombique. Ceci a été identifié par L. Thuinet *et al.* [58] comme la cause de la différence entre la simulation et la valeur analytique. Nous avons effectué des calculs EF pour étudier l'influence de la géométrie de boîte. Ils sont présentés en annexe B. Nos résultats n'ont pas permis de mettre en évidence un effet de la géométrie sur les valeurs des forces de puits.

Quand les dipôles élastiques complets sont utilisés (cas 2 – défauts réels, triangles inversés gris), les forces de puits pour les lacunes sont deux fois plus élevées que celles obtenues dans le cas sans interactions élastiques, pour la densité de dislocations la plus élevée. L'augmentation est encore plus importante pour les interstitiels que pour les lacunes, et cette différence augmente avec la densité de dislocations. En conséquence, le biais est fortement positif et augmente avec la densité de dislocations.

Pour identifier les propriétés des défauts ponctuels qui sont responsables de la variation des forces de puits, les dipôles élastiques sont modifiés. En retirant l'anisotropie des dipôles au point col (cas 2'), les forces de puits sont réduites pour les deux types de défauts ponctuels. Cette diminution est particulièrement importante pour les lacunes, qui sont très anisotropes au point col. Ceci montre que l'anisotropie au point col est responsable d'une variation significative des forces de puits, par la diminution des barrières de migration proches de la dislocation.

L'influence de l'anisotropie au point stable est mise en lumière en comparant les résultats obtenus pour ce dernier cas 2' à ceux obtenus pour le cas 2'' (défauts simplifiés au point stable et au point col). En retirant l'anisotropie au point stable, aucune modification des valeurs de forces de puits notable n'est observée, et ainsi le biais reste inchangé. Ceci montre que l'anisotropie au point stable n'a pas d'influence sur les forces de puits et le biais des dislocations dans l'aluminium. Ceci est dû au fait que, dans ce matériau, les dipôles au point stable ne sont que très peu anisotropes pour les interstitiels et sont parfaitement isotropes pour les lacunes.

Sur la figure 3.3, on représente aussi les forces de puits obtenues dans le cas où les défauts ponctuels ont les mêmes propriétés au point stable et au point col, basées sur le volume de relaxation au point stable (cas 1, disques bleus). Les forces de puits diffèrent bien des valeurs obtenues dans le cas 2. Pour les interstitiels, les forces de puits sont très proches de celles obtenues pour les cas 2' et 2'', du fait que les volumes de relaxation au point stable et au point col sont assez proches : pour le cas 1, on a $\frac{1}{3} \text{Tr}(\mathbf{P}_i^{\text{col}}) = 18.896$ eV et pour les cas 2' et 2'', $\frac{1}{3} \text{Tr}(\mathbf{P}_i^{\text{col}}) = 19.343$ eV. À l'inverse, pour les lacunes, les volumes de relaxation au point col varient fortement entre le cas 1 et les cas 2' et 2'' : pour le cas 1, $\frac{1}{3} \text{Tr}(\mathbf{P}_v^{\text{col}}) = -3.238$ eV tandis que pour les cas 2' et 2'', $\frac{1}{3} \text{Tr}(\mathbf{P}_v^{\text{col}}) = -1.577$ eV. Les interactions sont donc plus fortes pour les lacunes dans le cas 1 que dans les cas 2' et 2'',

donnant une force de puits plus élevée. La valeur du biais de la dislocation est proche de celle obtenue en utilisant les dipôles élastiques complets (cas 2), mais il s'agit seulement d'une coïncidence. Ce cas 1 correspond à une approximation régulièrement faite sur les dipôles élastiques pour effectuer des traitements analytiques, comme nous l'avons vu au chapitre 1, mais ceux-ci sont effectués avec des conditions aux limites différentes. Sur la figure 3.3, on représente la solution proposée par H. Rauh et D. Simon [41] (eq. (1.55)), qui est une approche de type Laplace (1.41). Cette formule donne un accord qualitatif avec les valeurs obtenues dans le cas 1, dans la mesure où l'on retrouve une augmentation des forces de puits et du biais avec la densité de dislocations. Les valeurs de forces de puits sont cependant sous-estimées pour les deux types de défauts, et le biais est également inférieur à celui obtenu en OKMC dans le cas 1. Ceci est notamment dû au fait que le modèle analytique de H. Rauh et D. Simon suppose la présence d'une seule dislocation, alors qu'en OKMC, deux dislocations sont présentes. Les champs élastiques associés se superposent et contribuent à l'augmentation des forces de puits en OKMC, surtout aux fortes densités. De plus, l'écart obtenu est lié à la différence entre les conditions aux limites utilisées en OKMC (correspondant à l'approche de Wiedersich) et celles utilisées dans le traitement analytique (approche de Laplace), comme on le montre dans l'annexe C par des calculs EF.

Ces résultats montrent qu'il y a un fort effet des interactions élastiques, et permettent plus particulièrement d'identifier l'anisotropie au point col des défauts ponctuels comme un paramètre clef dans le calcul des forces de puits et du biais.

3.3.3 Analyse et discussion

Dans le paragraphe précédent, nous avons établi que la diminution de la barrière de migration vers la dislocation, due à l'anisotropie au point col, mène à l'augmentation des valeurs de forces de puits, en particulier pour la lacune. Ces résultats numériques sont à comparer avec les calculs analytiques de la littérature. Des calculs ont été faits dans le cuivre, mais les défauts ponctuels ayant des propriétés similaires dans le cuivre et l'aluminium, on peut s'attendre à des résultats similaires. La première estimation de l'effet de l'anisotropie au point col a été faite par B. C. Skinner et C. H. Woo [21]. Afin de pouvoir mener à terme les calculs analytiques, ces auteurs ont approximé le problème en vue de le résoudre dans une géométrie à symétrie cylindrique, et ont supposé que le coefficient de diffusion ne dépend que d'une composante du dipôle élastique. La conclusion de leur étude est que l'effet de l'anisotropie au point col est faible et génère une faible augmentation des forces de puits pour les interstitiels et lacunes. Par un choix arbitraire de l'anisotropie au point col et du tenseur de diffusion, I.-W. Chen montre que les effets de l'anisotropie peuvent être décrits par un volume de relaxation effectif [160]. L'augmentation du volume de relaxation due à l'anisotropie au point col est suffisante pour avoir un fort effet sur les forces de puits. V. A. Borodin et A. I. Ryazanov n'ont pas adopté les mêmes hypothèses que B. C. Skinner et C. H. Woo [161] et ont obtenu une diminution de quelques pourcents de la force de puits pour les interstitiels, et une augmentation d'environ 20% pour les lacunes. Plus récemment, A. B. Sivak et P. A. Sivak [66] ont montré par des calculs OKMC que l'anisotropie des lacunes au point col

est responsable de variations complexes des forces de puits avec le type de dislocation. Pour notre étude, en prenant en compte exactement les interactions élastiques entre la dislocation et le défaut ponctuel au point col, nous montrons qu'une augmentation de force de puits d'environ 20% pour les interstitiels et 100 % pour les lacunes peut être obtenue par rapport au cas de défauts isotropes.

Nous avons également montré que l'anisotropie des interstitiels au point stable ne modifie pas la valeur du biais de la dislocation. Plusieurs auteurs ont montré que si la concentration est imposée sur la surface extérieure du milieu (approche de Laplace), les flux, et donc les forces de puits, ne dépendent pas de l'énergie au point stable [21,33,161]. Ainsi, dans ce cas, aucun effet de l'anisotropie du défaut n'est attendu. Dans le cas présent, la situation est différente, puisque c'est le taux de création de défauts ponctuels dans la boîte de simulation qui est imposé, et la force de puits est mesurée à partir de la concentration de défauts ponctuels dans la boîte de simulation (eq. (3.7)). La concentration dépend de l'énergie au point stable, et ainsi la force de puits peut dépendre de l'anisotropie des défauts au point stable [24]. Cependant, l'anisotropie au point stable des interstitiels est très faible et la différence d'énergie entre les cas isotrope et anisotrope est négligeable, donc aucun effet n'est visible sur les forces de puits.

Pour mieux comprendre l'influence de l'anisotropie au point col, les chemins de migration des défauts ponctuels vers les dislocations sont extraits des simulations OKMC. Les flux de défauts ponctuels sont enregistrés au travers de surfaces définies par une grille dans la boîte de simulations, durant la simulation OKMC. À partir de ces données, on obtient les chemins de migration moyens pour chaque position, les résultats sont représentés sur la figure 3.4.

Les résultats obtenus pour des défauts isotropes au point col (cas 2') sont représentés sur les figures 3.4 (a)–(b). Comme l'on pouvait s'y attendre les interstitiels migrent et atteignent les dislocations par les zones en tension, et sont repoussés des zones en compression. À l'inverse, les lacunes migrent principalement par les côtés en compression. La différence est moins nette que pour les interstitiels, à cause de la plus faible intensité des interactions élastiques.

Quand l'anisotropie au point col est prise en compte (cas 2), on obtient les flux représentés sur les figures 3.4 (c)–(d). Ces figures montrent que le point col n'a pas seulement une influence sur les forces de puits, mais aussi sur les trajectoires des défauts ponctuels. Les lacunes migrent maintenant vers les dislocations et y entrent selon la direction du vecteur de Burgers ($\pm e_x$). La différence n'est pas visible pour les interstitiels, comme l'importance relative de la partie déviatorique de leurs dipôles élastiques est plus faible que pour les lacunes.

Dans le cas des lacunes, la présence de l'anisotropie au point col donne aussi naissance à des composantes de flux non nulles dans la direction de la ligne de dislocation. Notons, cependant, que par symétrie, le flux total moyenné dans le plan xy est nul dans cette direction z . La présence de ces flux selon la ligne de dislocation peut être expliquée en utilisant l'expression du coefficient de diffusion (1.36), qui est rappelée ici :

$$D_{ij}(\mathbf{r}) = \frac{1}{2}\nu \sum_{\mathbf{h}} h_i h_j \exp\left(-\frac{E_{\mathbf{h}}^{\text{col}}(\mathbf{r}) - E^{\text{sta}}(\mathbf{r})}{k_{\text{B}}T}\right), \quad (3.19)$$

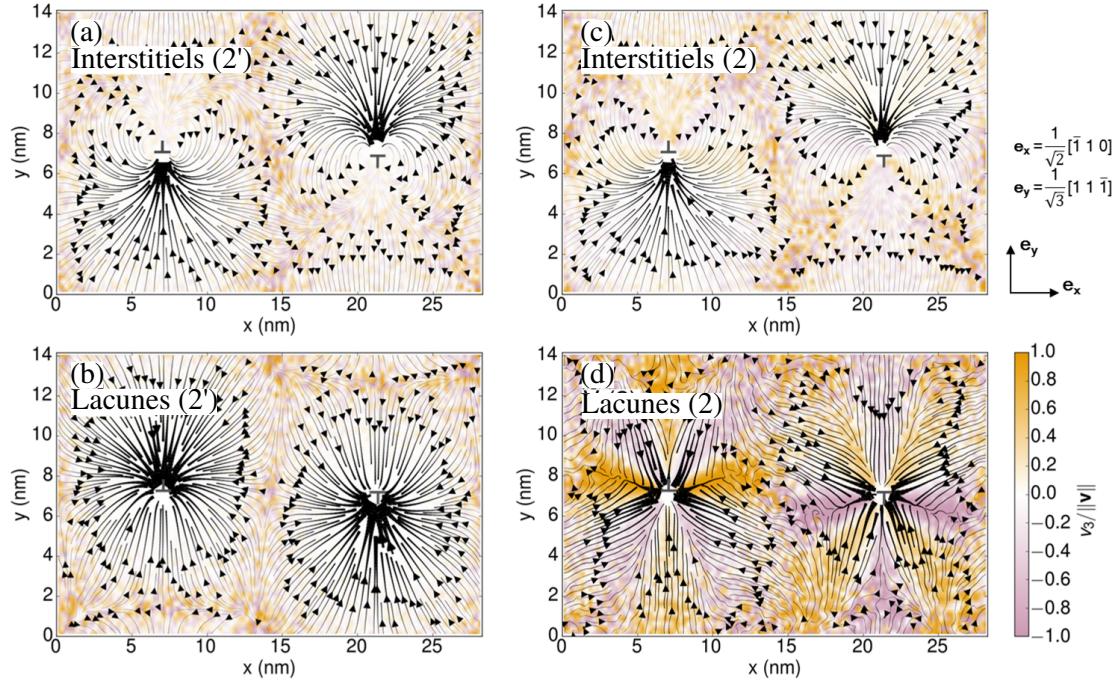


FIGURE 3.4 – Flux moyens des (a) interstitiels et (b) lacunes avec des points cols isotropes (cas 2'), et (c) interstitiels et (d) lacunes avec les dipôles élastiques complets (cas 2). Les flux $\mathbf{v} = (v_1, v_2, v_3)$ sont enregistrés au travers de surfaces définies dans la boîte de simulation. La couleur indiquée ici correspond à la composante du flux dans la direction z ($v_3/\|\mathbf{v}\|$), et les lignes représentent le flux dans le plan xy $\mathbf{v}_{xy} = (v_1, v_2)$. L'épaisseur des lignes est proportionnelle à la norme du flux $\|\mathbf{v}\| = \sqrt{v_1^2 + v_2^2 + v_3^2}$.

où les énergies d'interaction au point col et au point stable suivent les équations (3.3) et (3.4) :

$$E^{\text{sta}}(\mathbf{r}) = -P_{kl}^{\text{sta}} \varepsilon_{kl}(\mathbf{r}) \quad (3.20)$$

$$E^{\text{col}}(\mathbf{r}) = -P_{\mathbf{h},kl}^{\text{col}} \varepsilon_{kl}(\mathbf{r} + \mathbf{h}/2). \quad (3.21)$$

Dans cette équation, \mathbf{h} désigne les sauts possibles depuis une position stable \mathbf{r} vers une position voisine $\mathbf{r} + \mathbf{h}$. Ces sauts sont représentés sur la figure 3.5 (b), en utilisant le code couleur défini sur la figure 3.5 (a).

Comme indiqué dans le chapitre 1, dans le cas d'un point col isotrope, comme pour le cas 2', on a $P_{\mathbf{h},kl}^{\text{col}} = P_{kl}^{\text{col}}$. Si l'on suppose de plus que le champ de déformation varie lentement, $\varepsilon_{kl}(\mathbf{r} + \mathbf{h}/2) \approx \varepsilon_{kl}(\mathbf{r})$ et l'énergie au point col est indépendante du saut \mathbf{h} , ce qui permet d'écrire :

$$D_{ij}(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \nu \exp\left(-\frac{E^{\text{col}}(\mathbf{r}) - E^{\text{sta}}(\mathbf{r})}{k_B T}\right) \sum_{\mathbf{h}} h_i h_j. \quad (3.22)$$

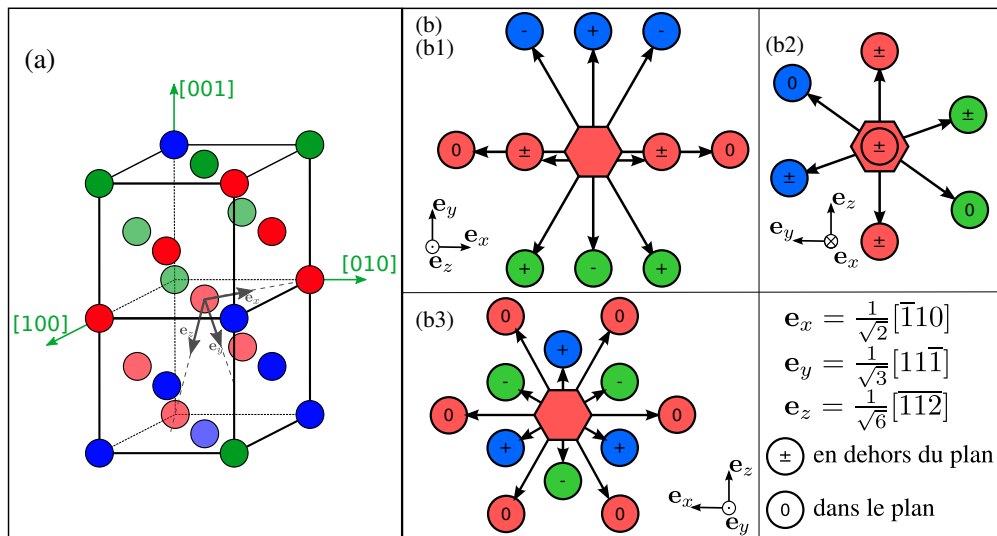


FIGURE 3.5 – (a) Mailles élémentaires conventionnelles de l'aluminium CFC, avec les axes correspondant aux directions cristallines $\langle 100 \rangle$. Les différentes couleurs (rouge, vert, bleu) indiquent les différents plans $(11\bar{1})$ du réseau. Ce code couleur est conservé dans le reste de la figure. (b) Position stable du réseau cristallin (hexagone) et ses positions premières voisines (sphères). Représentation (b1) dans le plan xy , (b2) dans le plan yz et (b3) dans le plan xz .

On vérifie de plus que

$$\sum_{\mathbf{h}} h_i h_j = 0 \quad \text{si } i \neq j, \quad (3.23)$$

et ainsi quand le point col est isotrope, le tenseur de diffusion est isotrope. Cette conclusion est toujours valable pour un champ de déformation non uniforme, si l'on effectue un développement au premier ordre en \mathbf{h} .

Au contraire dans le cas d'un dipôle élastique anisotrope, cette simplification n'est plus possible. Les termes du tenseur de diffusion dépendent alors de la somme

$$\sum_{\mathbf{h}} h_i h_j \exp\left(\frac{P_{\mathbf{h},kl}^{\text{sad}} \epsilon_{kl}(\mathbf{r} + \mathbf{h}/2)}{k_B T}\right) \approx \sum_{\mathbf{h}} h_i h_j \exp\left(\frac{P_{\mathbf{h},kl}^{\text{sad}} \epsilon_{kl}(\mathbf{r})}{k_B T}\right). \quad (3.24)$$

Comme le champ de déformation se couple de façon différente à chaque saut \mathbf{h} , la symétrie du réseau est abaissée et les sauts représentés sur la figure 3.5 (b) ne se compensent plus mutuellement. Des termes hors de la diagonale non nuls, en particulier D_{xz} et D_{yz} peuvent donc apparaître et mener à des composantes de flux selon la ligne de dislocation.

La présence de ces composantes de flux peut avoir des conséquences sur l'effet de l'application d'une contrainte extérieure sur les forces de puits d'une dislocation. Il a été établi que l'anisotropie au point col des défauts ponctuels induit une variation de la force de puits avec la contrainte appliquée, connue sous le nom de SIPA *due to anisotropic diffusion*, abrégé SIPA-AD, évoqué au chapitre 1 [21, 56, 161]. Il a été montré que ce

phénomène est supérieur de plus d'un ordre de grandeur au SIPA classique (SIPA-I), dû à la polarisabilité des défauts ponctuels [21, 162]. Pour décrire convenablement les phénomènes de fluage sous irradiation par exemple, il est important d'évaluer l'importance relative de ces deux mécanismes. Pour une contrainte uniaxiale, le SIPA-AD se traduit par une dépendance des forces de puits vis-à-vis de la direction de contrainte par rapport à la ligne de dislocation. Par simplicité, on considère la migration d'une lacune selon la direction \mathbf{e}_x dans un plan perpendiculaire à la ligne de dislocation. Le dipôle de la lacune au point col pour un saut dans la direction $[\bar{1}10]$ est :

$$\mathbf{P}^{\text{col}} = \begin{bmatrix} -2.866 & 0.08 & 0 \\ 0.080 & -2.866 & 0 \\ 0 & 0 & 1.000 \end{bmatrix} \text{ eV.} \quad (3.25)$$

Dans la base $(\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z)$ liée à la dislocation, il s'écrit :

$$\mathbf{P}'^{\text{col}} = \begin{bmatrix} -2.946 & 0 & 0 \\ 0 & -1.524 & 1.785 \\ 0 & 1.785 & -0.262 \end{bmatrix} \text{ eV.} \quad (3.26)$$

Dans le cas où une contrainte de traction $\sigma^a = E\varepsilon^a$ (où E est le module d'Young) est appliquée selon la direction de la ligne de dislocation (\mathbf{e}_z) est appliquée, l'énergie au point col s'écrit :

$$E^{\text{col}}(\varepsilon^a) = E^{\text{col}}(0) - 2.946\nu\varepsilon^a - 1.524\nu\varepsilon^a + 0.262\varepsilon^a. \quad (3.27)$$

Si la contrainte est dans le plan, par exemple selon (\mathbf{e}_x), elle devient

$$E^{\text{col}}(\varepsilon^a) = E^{\text{col}}(0) + 2.946\varepsilon^a - 1.524\nu\varepsilon^a - 0.262\nu\varepsilon^a. \quad (3.28)$$

Ainsi, il est facile de voir que si les lacunes migrent dans le plan normal à la ligne de dislocation, une contrainte de traction dans la direction de cette ligne diminue la barrière de migration et donc augmente la force de puits, tandis qu'une contrainte de traction selon la direction de saut aurait l'effet opposé. Si les lacunes ne migrent pas dans ce plan, l'effet peut être diminué. Dans les travaux concernant le SIPA-AD, l'importance de l'effet de ce phénomène a été établie en supposant des flux de défauts ponctuels perpendiculaires à la ligne de dislocation [21, 162]. Cependant, nous avons montré qu'en utilisant un modèle en trois dimensions, l'anisotropie au point col donne lieu à une migration avec une composante selon la direction de la ligne de dislocation. Il n'est donc pas simple de savoir si l'importance relative du SIPA-AD comparé au SIPA-I reste aussi importante. Un travail supplémentaire devrait être effectué pour déterminer précisément l'importance relative de ces mécanismes [100], en étudiant différentes directions et amplitudes de contrainte.

3.3.4 Importance de l'anisotropie élastique

L'anisotropie au point col des défauts ponctuels a été identifiée comme un des principaux paramètres influençant les valeurs de forces de puits en élasticité isotrope. Bien que

l'aluminium soit un matériau faiblement anisotrope élastiquement ($A = 1.21$, voir tableau 3.1), nous vérifions l'influence de l'anisotropie du tenseur des constantes élastiques sur les forces de puits.

Les résultats obtenus pour le biais de la dislocation sont représentés sur la figure 3.6. Pour celle-ci, les deux séries de résultats présentées sont obtenues avec un champ de déformation calculé en utilisant la solution analytique dans l'espace de Fourier [102–104]. En passant de l'élasticité isotrope à l'élasticité anisotrope, seule une faible variation des valeurs de biais est observée. Elle est très inférieure à la variation induite par l'anisotropie au point col. L'influence de l'anisotropie du tenseur des constantes élastiques est de ce fait beaucoup moins importante que celle de l'anisotropie au point col. En conséquence, dans l'aluminium, nous pouvons réaliser les calculs dans le cadre de l'élasticité isotrope, ce qui sera le cas pour la suite de ce manuscrit. On peut noter qu'une conclusion similaire a été obtenue dans le fer, pour lequel la variation des forces de puits est de moins de 10% quand on remplace les valeurs des constantes élastiques à 0 K ($A = 2.3$) par celles à 1000 K ($A = 4.5$) [99].

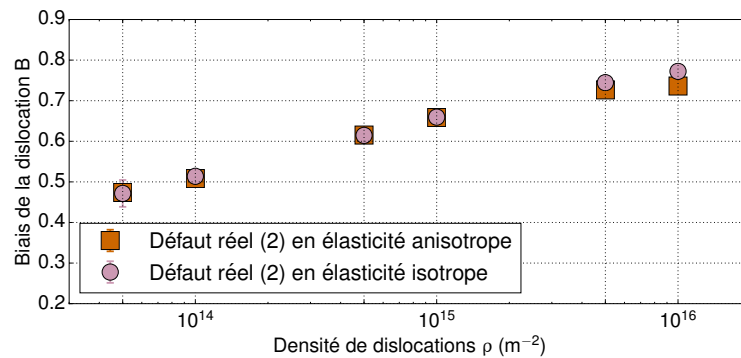


FIGURE 3.6 – Biais de la dislocation obtenu pour les défauts réels (cas 2) en élasticité isotrope et anisotrope.

3.4 Cavité sphérique

3.4.1 Définition de l'étude

Pour calculer la force de puits et le biais de la cavité, la boîte de simulation cubique de dimension l contient une unique cavité en son centre, comme illustré sur la figure 3.7. Cette cavité est une sphère de rayon r_c constant, ce qui signifie qu'un défaut est absorbé si la distance d entre le centre de la cavité et celui du défaut ponctuel vérifie $d \leq r_c + r_{\text{DP}}$, où r_{DP} est le rayon du défaut ponctuel. Celui-ci est ici défini comme le rayon atomique $r_{\text{DP}} = r_{\text{at}} = (3V_{\text{at}}/4\pi)^{1/3} = 0.16$ nm. La densité de cavités ne dépend que des dimensions de la boîte de simulation et est donnée par $\rho = 1/l^3$. Là encore, différentes densités de cavités peuvent être étudiées en faisant varier les dimensions de la boîte, c'est-à-dire en

faisant varier l .

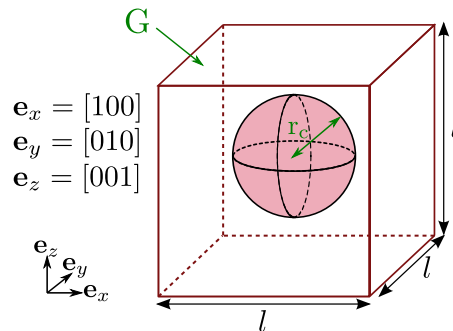


FIGURE 3.7 – Configuration de la boîte de simulation contenant une cavité sphérique.

Le champ de déformation généré par la cavité sphérique est calculé par les expressions données dans les références [46, 47] :

$$\varepsilon_{ij}(\mathbf{r}) = \frac{\left(-\frac{2\gamma}{r_c}\right)}{4\mu} \left(\frac{r_c}{r}\right)^3 \left(\delta_{ij} - \frac{3x_i x_j}{r^2}\right). \quad (3.29)$$

Dans cette équation, μ est le module de cisaillement du matériau, les coordonnées x, y, z sont notés x_1, x_2, x_3 par souci de simplicité, avec $r = \sqrt{x_1^2 + x_2^2 + x_3^2}$, et γ est la tension de surface fixée à la valeur typique de 1 J.m^{-2} [47].

À partir de l'équation (3.29), on peut voir que $\text{Tr}(\varepsilon) = 0$. En conséquence, pour un défaut ayant un dipôle élastique isotrope $\mathbf{P} = P_0 \mathbf{I}$, l'énergie due au champ élastique est de $E = -P_0 \text{Tr}(\varepsilon) = 0$. Ainsi, quand les dipôles élastiques des lacunes et des interstitiels sont isotropes, par exemple dans le cas 1, le biais vaut 0 et la cavité est un puits neutre.

Les cas de simulations concernant des défauts ayant des dipôles élastiques isotropes au point stable et au point col (cas 1 et 2'') sont donc équivalents au cas 0, sans interactions élastiques. On ne considère donc ici que les cas des défauts sans interactions élastiques (cas 0), des défauts réels (cas 2) et des défauts simplifiés au point col (cas 2').

3.4.2 Forces de puits et biais

Les forces de puits et le biais de la cavité sphérique sont calculés pour une cavité de rayon $r_c = 1 \text{ nm}$, pour des densités de 10^{21} à 10^{23} m^{-3} , correspondant à des densités fréquemment mesurées dans les matériaux irradiés [158]. On calcule les efficacités d'absorption Z par la relation :

$$Z = \frac{k^2}{4\pi(r_c + r_{\text{DP}})\rho}. \quad (3.30)$$

Les résultats sont présentés sur la figure 3.8.

Comme pour la dislocation, un accord raisonnable est obtenu entre les forces de puits pour les défauts sans interactions (cas 0 – carrés jaunes) et la solution analytique

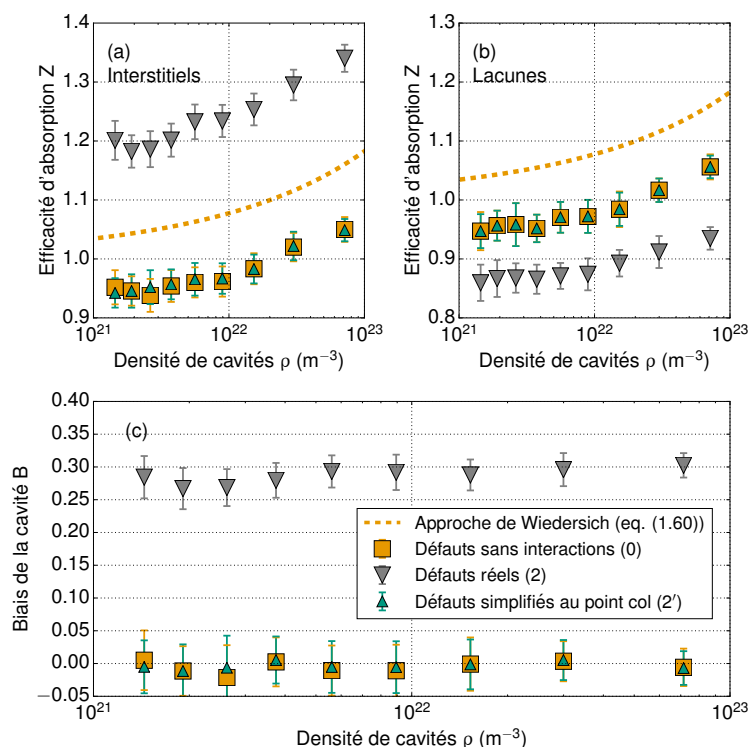


FIGURE 3.8 – Efficacité d'absorption $Z = k^2/(4\pi(r_c + r_{DP})\rho)$ de la cavité sphérique pour les (a) interstitiels et (b) lacunes et (c) biais, pour une cavité de rayon 1 nm.

obtenue avec l'approche de Wiedersich (équation (1.60)), ce qui valide notre approche. La différence observée peut être expliquée par les conditions aux limites sur la surface de la cavité, comme pour les dislocations.

Le point le plus intéressant est ici l'impact des interactions élastiques sur les forces de puits. Les résultats obtenus pour les défauts réels (cas 2 – triangles inversés gris) montrent que la présence des interactions élastiques augmente les forces de puits pour les interstitiels, mais réduit légèrement les forces de puits pour les lacunes par rapport au cas sans interactions élastiques. Ceci mène à une valeur de biais positive de presque 0.3 en moyenne pour les densités de cavités étudiées. Le biais ne varie que peu avec la densité de cavités, du fait de la faible portée des interactions élastiques. Cette valeur de biais montre que les cavités ne peuvent pas être considérées comme des puits neutres quand les interactions élastiques sont prises en compte.

Les forces de puits obtenues pour les défauts ponctuels ayant des points cols isotropes (cas 2' – triangles verts) sont égales à celles obtenues dans le cas sans interactions, et le biais est donc nul. Ainsi, les résultats montrent que l'anisotropie au point col des défauts ponctuels est seule responsable de l'augmentation du biais. L'anisotropie au point stable n'influence pas les forces de puits ni le biais, ce qui est cohérent avec les valeurs obtenues

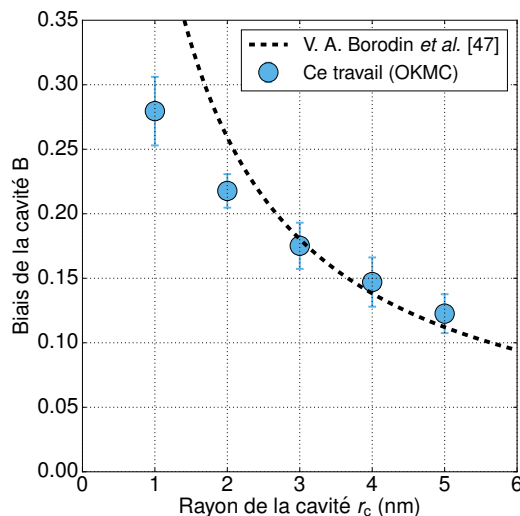


FIGURE 3.9 – Biais de la cavité B en fonction du rayon de la cavité r_c , dans le cas des défauts réels (cas 2), et expression analytique du biais proposée par V. A. Borodin *et al.* [47] (eq. (1.65)). La densité de cavités est ici de $3.47 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$.

pour la dislocation droite.

La figure 3.9 présente le biais de la cavité pour une densité de $3.47 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$, pour des rayons de cavité allant de 1 nm à 5 nm, avec prise en compte de l'anisotropie au point col des défauts ponctuels (cas 2). Le biais de la cavité décroît quand le rayon de la cavité augmente du fait de la variation en $1/r_c$ dans l'expression (3.29), mais même pour un rayon de 5 nm, le biais reste supérieur à 0.1, ce qui indique que la cavité est un puits biaisé.

3.4.3 Analyse et discussion

De la même façon que pour les dislocations, les forces de puits de la cavité ont été déterminées analytiquement dans la littérature, en prenant en compte l'anisotropie de diffusion [47] (voir eq. (1.65)). L'approche utilisée pour le calcul des forces de puits, de type Poisson, est différente de celle correspondant à nos simulations. Les auteurs supposent que la cavité est petite comparée à la boîte de simulation et que la déformation est faible. L'expression obtenue (1.65) est alors très simple : elle dépend des composantes du dipôle élastique et varie en $1/r_c$. Le biais obtenu en utilisant cette expression et les dipôles du cas 2 (défauts réels) est indiqué sur la figure 3.9. Cette expression analytique est en bon accord avec les résultats de nos simulations pour les grands rayons de cavité, mais une différence importante apparaît pour les faibles rayons pour lesquels le champ de déformation est plus fort. Pour les paramètres utilisés ici, ce traitement analytique donne que pour la cavité de rayon de 1 nm, la force de puits pour les lacunes est réduite d'un facteur 0.69 lorsque l'anisotropie au point col est prise en compte, tandis que la

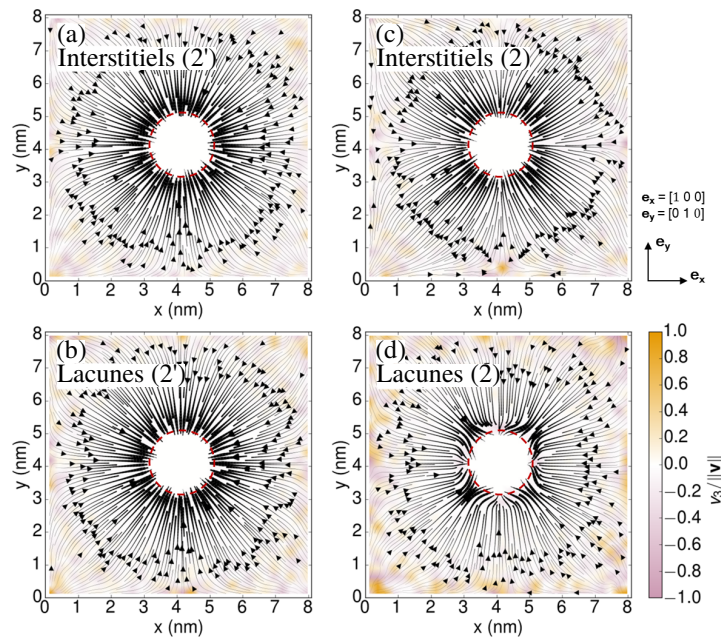


FIGURE 3.10 – Flux moyens (a) d'interstitiels et (b) de lacunes avec point col isotrope (cas 2'), et (c) d'interstitiels et (d) de lacunes avec les dipôles élastiques complets (cas 2). On utilise les mêmes notations que dans la figure 3.4.

force de puits pour les interstitiels augmente d'un facteur 1.29. Dans nos simulations, la réduction pour les lacunes est moins forte, tandis que l'augmentation de la valeur pour les interstitiels est très proche. De ce fait, le biais obtenu analytiquement est plus élevé ($B = 0.46$).

Pour analyser plus en détail l'effet de l'anisotropie au point col, on extrait des simulations OKMC les trajectoires des défauts ponctuels. Celles-ci sont représentées sur la figure 3.10 dans le plan xy , pour le cas d'un point col isotrope (cas 2', (a)–(b)) et celui d'un point col anisotrope (cas 2, (c)–(d)). Dans le cas où le point col est isotrope, les flux moyens d'interstitiels et de lacunes sont tous les deux perpendiculaires à la surface de la cavité. Ceci correspond aux flux qui seraient obtenus sans interactions élastiques entre la cavité et les défauts ponctuels. Quand l'anisotropie au point col est prise en compte, les trajectoires des interstitiels ne sont que très peu modifiées. Au contraire, les trajectoires des lacunes sont courbées à l'approche de la cavité.

La figure 3.11 présente la probabilité d'absorption sur la surface d'une cavité de rayon 1 nm^2 . Ces résultats confirment que la probabilité d'absorption des interstitiels est presque homogène sur la surface de la cavité, avec une légère augmentation selon les directions $\langle 111 \rangle$. À l'inverse, la figure 3.11 (b) montre que la probabilité d'absorption pour les lacunes est très anisotrope. Les lacunes ne sont absorbées pratiquement que selon les directions $\langle 100 \rangle$. D'une façon très similaire, des champs de concentration

2. Représentation réalisée avec le logiciel PARAVIEW [163].

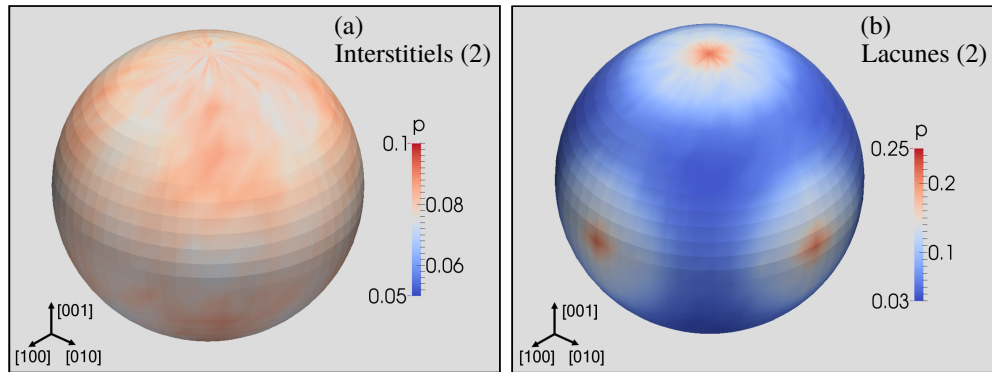


FIGURE 3.11 – Densité de probabilité d'absorption p des (a) interstitiels et (b) lacunes sur la surface de la cavité, pour une cavité de rayon 1 nm.

anisotropes peuvent être trouvés à partir de l'expression proposée par V. A. Borodin *et al.* [47]. Qualitativement, ceci peut être expliqué par la courbure des trajectoires des lacunes visibles sur la figure 3.10 (d), qui convergent vers les directions $\langle 100 \rangle$. D'une façon générale, comme vu dans le cas des dislocations, les lacunes ont tendance à migrer plus facilement si la déformation le long de la direction de saut est négative (ces défauts sont appelés défauts de « type F » par C. H. Woo [164]). La déformation tangentielle générée par la cavité est négative, tandis que la déformation normale est positive. De ce fait, les lacunes ont tendance à migrer de façon tangentielle à la cavité, ce qui réduit l'absorption de lacunes par la cavité et donc la force de puits. Ce phénomène est plus ou moins marqué, selon l'orientation des sauts par rapport au champ de déformation de la cavité. Cet effet de réseau est révélateur de l'anisotropie au point col. Pour évaluer plus précisément l'effet de la courbure des trajectoires à l'approche de la cavité, il faudrait réaliser des simulations plus poussées, comprenant des termes d'énergie supplémentaires qui pourraient être importants aux faibles distances [147] ou impliquant des calculs en potentiels semi-empiriques du paysage énergétique.

3.5 Boucle de dislocation

3.5.1 Définition de l'étude

Pour calculer la force de puits d'une boucle de dislocation la boîte de simulation est également choisie cubique de dimension l . Elle contient une boucle de dislocation en son centre, comme illustré sur la figure 3.12. Il s'agit d'une boucle de Frank, parfaitement prismatique, située dans le plan de normale $\mathbf{n} = \frac{1}{\sqrt{3}}[111]$, dont le vecteur de Burgers est donc de $\mathbf{b} = \pm \frac{a_0}{3}[111]$, où a_0 est le paramètre de maille. En inversant le signe du vecteur de Burgers, on peut étudier une boucle de type interstitiel (ici pour $\mathbf{b} \cdot \mathbf{n} < 0$) ou une boucle lacunaire ($\mathbf{b} \cdot \mathbf{n} > 0$). La boucle de rayon constant r_L est un tore de section circulaire de rayon r_c . Le défaut ponctuel est donc absorbé si la distance d entre le centre de la section et celui du défaut vérifie $d \leq r_c + r_{DP}$, en imposant $r_c = 2\|\mathbf{b}\|$, et où r_{DP} est

le rayon du défaut ponctuel défini comme le rayon atomique. La densité de boucles est donnée par $\rho = 1/l^3$, et différentes densités de boucles peuvent être étudiées en faisant varier la dimension l . Le réseau cristallin est tourné de façon à ce que le vecteur normal au plan d'habitat de la boucle soit aligné avec la direction z de la boîte de simulation, en choisissant arbitrairement que le vecteur $\mathbf{e}_x = \frac{1}{\sqrt{2}}[10\bar{1}]$ soit aligné selon la direction x .

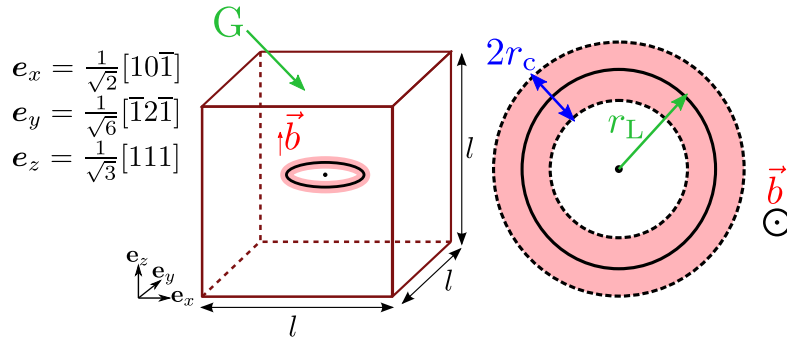


FIGURE 3.12 – Configuration de la boîte de simulation contenant une boucle de dislocation.

Pour le champ de déformation généré par la boucle de dislocation, on utilise l'expression déterminée par F. Kroupa [165] et par T. A. Khraishi *et al.* [166]. L'expression proposée par T. A. Khraishi *et al.* [166] permet de traiter des boucles qui ne sont pas parfaitement prismatiques (pour lesquelles $\mathbf{n} \wedge \mathbf{b} \neq 0$). Nous avons également traité ce type de boucles. Pour ce qui concerne les forces de puits, les résultats présentent des tendances très similaires à ceux obtenus pour la boucle parfaitement prismatique. On ne présente donc dans ce manuscrit que les résultats obtenus pour la boucle parfaitement prismatique.

3.5.2 Forces de puits et biais

Les forces de puits et le biais des boucles interstitielle et lacunaire sont calculées pour des rayons de 1 à 10 nm et pour des densités de boucles allant de 10^{22} m^{-3} à $1.25 \cdot 10^{23} \text{ m}^{-3}$. Ces densités sont relativement élevées par rapport aux valeurs rencontrées dans l'aluminium irradié [8, 167] mais permettent de conserver des tailles de boîtes assez petites pour permettre des simulations OKMC efficaces, même si elles peuvent amplifier les effets des interactions et de l'anisotropie au point col. On calcule l'efficacité d'absorption Z par la relation $Z = k^2/(2\pi r_L \rho)$. Les résultats pour des boucles interstitielle et lacunaire de 3 nm de rayon sont représentés sur les figures 3.13 et 3.14.

Contrairement aux cas précédents, il n'existe pas de solution analytique à l'approche de Wiedersich pour la géométrie toroidale considérée ici. On compare donc les résultats obtenus dans le cas des défauts sans interactions (cas 0) à la formule analytique proposée par T. Jourdan (eq. (1.75)), sans prendre en compte les interactions élastiques (en utilisant r_c au lieu de r_c^{eff}). Les valeurs de forces de puits sont identiques pour les

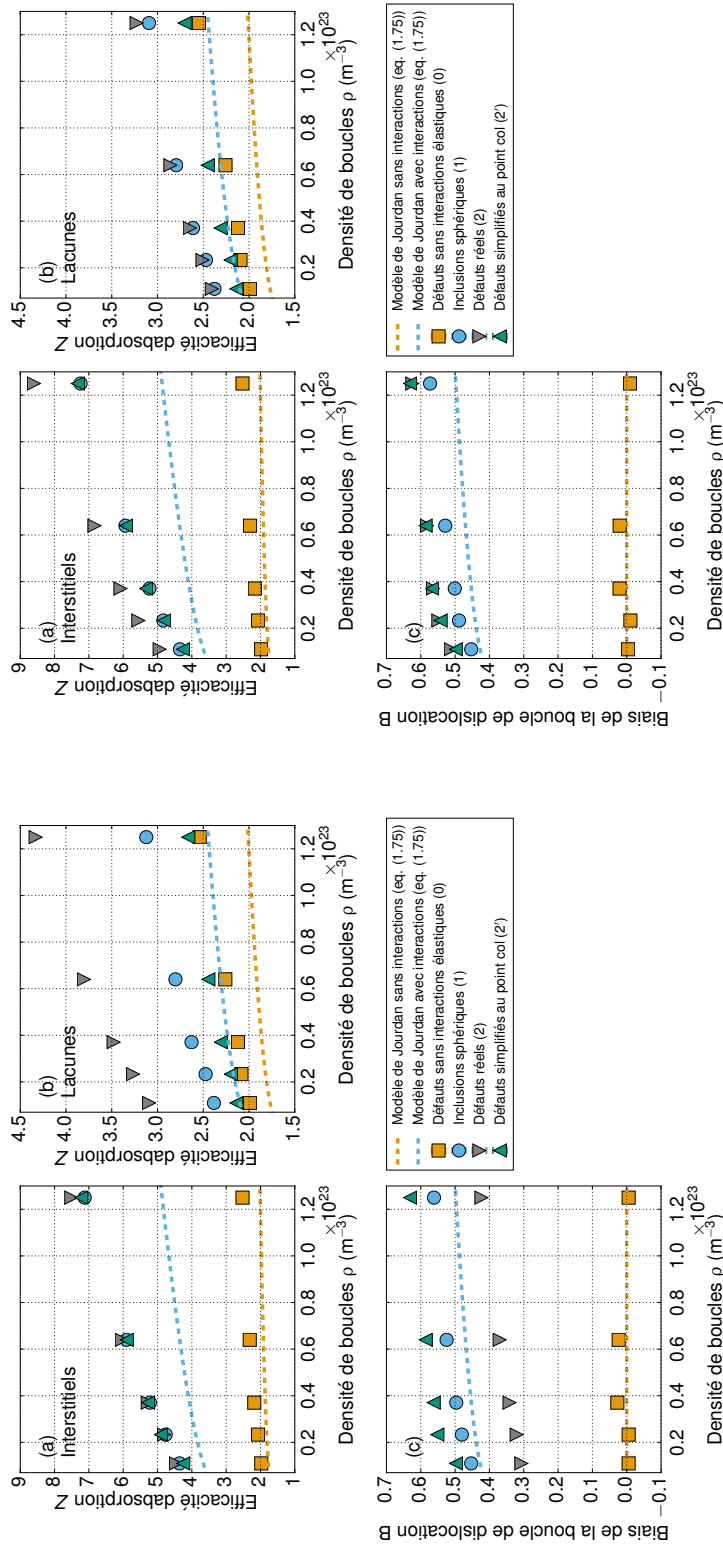


FIGURE 3.13 – Efficacité d'absorption de la boucle de dislocation interstitielle $Z = k^2 / (2\pi r_L \rho)$ pour les (a) interstitiels et (b) lacunes et (c) biais, pour une boucle de 3 nm de rayon.

FIGURE 3.14 – Efficacité d'absorption de la boucle de dislocation lacunaire $Z = k^2 / (2\pi r_L \rho)$ pour les (a) interstitiels et (b) lacunes et (c) biais, pour une boucle de 3 nm de rayon.

boucles lacunaire et interstitielle, et l'accord avec la formule analytique est qualitativement bon. L'écart observé entre l'approche analytique et la simulation OKMC peut être expliqué par plusieurs éléments : d'une part, la solution analytique est obtenue pour une boucle immergée dans un milieu sphérique (voir figure 1.13) tandis que la boîte de simulation utilisée ici est cubique. D'autre part, la solution analytique repose sur l'approche de Laplace, qui ne correspond pas aux conditions utilisées en OKMC. Pour constater l'importance de ces éléments, des calculs EF sont réalisés pour déterminer la force de puits d'une boucle de dislocation, en utilisant une géométrie cylindrique plus proche de la géométrie cubique étudiée en OKMC. Les résultats obtenus pour une boucle interstitielle avec une densité de $1.1 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ sont donnés sur la figure 3.15. On constate que la géométrie utilisée n'a pas d'influence sur les forces de puits : pour les approches de Laplace, le passage de la géométrie sphérique à la géométrie cylindrique n'impacte pas la force de puits. Un meilleur accord avec les valeurs OKMC est obtenu pour l'approche de Wierdersich (flux imposé) sur la géométrie cylindrique, l'écart restant pouvant s'expliquer par les conditions aux limites sur la surface du tore pour les calculs EF, qui ne prennent pas en compte les sauts discrets réalisés en OKMC.

Pour la boucle interstitielle (fig. 3.13), la prise en compte des interactions élastiques en utilisant les dipôles élastiques complets (cas 2 – défauts réels) mène à une forte augmentation des valeurs de forces de puits pour les interstitiels et les lacunes. La force de puits pour les interstitiels est néanmoins plus fortement augmentée que celle pour les lacunes, ce qui mène à une valeur de biais positif. Il est intéressant de voir que la prise en compte des interactions élastiques ne se traduit pas tout à fait de la même façon pour la boucle lacunaire. En effet, pour ce type de boucle (fig. 3.14), les forces de puits sont également toutes deux augmentées par rapport au cas sans interactions. Cependant, la force de puits pour les interstitiels est un peu plus fortement augmentée que pour la boucle interstitielle, tandis que l'augmentation de la force de puits pour les lacunes est nettement moins forte que pour la boucle interstitielle. Le biais de la boucle lacunaire est donc plus élevé que celui de la boucle interstitielle.

L'influence de l'anisotropie au point col est mise en évidence en calculant les forces de puits pour les défauts ayant un point col isotrope (cas 2'). Pour la boucle interstitielle, la force de puits pour les interstitiels (fig. 3.13 (a)) n'est que peu affectée par l'absence de l'anisotropie au point col, tandis que la force de puits pour les lacunes (fig. 3.13 (b)) est fortement diminuée par l'absence de l'anisotropie au point col, avec une force de puits dans le cas 2' très proche de celle obtenue dans le cas sans interactions. Le biais est donc amplifié dans le cas où les dipôles élastiques sont isotropes au point col. Pour la boucle lacunaire, l'absence de l'anisotropie au point col impacte de manière similaire les interstitiels et les lacunes, en réduisant la force de puits avec la même amplitude relative, ce qui aboutit à un biais identique à celui obtenu avec les dipôles élastiques complets. On constate de plus que pour des dipôles élastiques isotropes au point col, les biais des boucles interstitielle et lacunaire sont identiques. L'anisotropie au point col est donc responsable d'une différence dans les valeurs de biais entre boucles interstitielle et lacunaire.

La variation des valeurs de biais en fonction du rayon r_L pour les deux types de

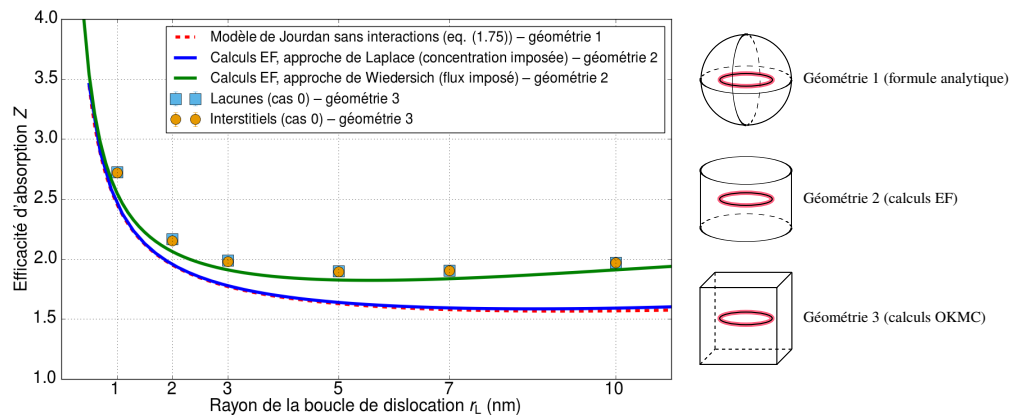


FIGURE 3.15 – Efficacité d'absorption $Z = k^2/(2\pi r_L \rho)$ d'une boucle de dislocation interstitielle, sans interactions élastiques (cas 0), pour une densité de $1.1 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$, comparée aux résultats de calculs EF.

boucles à une densité donnée de $1.1 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ est présentée sur la figure 3.16. Ces résultats montrent que le biais des boucles augmente avec le rayon des boucles. Dans le cas des défauts réels (cas 2), la différence entre les biais de la boucle lacunaire et de la boucle interstitielle est présente pour tous les rayons étudiés, mais diminue quand le rayon de la boucle augmente, passant d'une différence relative de 65% pour une boucle de 1 nm à 23% pour une boucle de 10 nm. Cette évolution est cohérente avec le cas limite de $r_L \rightarrow \infty$ pour lequel les boucles de dislocation sont équivalentes à des dislocations droites de type coin. Dans ce cas limite, les deux boucles lacunaire et interstitielle deviennent deux dislocations droites équivalentes, ayant donc le même biais.

On représente également sur les figures 3.13 et 3.14 les valeurs obtenues dans le cas où les défauts ponctuels ont les mêmes propriétés au point stable et au point col, définies par leur volume de relaxation au point stable (cas 1). Comme nous l'avons vu dans le cas de la dislocation droite, pour les interstitiels, le volume de relaxation au point stable est proche de la valeur au point col : $\frac{1}{3} \text{Tr}(\mathbf{P}_i^{\text{sta}}) = 19.343 \text{ eV}$ et $\frac{1}{3} \text{Tr}(\mathbf{P}_i^{\text{col}}) = 18.896 \text{ eV}$. L'anisotropie au point stable est très faible. C'est pourquoi, pour ce type de défaut, les forces de puits obtenues dans le cas 1 sont proches de celles obtenues dans le cas où le point col est isotrope (cas 2'), et ce pour les deux types de boucles. Pour les lacunes, en revanche, le volume de relaxation au point stable est très différent de la valeur au point col : $\frac{1}{3} \text{Tr}(\mathbf{P}_v^{\text{col}}) = -3.238 \text{ eV}$ et $\frac{1}{3} \text{Tr}(\mathbf{P}_v^{\text{sta}}) = -1.577 \text{ eV}$. Dans le cas où les propriétés du point stable sont utilisées au point stable et au point col (cas 1) les interactions sont donc plus fortes que dans le cas 2' et la force de puits est augmentée par rapport à ce dernier, pour les deux types de boucles. Pour la boucle lacunaire, la force de puits pour les lacunes dans le cas 1 est ainsi très proche de celle obtenue avec les dipôles élastiques complets (cas 2). Pour les boucles interstitielles, elle reste largement inférieure au cas 2. En conséquence, le biais de la boucle interstitielle est plus fort pour ce cas 1 que dans le cas 2, tandis que pour la boucle lacunaire, le biais est diminué. Les deux valeurs de biais pour les deux types de boucles dans le cas 1 sont au final presque identiques.

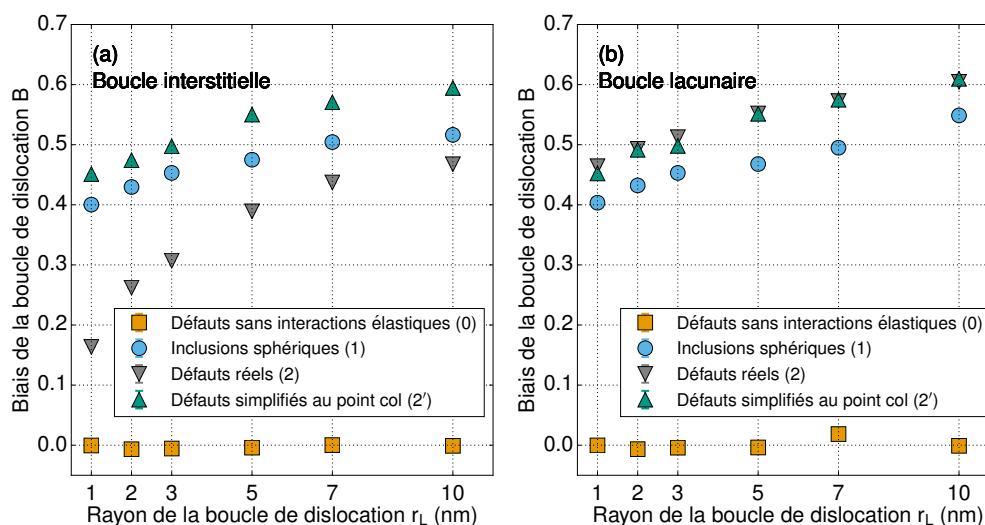


FIGURE 3.16 – Biais des boucles (a) interstitielle et (b) lacunaire en fonction du rayon de la boucle, pour une densité de boucles de $1.1 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$.

3.5.3 Analyse et discussion

Une forme analytique de la force de puits d'une boucle de dislocation parfaitement prismatique, prenant en compte les interactions élastiques, a été déterminée par T. Jourdan [36], à partir de calculs EF. L'expression (eq. (1.75)) fait appel à un rayon de capture effectif r_c^{eff} qui dépend du volume de relaxation du défaut ponctuel selon l'équation (1.73). Dans cette approche, le défaut est supposé isotrope et possède les mêmes propriétés au point stable et au point col. On représente sur les figures 3.13 et 3.14 les efficacités d'absorption obtenues par cette expression analytique et le biais qui en découle, en utilisant pour les interstitiels et les lacunes leur volume de relaxation au point stable respectif. Comme dans le cas de la dislocation droite, la formule donne un accord qualitatif avec les valeurs obtenues dans le cas 1, la tendance de variation des forces de puits avec la densité de boucles semble bien reproduite. Les valeurs de forces de puits sont cependant sous-estimées. On note une relativement bonne prédiction des valeurs de biais par cette formule. Là encore, une grande partie de la différence entre cette formule et les résultats OKMC s'explique par les conditions aux limites qui diffèrent entre les calculs OKMC (correspondant à l'approche de Wiedersich) et le traitement analytique (approche de Laplace).

L'étude des boucles de dislocation a également été réalisée par la méthode du champ de phase [57, 58]. Les résultats obtenus par H. Rouchette *et al.* [57], en considérant des dipôles isotropes et identiques au point stable et au point col (cas 1), aboutissent à la conclusion que les effets des interactions élastiques sur les forces de puits augmentent avec le rayon de la boucle, ce qui est en bon accord avec nos résultats. L. Thuinet *et al.* [58], avec les mêmes hypothèses, montrent qu'une boucle lacunaire a une force de puits supérieure à une boucle interstitielle pour les interstitiels mais inférieure pour les lacunes.

Bien que la différence soit faible, cela conduit à une différence de biais notable : les boucles lacunaires ont un biais plus élevé que les boucles interstitielles. Dans nos simulations, nous n'avons pas trouvé de différence entre boucles lacunaires et boucles interstitielles dans le cas 1. Pour des conditions de type Laplace, il a été montré analytiquement que les boucles interstitielles et lacunaires ont le même biais [55]. Les auteurs ont indiqué avoir obtenu le même résultat pour les conditions de Wiedersich (bien qu'il n'en donnent pas la démonstration). Les résultats numériques semblent confirmer ce point. La différence obtenue par L. Thuinet *et al.* étant assez faible, l'absence de différence observée en OKMC et dans les calculs peut provenir d'une précision trop faible.

Dans la présente étude, c'est plus particulièrement l'anisotropie au point col des lacunes qui est responsable de la différence de biais entre les deux types de boucles. La différence de biais que nous observons est en bon accord avec l'analyse proposée par C. H. Woo [164]. Son interprétation peut être reformulée de la manière suivante. Par simplicité, considérons le cas où le défaut est isotrope au point stable et au point col (cas 0, 1 et 2' dans le cas des lacunes). Le flux de défauts ponctuels peut s'écrire selon l'équation (1.38), comme :

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}) = -D(\mathbf{r})\nabla C(\mathbf{r}) - D(\mathbf{r})C(\mathbf{r})\frac{\nabla E^{\text{sta}}}{k_{\text{B}}T}, \quad (3.31)$$

où

$$D(\mathbf{r}) = D_0 \exp\left(-\frac{E_0^{\text{m}} + E^{\text{col}}(\mathbf{r}) - E^{\text{sta,eff}}(\mathbf{r})}{k_{\text{B}}T}\right). \quad (3.32)$$

Le premier terme traduit une marche aléatoire, tandis que le second est un terme de dérive dû au gradient de l'interaction élastique au point stable. Il donne la direction par laquelle les défauts arrivent vers le puits. La dépendance de D en E^{col} et $E^{\text{sta,eff}}$ donne lieu au phénomène d'élastodiffusion. Comme nous l'avons vu au chapitre 1, dans le cas plus général d'un dipôle anisotrope au point col, D devient un tenseur d'ordre 2. Les lacunes, de volume de relaxation négatif, vont donc pénétrer dans les boucles en passant par le côté en compression, tandis que les interstitiels devraient passer par le côté en tension. Ces flux sont schématisés sur la figure 3.17.

L'amplitude du flux dépend du facteur $D(\mathbf{r})$, qui est fonction de $E^{\text{col}}(\mathbf{r})$ et donc du couplage du dipôle au point col avec le champ de déformation le long de la trajectoire. C. H. Woo définit deux types de défauts : les défauts de type F, pour lesquels la composante du dipôle transversale à la direction du saut est positive, et les défauts de type M, pour lesquels cette composante est négative. Les lacunes sont supposées de type F par C. H. Woo, ce qui est confirmé par notre étude. Par rapport à un défaut isotrope de même volume de relaxation, elles migrent plus facilement dans les zones où le couplage entre le champ de déformation et le dipôle au point col abaisse l'énergie de migration, c'est-à-dire où une déformation positive transversalement au saut, ou négative dans la direction du saut, est imposée.

Ainsi, pour une boucle lacunaire, la lacune va principalement migrer dans des régions où une déformation négative transversale est présente tandis que pour une boucle interstitielle, elle va passer dans une région où la déformation transversale est positive (voir

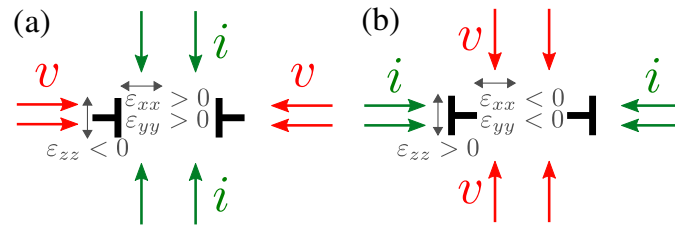


FIGURE 3.17 – Représentation des flux de lacunes (en rouge) et d'interstitiels (en vert) vers une boucle (a) lacunaire et (b) interstitielle, et valeur des termes du tenseur de déformation le long des trajectoires.

l'illustration sur la figure 3.17). L'accélération de la diffusion dans le cas de la boucle interstitielle donne lieu à une force de puits plus importante, et donc à un biais plus faible. Ce raisonnement n'est valable que pour des petites boucles qui imposent un flux d'interstitiels (de lacunes) normal à la boucle lacunaire (interstitielle). Pour des boucles plus grandes, on retrouve le cas de la dislocation droite et les différences disparaissent.

Dans notre cas, comprendre le rôle de l'anisotropie au point col des défauts ponctuels est une tâche plus compliquée. Les trajectoires ont été étudiées et elles sont plus complexes que ce qui vient d'être discuté. On constate notamment un fort effet du réseau qui se traduit par une symétrie d'ordre 3 sur ces trajectoires. On les représente donc en trois dimensions, sur les figures 3.18 et 3.19 qui présentent une vue en coupe des boucles de dislocation lacunaire (fig. 3.18) et interstitielle (fig. 3.19), le flux de lacunes étant représenté par les flèches³. Pour illustrer la variation de l'énergie de migration, on représente également les iso-contours de l'énergie de migration, celle-ci étant moyennée sur tous les sauts réalisés par les lacunes durant la simulation.

Pour la boucle lacunaire, on constate que les trajectoires obtenues dans le cas où le point col est isotrope (fig. 3.18 (a)) facilitent bien une absorption dans le plan xy par les côtés en compression. La prise en compte de l'anisotropie au point col (fig. 3.18 (b)) complexifie les chemins de migration en faisant apparaître une symétrie d'ordre 3, mais la tendance générale reste identique. On peut constater par la proximité des iso-contours dans cette direction y que l'énergie de migration varie peu le long des trajectoires en s'approchant de la boucle, et n'est pas influencée par la présence de l'anisotropie au point col. Pour mieux visualiser ceci, on représente sur la figure 3.18 (c) la variation de l'énergie de migration le long d'une droite de vecteur directeur e_y passant par le centre de la boucle : on peut constater que la présence de l'anisotropie au point col n'influence pas l'énergie de migration le long des trajectoires des lacunes vers la boucle lacunaire. Ceci explique que la prise en compte de l'anisotropie au point col augmente relativement peu la force de puits de la boucle lacunaire pour les lacunes.

Pour la boucle interstitielle, les trajectoires montrent bien le comportement attendu : lorsque le point col est isotrope (fig. 3.19 (a)), les lacunes se dirigent vers la boucle perpendiculairement au plan avec une migration dans la direction z . De la même façon que pour la boucle lacunaire, la prise en compte de l'anisotropie au point col (fig. 3.19 (b))

3. Représentations réalisées avec le logiciel PARAVIEW [163].

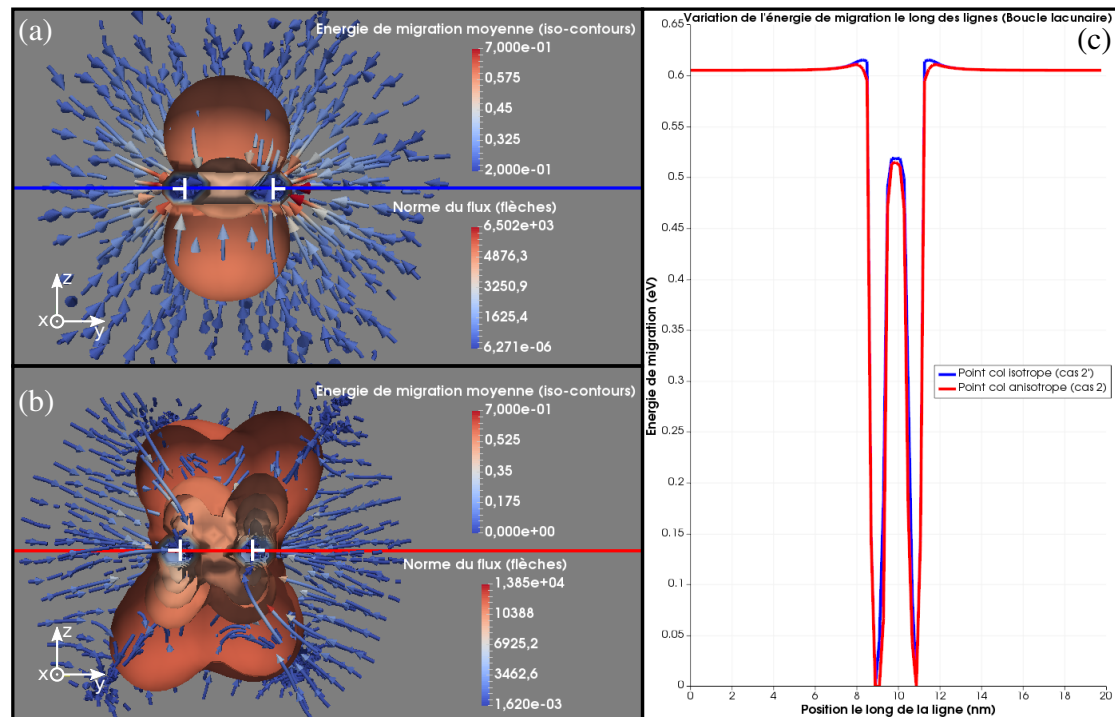


FIGURE 3.18 – Flux de lacunes (flèches) vers une boucle lacunaire, et iso-contours de leurs énergies de migration (surfaces), obtenus pour des lacunes ayant (a) un point col isotrope (cas 2') et (b) un point col anisotrope (cas 2). (c) Variation de l'énergie de migration moyenne le long des droites rouge et bleue représentant la trajectoire des lacunes. Le rayon de la boucle est ici de 1 nm.

complexifie les trajectoires sans en changer la tendance générale. On peut voir que les iso-contours dans cette direction sont très espacés dans le cas où la lacune a un point col anisotrope (fig. 3.19 (b)) par comparaison au cas du point col isotrope (fig. 3.19 (a)), ce qui indique une variation de l'énergie de migration à proximité de la boucle. On trace également l'énergie de migration le long d'une droite de vecteur directeur e_z . Les résultats (fig. 3.18 (c)) montrent en effet que la prise en compte de l'anisotropie au point col fait diminuer l'énergie de migration à l'approche de la boucle, ceci permet donc aux lacunes de migrer plus facilement vers la boucle.

En résumé, l'anisotropie au point col des lacunes facilite leur migration vers la boucle interstitielle. En conséquence, la force de puits pour les lacunes de cette boucle est augmentée, ce qui contribue à la diminution du biais de la boucle interstitielle par rapport à celui de la boucle lacunaire. Malgré un fort effet du réseau, on retrouve donc les principaux éléments de l'analyse plus simple de C. H. Woo [164].

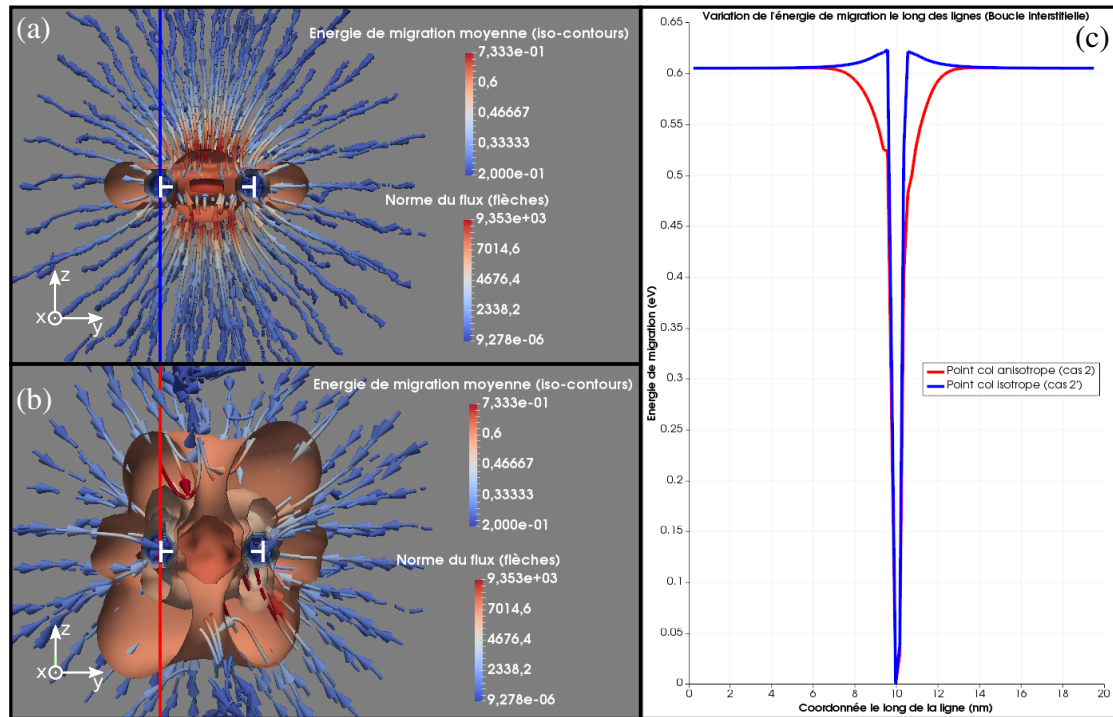


FIGURE 3.19 – Flux de lacunes (flèches) vers une boucle interstitielle, et iso-contours de leurs énergies de migration (surfaces), obtenus pour des lacunes ayant (a) un point col isotrope (cas 2') et (b) un point col anisotrope (cas 2). (c) Variation de l'énergie de migration moyenne le long des droites rouge et bleue représentant la trajectoire des lacunes. Le rayon de la boucle est ici de 1 nm.

3.6 Influence des polarisabilités diaélastiques

3.6.1 Méthode : Détermination des polarisabilités

Pour déterminer les tenseurs de polarisabilité, les calculs DFT ont été réalisés en utilisant le code VASP, en suivant la méthode présentée au chapitre 2. L'aluminium étant le plus souvent supposé « simple », avec seulement 1 électron de valence et 2 électrons de semi-cœur s $[\text{Ne}]3s^23p^1$, les premiers calculs ont été réalisés avec les mêmes paramètres que ceux utilisés pour déterminer les dipôles élastiques, en particulier une grille de points k $3 \times 3 \times 3$. Des difficultés se sont cependant présentées lorsque ces calculs ont été effectués.

En effet, la détermination des polarisabilités nécessite l'étude de variations fines de l'énergie avec une déformation appliquée à la boîte de simulation. La convergence des valeurs est alors beaucoup plus difficile à atteindre, l'augmentation de l'énergie de coupure ne suffisant pas à compenser la variation des valeurs de polarisabilités avec le nombre de points k . En particulier, pour les dipôles élastiques, les valeurs semblaient convergées pour la grille $3 \times 3 \times 3$ (correspondant à 12 points k). En calculant les constantes élas-

tiques (calcul du même type que pour les polarisabilités), on constate que les valeurs commencent à varier lorsque le nombre de points k est augmenté, et ne se stabilisent que pour la grille $8 \times 8 \times 8$ (32 points k). Cette variation est illustrée sur la figure 3.20. Nous avons donc réalisé les calculs avec cette grille $8 \times 8 \times 8$ et de nouvelles valeurs de dipôles sont alors obtenues. Elles sont discutées dans le paragraphe suivant.

Les tenseurs de polarisabilité ont donc été calculés en utilisant une grille $8 \times 8 \times 8$. En conséquence, les calculs DFT ont été beaucoup plus coûteux que ce que nous avons envisagé, et les valeurs de polarisabilités n'ont pu être déterminées que dans les derniers mois de thèse. De plus, le temps de calcul alloué ne nous a pas permis de déterminer le dipôle élastique et le tenseur de polarisabilité de l'interstitiel au point col. On analyse donc dans cette section les valeurs des polarisabilités de la lacune au point stable et au point col. Les calculs de forces de puits prenant en compte ces tenseurs n'ont pas pu être réalisés. Nous nous limitons à estimer l'effet de la polarisabilité sur l'énergie de migration dans quelques cas simples.

3.6.2 Dipôles élastiques

Avec les paramètres indiqués ci-dessus, les dipôles élastiques obtenus sont :

- Pour l'interstitiel au point stable, orienté selon $[100]$:

$$\mathbf{P}_i^{\text{sta}} = \begin{bmatrix} 18.771 & 0 & 0 \\ 0 & 17.821 & 0 \\ 0 & 0 & 17.821 \end{bmatrix} \text{ eV}, \quad (3.33)$$

- Pour la lacune au point stable :

$$\mathbf{P}_v^{\text{sta}} = \begin{bmatrix} -2.469 & 0 & 0 \\ 0 & -2.469 & 0 \\ 0 & 0 & -2.469 \end{bmatrix} \text{ eV}, \quad (3.34)$$

- Pour la lacune au point col, pour un saut selon $[110]$:

$$\mathbf{P}_v^{\text{col}} = \begin{bmatrix} -2.103 & -0.294 & 0 \\ -0.294 & -2.103 & 0 \\ 0 & 0 & 1.946 \end{bmatrix} \text{ eV}. \quad (3.35)$$

Intéressons-nous d'abord à la lacune. Au point stable, le nouveau tenseur diffère assez peu de la valeur utilisée dans ce chapitre (eq. (3.11)), le volume de relaxation (-0.31Ω) n'étant que de 23% inférieur à celui calculé à partir du tenseur (3.11) (de -0.4Ω). On peut constater que cette nouvelle valeur est en meilleur accord avec les valeurs expérimentales qui sont entre -0.05Ω et -0.38Ω [31]. Au point col, le volume de relaxation est plus fortement impacté, car il est diminué de 55% (en valeur absolue) par rapport à la valeur précédente (0.09Ω au lieu de 0.20Ω avec le tenseur (3.12)). En revanche, l'anisotropie au point col est légèrement plus marquée avec ce nouveau tenseur. De plus, on peut constater que par rapport aux valeurs utilisées précédemment, les nouveaux termes

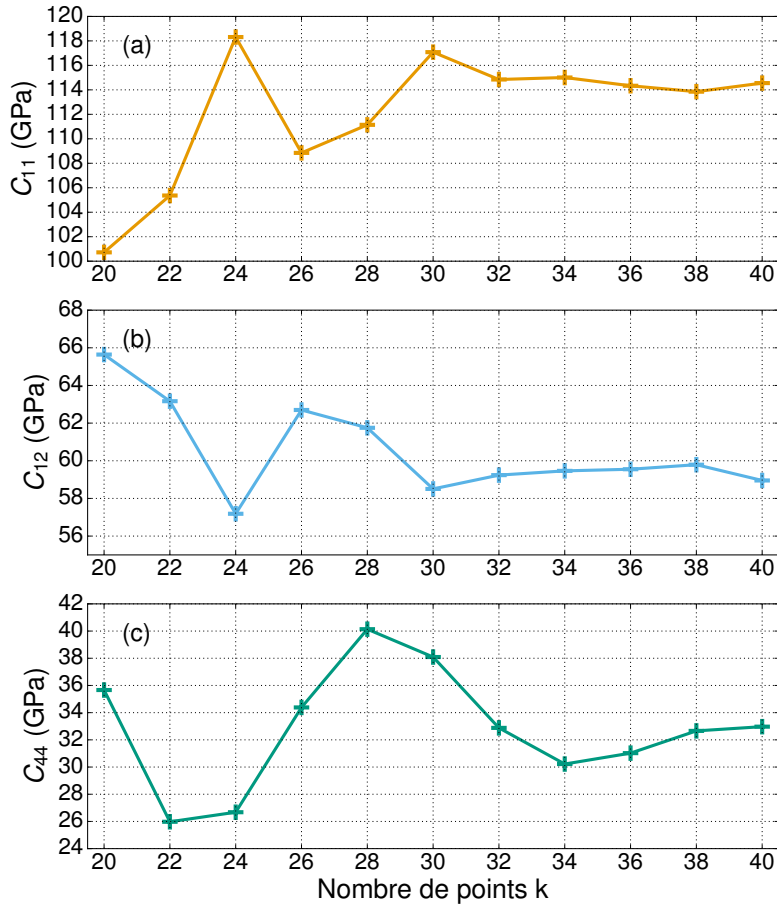


FIGURE 3.20 – Variation des constantes élastiques de l'aluminium déterminées en DFT (calculs du même type que pour les polarisabilités), en fonction du nombre de points k utilisé, pour (a) C_{11} , (b) C_{12} et (c) C_{44} . Ces valeurs montrent que la convergence n'est en réalité atteinte qu'à partir de 32 points k (grille $8 \times 8 \times 8$).

diagonaux sont approximativement augmentés de la même quantité (environ 0.8 eV) au point stable et au point col. Les résultats présentés dans ce chapitre, en particulier l'analyse de l'influence de l'anisotropie au point col qui concernait principalement la lacune, ne sont donc pas remis en cause par ces nouvelles valeurs. Les résultats partiels obtenus pour l'interstitiel vont également dans ce sens, puisque le tenseur obtenu pour l'interstitiel au point stable présente la même faible anisotropie et donne un volume de relaxation de 2.24Ω , soit seulement 5% de moins que la valeur précédemment obtenue (2.35Ω pour le tenseur (3.9)). Ce volume de relaxation se rapproche un peu plus des valeurs observées expérimentalement ($1.9 \pm 0.4 \Omega$ [27, 151]).

Nous utilisons ces dipôles pour discuter le rôle des polarisabilités dans le paragraphe suivant. Nous tenons à indiquer que ces valeurs ont été obtenues tardivement dans la thèse, et pour les travaux présentés dans la suite de ce manuscrit, les tenseurs (3.9) à

(3.12) sont utilisés.

3.6.3 Polarisabilités

Comme indiqué dans le chapitre 2, les polarisabilités sont calculées en ajustant la différence d'énergie (2.11) par un terme quadratique, en imposant les symétries des matrices α . Pour la lacune, les symétries imposées sont les suivantes (en notation de Voigt) :

— au point stable (symétrie cubique) :

$$\alpha_v^{\text{sta}} = \begin{bmatrix} \alpha_{11} & \alpha_{12} & \alpha_{12} & 0 & 0 & 0 \\ \alpha_{12} & \alpha_{11} & \alpha_{12} & 0 & 0 & 0 \\ \alpha_{12} & \alpha_{12} & \alpha_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \alpha_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \alpha_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \alpha_{44} \end{bmatrix} \quad (3.36)$$

— au point col (symétrie orthorhombique) :

$$\alpha_v^{\text{col}} = \begin{bmatrix} \alpha_{11} & \alpha_{12} & \alpha_{13} & 0 & 0 & \alpha_{16} \\ \alpha_{12} & \alpha_{11} & \alpha_{13} & 0 & 0 & \alpha_{16} \\ \alpha_{13} & \alpha_{13} & \alpha_{33} & 0 & 0 & \alpha_{36} \\ 0 & 0 & 0 & \alpha_{44} & \alpha_{45} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \alpha_{45} & \alpha_{44} & 0 \\ \alpha_{16} & \alpha_{16} & \alpha_{36} & 0 & 0 & \alpha_{66} \end{bmatrix} \quad (3.37)$$

En utilisant tout ou partie des déformations indiquées dans le tableau 2.1, on obtient un système d'équations qui permet de déterminer les termes des tenseurs par moindres carrés. On représente sur la figure 3.21 quelques exemples des ajustements en énergie obtenus pour le point col de la lacune, pour les déformations donnant les résultats les plus représentatifs. Cette figure illustre la précision de la solution obtenue par l'ajustement en énergie.

Les résultats obtenus sont :

— pour la lacune au point stable :

$$\alpha_v^{\text{sta}} = \begin{bmatrix} -55.476 & -33.593 & -33.593 & 0 & 0 & 0 \\ -33.593 & -55.476 & -33.593 & 0 & 0 & 0 \\ -33.593 & -33.593 & -55.476 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 29.563 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 29.563 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 29.563 \end{bmatrix} \text{ eV} \quad (3.38)$$

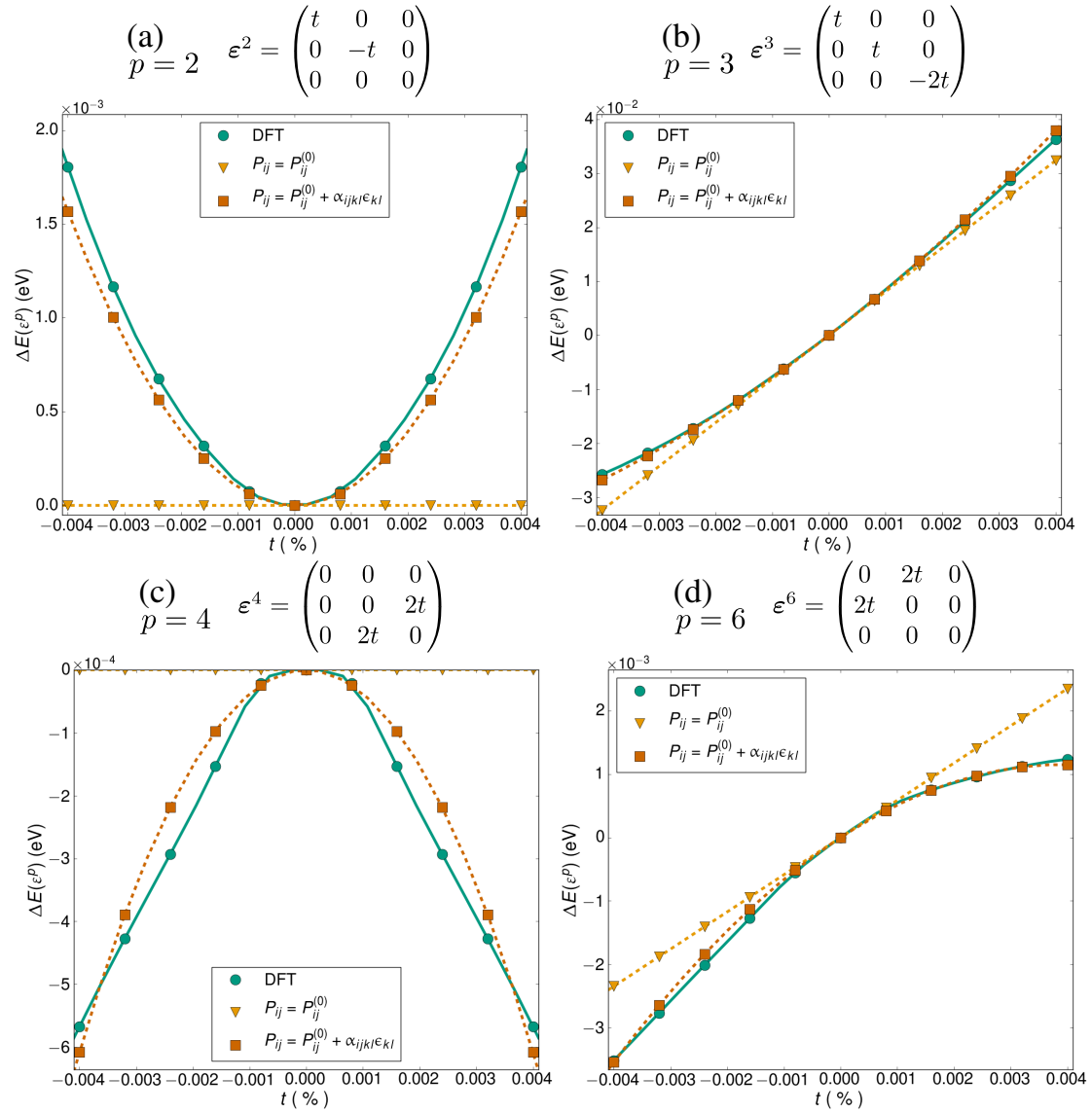


FIGURE 3.21 – Énergies obtenues en DFT pour la lacune au point col, et recalculées à partir des ajustements des dipôles élastiques et des polarisabilités obtenues par la résolution en énergie. Valeurs obtenues pour les déformations appliquées ε^p avec (a) $p = 2$, (b) $p = 3$, (c) $p = 4$ et (d) $p = 6$. Pour le point col de la lacune, les 11 déformations données dans le tableau 2.1 ont été appliquées à la boîte de simulation. Les variations d'énergie pour un niveau de déformation donné peuvent être très différentes (de l'ordre de 10^{-4} eV pour la figure (c), contre 10^{-2} eV pour la figure (b)).

— pour la lacune au point col, pour un saut selon [110] :

$$\alpha_v^{\text{col}} = \begin{bmatrix} -66.967 & 30.921 & 43.413 & 0 & 0 & 13.794 \\ 30.921 & -66.967 & 43.413 & 0 & 0 & 13.794 \\ 43.413 & 43.413 & -70.382 & 0 & 0 & 3.578 \\ 0 & 0 & 0 & 18.994 & 15.629 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 15.629 & 18.994 & 0 \\ 13.794 & 13.794 & 3.578 & 0 & 0 & 37.390 \end{bmatrix} \text{ eV.} \quad (3.39)$$

Pour évaluer l'influence des polarisabilités sur la migration des lacunes, nous allons évaluer leur contribution à l'énergie de migration pour différents types de déformations ϵ . Pour ces calculs, on suppose que la déformation est identique au point stable et au point col. Suivant l'équation (1.20), l'énergie de migration peut s'écrire :

$$E^{\text{m}}(\epsilon) = E_0^{\text{m}} + (P_{ij}^{\text{sta}} - P_{ij}^{\text{col}}) \epsilon_{ij} + \frac{1}{2} (\alpha_{ijkl}^{\text{sta}} - \alpha_{ijkl}^{\text{col}}) \epsilon_{ij} \epsilon_{kl}. \quad (3.40)$$

La variation d'énergie due aux dipôles et polarisabilités des lacunes peut donc être calculée par

$$\Delta E^{\text{m}}(\epsilon) = (P_{ij}^{\text{sta}} - P_{ij}^{\text{col}}) \epsilon_{ij} + \frac{1}{2} (\alpha_{ijkl}^{\text{sta}} - \alpha_{ijkl}^{\text{col}}) \epsilon_{ij} \epsilon_{kl}. \quad (3.41)$$

Dans cette équation, on peut identifier différentes contributions : l'effet de taille ($\Delta E^{\text{m,iso}}$), l'effet de l'anisotropie des dipôles ($\Delta E^{\text{m,aniso}}$) et l'effet des polarisabilités ($\Delta E^{\text{m,pol}}$). Pour cela, on écrit $\Delta E^{\text{m}}(\epsilon)$ sous la forme :

$$\begin{aligned} \Delta E^{\text{m}}(\epsilon) &= \left(P_{ij}^{\text{sta}} - \frac{1}{3} \text{Tr}(\mathbf{P}^{\text{col}}) \delta_{ij} \right) \epsilon_{ij} \\ &+ (P_{ij}^{\text{sta}} - P_{ij}^{\text{col}}) \epsilon_{ij} - \left(P_{ij}^{\text{sta}} - \frac{1}{3} \text{Tr}(\mathbf{P}^{\text{col}}) \delta_{ij} \right) \epsilon_{ij} \end{aligned} \quad (3.42)$$

$$\begin{aligned} &+ \frac{1}{2} (\alpha_{ijkl}^{\text{sta}} - \alpha_{ijkl}^{\text{col}}) \epsilon_{ij} \epsilon_{kl} \\ &= \Delta E^{\text{m,iso}}(\epsilon) + \Delta E^{\text{m,aniso}}(\epsilon) + \Delta E^{\text{m,pol}}(\epsilon). \end{aligned} \quad (3.43)$$

Compte tenu des résultats présentés dans ce chapitre, il est intéressant de comparer la contribution des polarisabilités $\Delta E^{\text{m,pol}}(\epsilon)$ à celle de l'anisotropie au point col $\Delta E^{\text{m,aniso}}(\epsilon)$. Nous allons donc comparer ces contributions pour différents types de déformations : une traction perpendiculaire au saut (selon [001]), une traction dans la direction de saut et une dilatation.

Traction selon la direction [001]

Dans ce cas, la traction se fait perpendiculairement au saut :

$$\epsilon = \begin{pmatrix} -\nu\epsilon & 0 & 0 \\ 0 & -\nu\epsilon & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon \end{pmatrix}. \quad (3.44)$$

CHAPITRE 3 – ÉTUDE DE L'INFLUENCE DES INTERACTIONS ÉLASTIQUES ET DES DIPÔLES ÉLASTIQUES SUR LES FORCES DE PUIITS

On peut alors calculer que :

$$\Delta E^{\text{m,iso}}(\varepsilon) = -1.716\varepsilon + 3.431\nu\varepsilon \quad (3.45)$$

$$\Delta E^{\text{m,aniso}}(\varepsilon) = -2.699(1 + \nu)\varepsilon \quad (3.46)$$

$$\Delta E^{\text{m,pol}}(\varepsilon) = (7.453 + 154.012\nu - 53.023\nu^2)\varepsilon^2 \quad (3.47)$$

$$\Rightarrow \Delta E^{\text{m}}(\varepsilon) = \varepsilon(-4.415 + 0.732\nu) + \varepsilon^2(7.453 + 154.012\nu - 53.023\nu^2) \quad (3.48)$$

$$(3.49)$$

Pour une déformation de $\varepsilon = 1\%$, on a donc $\Delta E^{\text{m}}(\varepsilon) = -0.0361$ eV, avec $\Delta E^{\text{m,iso}}(\varepsilon) = -0.0051$ eV, $\Delta E^{\text{m,aniso}}(\varepsilon) = -0.0364$ eV et $\Delta E^{\text{m,pol}}(\varepsilon) = 0.0055$ eV. On peut donc voir ici que la variation de l'énergie de migration est presque uniquement due à l'anisotropie au point col. Les polarisabilités ne contribuent que très peu à l'énergie de migration.

Traction selon la direction [110]

La traction se fait dans la direction du saut :

$$\varepsilon = \begin{pmatrix} \varepsilon \left(\frac{1-\nu}{2} \right) & \varepsilon \left(\frac{1+\nu}{2} \right) & 0 \\ \varepsilon \left(\frac{1+\nu}{2} \right) & \varepsilon \left(\frac{1-\nu}{2} \right) & 0 \\ 0 & 0 & -\nu\varepsilon \end{pmatrix}. \quad (3.50)$$

On peut alors calculer que :

$$\Delta E^{\text{m,iso}}(\varepsilon) = -1.716\varepsilon + 3.431\nu\varepsilon \quad (3.51)$$

$$\Delta E^{\text{m,aniso}}(\varepsilon) = -1.644(1 + \nu)\varepsilon \quad (3.52)$$

$$\Delta E^{\text{m,pol}}(\varepsilon) = (-30.963 + 99.269\nu - 69.350\nu^2)\varepsilon^2 \quad (3.53)$$

$$\Rightarrow \Delta E^{\text{m}}(\varepsilon) = \varepsilon(-0.072 + 5.075\nu) + \varepsilon^2(-30.963 + 99.269\nu - 69.350\nu^2) \quad (3.54)$$

$$(3.55)$$

Pour une déformation de $\varepsilon = 1\%$, on a alors $\Delta E^{\text{m}}(\varepsilon) = 0.0170$ eV, avec $\Delta E^{\text{m,iso}}(\varepsilon) = -0.0051$ eV, $\Delta E^{\text{m,aniso}}(\varepsilon) = 0.0222$ eV et $\Delta E^{\text{m,pol}}(\varepsilon) = 0.0005$ eV. Ici encore, la variation de l'énergie de migration est presque uniquement due à l'anisotropie au point col.

Dilatation

Dans ce cas, la déformation est donnée par :

$$\varepsilon = \begin{pmatrix} \varepsilon & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon \end{pmatrix}. \quad (3.56)$$

On a donc :

$$\Delta E^{\text{m,iso}}(\boldsymbol{\varepsilon}) = -5.147\varepsilon \quad (3.57)$$

$$\Delta E^{\text{m,aniso}}(\boldsymbol{\varepsilon}) = 0 \quad (3.58)$$

$$\Delta E^{\text{m,pol}}(\boldsymbol{\varepsilon}) = -199.582\varepsilon^2 \quad (3.59)$$

$$\Rightarrow \Delta E^{\text{m}}(\boldsymbol{\varepsilon}) = -5.147\varepsilon - 199.582\varepsilon^2 \quad (3.60)$$

$$(3.61)$$

Ici, en prenant $\varepsilon = 1\%$, on obtient $\Delta E^{\text{m}}(\boldsymbol{\varepsilon}) = 0.0714 \text{ eV}$, avec $\Delta E^{\text{m,iso}}(\boldsymbol{\varepsilon}) = -0.0515 \text{ eV}$, $\Delta E^{\text{m,aniso}}(\boldsymbol{\varepsilon}) = 0 \text{ eV}$ et $\Delta E^{\text{m,pol}}(\boldsymbol{\varepsilon}) = -0.0200 \text{ eV}$. Dans ce cas, l'effet de taille est prépondérant, la contribution de l'anisotropie est nulle et la variation de l'énergie de migration due aux polarisabilités diaélastiques est significative.

Cette étude simple de l'influence de polarisabilité suffit pour constater qu'elle dépend très fortement de la déformation locale, surtout dans les zones où la déformation prend des valeurs supérieures à 1% (en s'approchant des puits par exemple). Les polarisabilités pourraient donc modifier les chemins de migration des lacunes, en particulier vers la dislocation. Il est donc difficile de conclure ici sur leur influence sur les forces de puits. Des calculs de forces de puits prenant en compte les polarisabilités seraient nécessaires pour quantifier précisément leur influence.

3.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons calculé les forces de puits d'objets présents dans les microstructures irradiées (dislocation droite, cavité et boucles de dislocation) en prenant en compte les interactions élastiques. Pour cela, nous avons réalisé des simulations OKMC qui permettent de décrire précisément les défauts ponctuels.

Les défauts ponctuels sont d'abord représentés par leurs dipôles élastiques, déterminés en DFT. Les calculs des forces de puits ont permis d'identifier le rôle des interactions élastiques et l'influence des différentes propriétés des défauts, c'est-à-dire des différents termes des dipôles.

Les résultats obtenus pour la dislocation droite, la cavité sphérique et la boucle de dislocation ont montré que les interactions élastiques ont une forte influence sur les valeurs de forces de puits, elles sont en particulier responsables des valeurs de biais positives obtenues pour les 3 puits étudiés.

En réalisant des simulations avec différentes approximations, nous avons montré que l'anisotropie au point col des défauts ponctuels a un rôle déterminant. Elle est en effet responsable d'une importante variation des forces de puits. En particulier dans le cas de la cavité sphérique, l'anisotropie au point col est entièrement responsable du biais positif car elle provoque la diminution de la force de puits de la cavité pour la lacune. Cette anisotropie modifie également les chemins de migration. Par exemple, elle est responsable de la présence d'une composante de flux de lacunes le long de la ligne de dislocation. Cette anisotropie modifie aussi les flux de lacunes vers la cavité, en courbant les chemins

de migration à l'approche de cette dernière. Enfin, dans le cas de la boucle de dislocation, nous avons montré que l'anisotropie au point col est responsable de la différence de biais obtenue entre la boucle interstitielle et la boucle lacunaire, en facilitant la migration de la lacune vers la boucle interstitielle.

Nous avons également déterminé les polarisabilités diaélastiques des défauts ponctuels. Les calculs DFT ont nécessité un nombre de points k beaucoup plus important pour obtenir la convergence, ce qui a aussi aboutit à une modification des dipôles élastiques. Ceux-ci présentent les mêmes caractéristiques que ceux que nous avons utilisés pour calculer les forces de puits, et ne remettent donc pas en cause nos résultats. Une étude succincte de l'effet des polarisabilités sur l'énergie de migration des lacunes semble montrer que celles-ci pourraient influencer la migration des défauts vers les puits pour certains types de déformations.

Dans ce chapitre, nous avons étudié des configurations simples de réseau de puits. La prochaine étape est de quantifier les variations des forces de puits qui seraient dues à la présence de puits proches les uns des autres dans des microstructures, c'est-à-dire dues aux effets de voisinage. C'est l'objet du chapitre suivant.

Chapitre 4 –

Étude des effets de voisinage

Sommaire

4.1	Introduction	102
4.2	Création des microstructures	102
4.2.1	Méthode	102
4.2.2	Résultats : distributions de tailles d’amas	106
4.3	Étude des forces de puits dans les microstructures	109
4.3.1	Sélection des microstructures	109
4.3.2	Calcul des forces de puits	109
4.3.3	Calcul de l’erreur sur les forces de puits	111
4.3.4	Valeurs sur réseau	112
4.4	Amas sphériques sans interactions élastiques	112
4.4.1	Définition de l’étude	112
4.4.2	Forces de puits dans les microstructures	113
4.4.3	Analyse	116
4.4.4	Effet de la densité	120
4.5	Amas toriques sans interactions élastiques	122
4.5.1	Définition de l’étude	122
4.5.2	Forces de puits dans les microstructures	122
4.5.3	Analyse	125
4.5.4	Effet de la géométrie du puits	127
4.6	Amas toriques avec interactions élastiques	128
4.6.1	Définition de l’étude	128
4.6.2	Force de puits	129
4.6.3	Analyse	131
4.6.4	Effet des interactions élastiques sur les forces de puits	132
4.7	Résumé	133

4.1 Introduction

Dans ce chapitre, l'objectif est d'identifier les effets de voisinage qui surviennent dans des microstructures et qui sont dus à la présence de plusieurs puits proches les uns des autres. En particulier, c'est la traduction de ces effets sur les valeurs de forces de puits qui nous intéresse.

Pour les identifier, nous allons calculer les forces de puits dans des microstructures contenant plusieurs puits, dans une organisation différente du réseau périodique traité précédemment. Comme les effets étudiés ici sont finement liés aux corrélations spatiales, nous poursuivons cette étude avec des simulations OKMC.

Les microstructures étudiées dans cette partie sont uniquement composées d'amas interstitiels, prenant la forme de boucles de dislocation. Nous allons nous intéresser à trois modèles pour l'absorption des défauts ponctuels, correspondant à ceux régulièrement utilisés en DA. Nous procédons par ordre croissant de complexité vis-à-vis de la prise en compte en DA :

- Dans le premier cas, l'absorption des interstitiels par les boucles se fait sur la sphère englobant la boucle interstitielle. Les interactions élastiques ne sont pas prises en compte.
- Dans le second cas, l'absorption se fait directement sur les tores qui constituent les boucles, également sans interactions élastiques.
- Dans le troisième cas, l'absorption se fait directement sur les tores, avec, de plus, prise en compte des interactions élastiques.

Pour étudier les forces de puits, nous allons procéder en deux étapes.

La première étape consiste à créer les microstructures qui seront étudiées, par des simulations OKMC, en utilisant les 3 modèles. La méthode utilisée pour créer ces microstructures et les distributions de tailles d'amas obtenues sont présentées dans la section 4.2.

La seconde étape est de calculer les forces de puits dans ces microstructures, en utilisant pour chaque cas le même modèle d'absorption que celui utilisé pour former les microstructures, à la différence près que les puits sont supposés fixes. La méthode employée pour réaliser ce calcul est présentée dans la section 4.3. Les résultats sont ensuite présentés pour chaque cas (section 4.4 à 4.6).

4.2 Création des microstructures

4.2.1 Méthode

La création de microstructures se fait par simulation OKMC de l'agglomération d'interstitiels (processus schématisé sur la figure 4.1). Les lacunes ne sont pas considérées dans la suite de ce chapitre.

On démarre avec une boîte de simulation vide, dans laquelle les interstitiels sont introduits avec un taux de création G_{μ} , l'indice μ désignant ici les grandeurs relatives

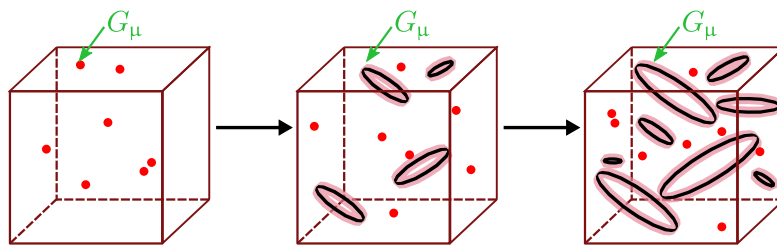


FIGURE 4.1 – Illustration du processus de formation de microstructures en OKMC.

à la phase de création des microstructures. Les interstitiels migrent jusqu'à ce qu'ils se rencontrent, formant alors des boucles immobiles. Celles-ci croissent par absorption des mono-interstitiels mobiles. On utilise des conditions aux limites périodiques. Différentes microstructures sont obtenues en faisant varier la valeur du taux de création de défauts ponctuels G_μ , pour un temps de simulation t_μ identique.

Agglomération des interstitiels

Deux interstitiels s'agglomèrent pour former une boucle si la distance d entre ces deux défauts vérifie

$$d \leq 2r_{\text{DP}} + d_{\text{réac}}, \quad (4.1)$$

où r_{DP} est le rayon de l'interstitiel et $d_{\text{réac}}$ est la distance de réaction. Les interactions élastiques entre les défauts ponctuels sont négligées dans tous les cas de figure. Ainsi la migration des interstitiels n'est pas affectée par la présence d'autres interstitiels. En d'autres termes, seuls les puits pourront influencer la migration des défauts. En leur absence, les défauts migrent selon une marche aléatoire.

Absorption par les boucles interstitielles

Les boucles ainsi formées sont immobiles. Il s'agit de boucles de Frank, situées dans les plans $\{111\}$, de vecteur de Burgers $\mathbf{b} = \frac{a_0}{3}\langle 111 \rangle$, correspondant aux boucles étudiées dans le chapitre 3. On utilise les mêmes paramètres matériaux que pour le chapitre 3.

Comme les simulations sont réalisées à 300 K, il n'y a pas de dissociation des amas : seule l'agglomération est considérée.

Le rayon r_L de la boucle dépend du nombre d'interstitiels qui la constituent. Il est donné par

$$r_L = \sqrt{\frac{N_i \Omega}{\pi b}}, \quad (4.2)$$

où N_i est le nombre d'interstitiels qui constituent la boucle, Ω est le volume atomique ($\Omega = 1.66 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^3$) et b est la norme du vecteur de Burgers.

L'orientation de chaque boucle est déterminée à l'instant où les deux interstitiels se rencontrent, en choisissant aléatoirement une orientation parmi les quatre possibles dans le réseau CFC, c'est-à-dire en choisissant un plan de type $\{111\}$ comme plan d'habitat.

Si les interactions élastiques sont prises en compte, le champ de déformation généré par chaque boucle est pris en compte dès que la boucle est formée, c'est-à-dire pour un di-interstitiel et tous les amas de plus grande taille. On utilise la méthode FMM (voir chapitre 2, section 2.3) pour permettre un calcul efficace du champ de déformation total ε , même quand un grand nombre de boucles sont présentes. La migration des défauts ponctuels est ensuite impactée par le champ de déformation, comme dans les calculs précédents (chapitre 3). Le choix de l'orientation d'une boucle qui se forme dans le champ de déformation d'une autre boucle reste cependant aléatoire parmi les quatre possibles.

Les boucles peuvent ensuite croître en absorbant les interstitiels. Les conditions d'absorption des interstitiels dépendent du cas étudié. Deux possibilités sont traitées, correspondant à celles indiquées plus haut :

- Absorption sur les sphères englobantes (figure 4.2 (a)). Dans ce cas, le défaut ponctuel est absorbé si la distance d qui sépare le centre du défaut ponctuel de celui de la boucle vérifie

$$d \leq r_L + r_c + r_{DP}, \quad (4.3)$$

où r_{DP} est le rayon du défaut ponctuel, r_L est le rayon de la boucle, qui est un tore de section circulaire de rayon r_c .

- Absorption sur les tores (figure 4.2 (b)). Le défaut ponctuel est absorbé si la distance d entre le défaut ponctuel et le centre de la section circulaire vérifie

$$d \leq r_c + r_{DP}. \quad (4.4)$$

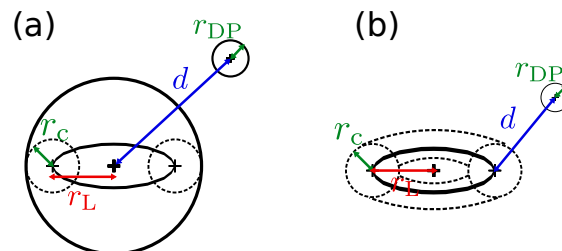


FIGURE 4.2 – Conditions d'absorption d'un interstitiel (de rayon r_{DP}) par une boucle de dislocation. (a) Absorption sur la sphère englobante. (b) Absorption sur le tore.

Définition des cas traités

Comme indiqué ci-dessus, les microstructures sont créées dans les trois cas suivants :

- Cas 1 :** Absorption sur les sphères englobant les boucles de dislocations, sans interactions élastiques,
- Cas 2 :** Absorption sur les tores, sans interactions élastiques,
- Cas 3 :** Absorption sur les tores, avec interactions élastiques.

Dans ce chapitre la prise en compte des interactions élastiques dans les simulations est faite en utilisant les dipôles élastiques utilisés au chapitre 3, c'est-à-dire les valeurs (3.9) à

(3.12). Les forces de puits sont ensuite calculées pour chacun de ces cas. Notre objectif est d’abord de comparer les forces de puits obtenues dans le cas d’une configuration de réseau de puits (méthode du chapitre 3) à celles obtenues dans les microstructures. Mais il s’agit également de comparer les valeurs issues des calculs OKMC dans les microstructures aux modèles utilisés en DA. Pour ce faire, on utilise les valeurs des paramètres données dans le tableau 4.1. Les choix de r_{DP} et $d_{\text{réac}}$ permettent d’avoir les mêmes conditions de réaction de deux interstitiels dans les 3 cas. De plus, ces paramètres assurent la compatibilité avec les modèles analytiques, qui seront présentés dans chaque section, pour l’absorption d’un interstitiel avec un amas (notamment, $r_{\text{DP}} = 0$ pour les modèles d’absorption sur les tores). A cause de ces paramètres, il n’est pas possible de comparer les résultats du cas 1 à ceux du cas 2. Pour pouvoir les comparer des simulations spécifiques sont réalisées (voir sous-section 4.5.4).

Cas	Absorption	Interactions	r_c	r_{DP}	$d_{\text{réac}}$
1	sphère englobante (fig. 4.2 (a))	non	0	r_{at}	0
2	tore (fig. 4.2 (b))	non	$2b$	0	$2r_{\text{at}}$
3	tore (fig. 4.2 (b))	oui	$2b$	0	$2r_{\text{at}}$

TABLEAU 4.1 – Valeurs des paramètres utilisées pour former les microstructures dans les cas 1, 2 et 3. Ici, b est le module du vecteur de Burgers, et r_{at} est le rayon atomique. Dans ce chapitre, on utilise la valeur $r_{\text{at}} = \sqrt{V_{\text{at}}/(\pi b)} = 0.1503$ nm pour assurer la compatibilité avec le code CRESCENDO.

Taux de création G_{p} et taille de boîte

Pour cette étude, les microstructures sont formées en simulant un temps de $t_{\text{p}} = 10^{-3}$ s. Différentes densités de puits sont obtenues en faisant varier le taux de création de défauts ponctuels G_{p} entre 10^{-3} dpa.s $^{-1}$ et 10^{-1} dpa.s $^{-1}$. Cette méthode permet d’obtenir des densités différentes, sans passer par des temps de simulation très longs qui nous seraient inaccessibles.

Afin d’obtenir une distribution de taille d’amas convergée, environ un millier de simulations indépendantes sont réalisées pour chaque cas. Les distributions sont ensuite obtenues en moyennant les concentrations d’amas dans les boîtes.

Les boîtes considérées sont cubiques, de côté de longueur l . Les tailles de boîtes sont limitées par le temps de calcul accessible numériquement. Cependant, dans les boîtes de taille trop petite, en général un seul puits peut être formé puisqu’il absorbe facilement les interstitiels dès sa formation, rendant très rare la germination de nouvelles boucles. De plus, les conditions aux limites contraignent les interstitiels à interagir entre eux et avec le seul puits créé dans la boîte. Les amas obtenus sont donc de taille anormalement grande. C’est pourquoi les résultats varient avec la taille de boîte, si cette dernière n’est pas suffisante. Des tailles de boîtes croissantes sont donc simulées pour vérifier que les distributions obtenues sont bien convergées avec la taille de boîte. La taille minimum permettant d’obtenir une distribution convergée diminue avec le taux de création,

puisque pour un taux de création G_{pi} élevé, les formations de nouvelles boucles sont plus probables du fait d'un plus grand nombre d'interstitiels présents en même temps dans la boîte. La convergence a donc été vérifiée pour tous les cas traités afin de sélectionner les bonnes tailles de boîtes. Un exemple est donné sur la figure 4.3 : la taille $l = 50$ nm ne permet pas d'obtenir une distribution convergée, tandis que les distributions obtenues avec $l = 100$ et $l = 200$ nm sont identiques. On en déduit que ces deux dernières sont bien convergées. On pourra donc conserver les microstructures formées avec ces deux dernières tailles de boîtes pour y étudier les forces de puits.

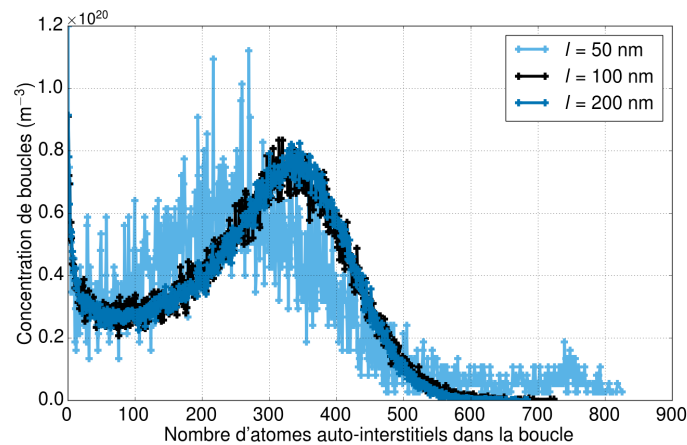


FIGURE 4.3 – Exemple de distributions obtenues avec un taux de création de $G_{\text{pi}} = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$, pour le cas 1. Dans ce cas, la taille de boîte $l = 50$ nm ne permet pas d'obtenir une distribution de tailles convergée, tandis que les tailles supérieures ($l = 100$ et $l = 200$ nm) donnent des distributions identiques.

4.2.2 Résultats : distributions de tailles d'amas

Les distributions de tailles d'amas obtenues à partir des microstructures formées en OKMC sont illustrées sur les figures 4.4 à 4.6. Les densités de boucles obtenues dans chaque cas sont données dans le tableau 4.2, et les rayons moyens sont indiqués dans le tableau 4.3.

Ces distributions servent ici de références : les forces de puits seront étudiées dans les microstructures obtenues pour des tailles de boîtes de $l = 100$ à $l = 300$ nm permettant d'obtenir des distributions convergées.

	Taux de création G_{μ}		
	$10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1}$	$10^{-2} \text{ dpa.s}^{-1}$	$10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$
Cas 1	$1.68 \cdot 10^{21}$	$6.27 \cdot 10^{21}$	$2.22 \cdot 10^{22}$
Cas 2	$1.38 \cdot 10^{21}$	$5.60 \cdot 10^{21}$	$2.16 \cdot 10^{22}$
Cas 3	$8.31 \cdot 10^{20}$	$3.15 \cdot 10^{21}$	$1.15 \cdot 10^{22}$

TABLEAU 4.2 – Densités de boucles ρ , exprimées en m^{-3} , obtenues dans les microstructures formées dans les 3 cas étudiés, avec les différentes valeurs de G_{μ} .

	Taux de création G_{μ}		
	$10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1}$	$10^{-2} \text{ dpa.s}^{-1}$	$10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$
Cas 1	0.95	1.54	2.59
Cas 2	1.03	1.63	2.62
Cas 3	1.34	2.18	3.58

TABLEAU 4.3 – Rayons moyens des boucles \bar{r} , exprimées en nm, obtenues dans les microstructures formées dans les 3 cas étudiés, avec les différentes valeurs de G_{μ} .

Cas 1 : Absorption sur les sphères englobant les boucles de dislocation, sans interactions élastiques

Les distributions de tailles d'amas obtenues dans le cas 1 sont présentées sur la figure 4.4. Pour commencer, intéressons-nous aux densités de boucles présentes dans les boîtes de simulation pour les différentes valeurs de G_{μ} . Celles-ci sont indiquées sur la figure, et sont données dans le tableau 4.2. On constate que l'augmentation du taux de création de défauts ponctuels G_{μ} aboutit à une augmentation de la densité de boucles

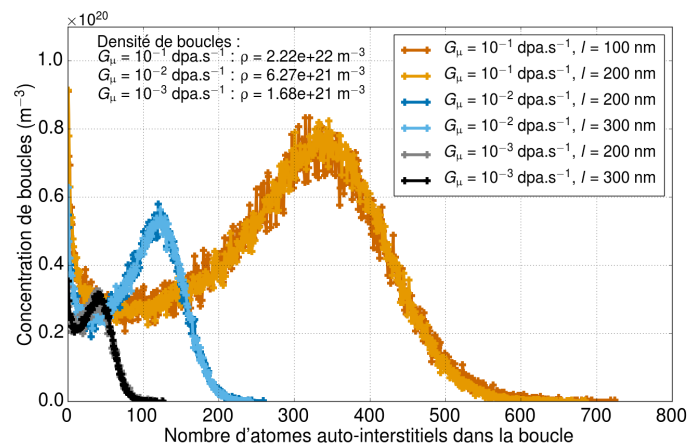


FIGURE 4.4 – Distributions obtenues pour le cas 1, avec les trois taux de création $G_{\mu} = 10^{-1}$, 10^{-2} et $10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1}$, pour différentes tailles de boîtes l .

présentes. Le rayon moyen des boucles présentes (ou de manière équivalente, le nombre moyen d'interstitiels qui les constituent) est également plus élevé pour les fortes valeurs de ce taux de création. Comme indiqué précédemment, l'augmentation du taux de création pour former la microstructure est utilisée pour représenter des fractions volumiques importantes, typiques de celles obtenues aux fortes doses. Des taux de création supérieurs à 10^{-3} dpa.s $^{-1}$ sont relativement peu réalistes. En principe, les doses élevées devraient être obtenues avec 10^{-3} dpa.s $^{-1}$, pour des temps t_{μ} plus longs. Pour un taux de création plus faible, l'absorption de défauts par les boucles serait privilégiée par rapport à la nucléation de nouvelles boucles, car le nombre de défauts ponctuels présents en même temps dans la boîte est plus faible. La valeur de la densité de boucles et le rayon maximum atteint pour la valeur la plus élevée de G_{μ} ne peuvent donc pas être représentatifs de ce qui serait obtenu pour un taux G_{μ} plus faible et un temps simulé t_{μ} plus long.

Cas 2 : Absorption sur les tores, sans interactions élastiques

Les résultats sont présentés sur la figure 4.5. Comme pour le cas précédent, on constate que l'augmentation du taux de création G_{μ} se traduit par une augmentation de la densité et du rayon moyen des boucles. La densité évolue avec G_{μ} de façon très comparable aux cas des sphères, avec les valeurs indiquées dans le tableau 4.2.

C'est également le cas pour le rayon moyen des boucles présentes.

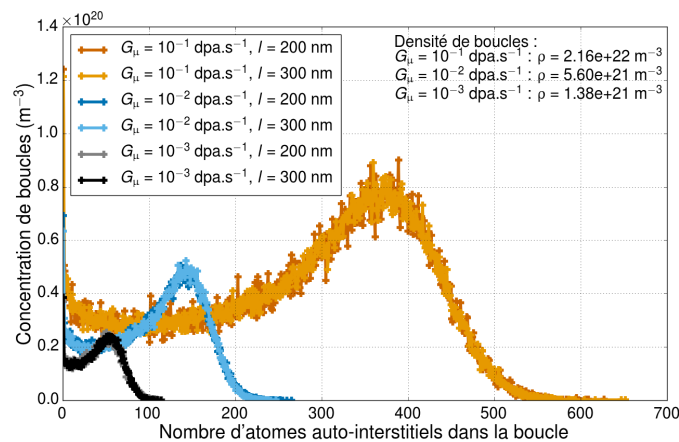


FIGURE 4.5 – Distributions obtenues pour le cas 2, avec les trois taux de création $G_{\mu} = 10^{-1}$, 10^{-2} et 10^{-3} dpa.s $^{-1}$, pour différentes tailles de boîtes l .

Cas 3 : Absorption sur les tores, avec interactions élastiques

Dans le cas où les interactions élastiques sont prises en compte, les résultats sont présentés sur la figure 4.6. Tout d'abord on remarque que les densités de puits, données dans le tableau 4.2, sont réduites par rapport au cas sans interaction traité dans le

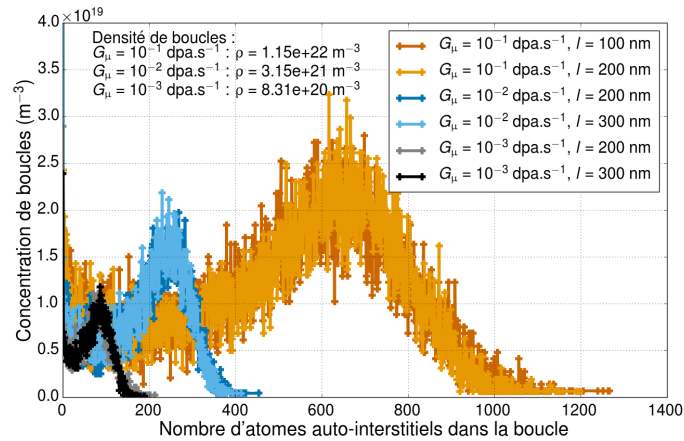


FIGURE 4.6 – Distributions obtenues pour le cas 3, avec les trois taux de création $G_{II} = 10^{-1}$, 10^{-2} et $10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1}$, pour différentes tailles de boîtes l .

paragraphe précédent. Pour une valeur de G_{II} donnée, la densité est presque réduite de moitié lorsque les interactions élastiques sont prises en compte. En revanche, les tailles de boucles augmentent, avec un rayon moyen supérieur de 30 à 40% aux valeurs obtenues sans interactions élastiques. Ceci indique que les interactions élastiques favorisent la croissance des boucles et diminuent les possibilités de germination, en permettant aux boucles d'attirer plus facilement les interstitiels.

4.3 Étude des forces de puits dans les microstructures

4.3.1 Sélection des microstructures

Pour calculer les forces de puits, les microstructures formées au bout du temps t_{II} sont figées : les boucles n'évoluent plus en absorbant les interstitiels, et les interstitiels ne forment plus de nouvelles boucles.

Pour chaque cas étudié et chaque valeur de G_{II} (c'est-à-dire chaque densité de boucles) les forces de puits sont calculées dans un petit nombre de microstructures (typiquement, 10 boîtes de simulations). Nous intégrons des boîtes de tailles différentes dans l'analyse, mais par soucis de simplicité, dans la suite les formules sont écrites pour une taille de boîte unique. Le nombre de boîtes étudiées pour chaque cas et chaque valeur de G_{II} est noté M ($M = 10$).

4.3.2 Calcul des forces de puits

De manière analogue au chapitre 3, l'évaluation des valeurs de forces de puits dans les microstructures nécessite de connaître la concentration de défauts ponctuels dans la boîte en régime permanent. Un nouveau taux de création de défauts ponctuels G est donc

fixé, permettant d'avoir une bonne précision sur la valeur du nombre moyen de défauts ponctuels dans chaque boîte en régime permanent. Une valeur unique de G est utilisée pour les M boîtes de simulation. Pour cette étape, on utilise toujours des conditions aux limites périodiques.

Le temps simulé pour ce calcul, noté t_{sim} , est fixé afin d'obtenir une bonne convergence de la valeur de concentration moyenne de défauts ponctuels. La période transitoire durant laquelle s'établit le régime permanent est exclue pour le calcul des forces de puits : t_{sim} est déterminé à partir du début du régime permanent.

Pour chaque puits j présent dans les M microstructures, la force de puits est déduite du flux de défauts ponctuels vers cette boucle. Pour cela, le nombre de défauts ponctuels absorbés par cette boucle N_j^{abs} durant la simulation (c'est-à-dire durant le temps t_{sim}) est compté. On en déduit le flux vers cette boucle :

$$\varphi_j = \frac{N_j^{\text{abs}}}{t_{\text{sim}}}. \quad (4.5)$$

Les interstitiels sont absorbés par les boucles avec les mêmes conditions que celles utilisées pour former les microstructures (cas 1, 2 ou 3).

La force de puits est ensuite déterminée pour chaque puits dans les microstructures par

$$k_j^2 = \frac{\varphi_j}{D\bar{N}}, \quad (4.6)$$

(voir figure 4.7) où D est le coefficient de diffusion des interstitiels. Dans cette équation, \bar{N} est le nombre moyen de défauts ponctuels présent en régime permanent. Comme la densité de boucles varie d'une boîte à l'autre, le nombre moyen de défauts ponctuels en régime permanent peut varier entre ces boîtes. Pour améliorer la précision sur ce nombre, et ne pas induire de différence entre les forces de puits due à ce dernier, il est donc calculé comme la moyenne sur les M boîtes, ce qui revient à cumuler les données obtenues sur toutes les boîtes :

$$\bar{N} = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \bar{N}_m, \quad (4.7)$$

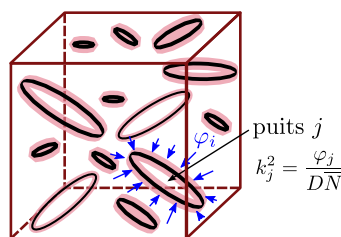


FIGURE 4.7 – Évaluation de la force de puits de chaque boucle à partir du flux de défauts ponctuels vers cette dernière.

où \bar{N}_m est le nombre moyen de défauts ponctuels en régime permanent dans la boîte m . Cette méthode équivaut à considérer que les M boîtes considérées sont concaténées en une seule grande boîte, qui n'aurait pas pu être étudiée à cause des limitations en temps de calcul. Ceci est possible grâce à la valeur de G identique pour les M boîtes.

Les forces de puits obtenues dans les microstructures sont utilisées pour déterminer les efficacités d'absorption, pour chaque puits j , par

$$\kappa_j = \frac{k_j^2}{\rho}. \quad (4.8)$$

Dans cette équation, ρ est la densité de présence de chaque puits :

$$\rho = \frac{1}{l^3}. \quad (4.9)$$

Ceci permet d'obtenir des valeurs indépendantes de la taille de boîte. La taille de boîte n'est donc pas prise en compte dans cette section.

4.3.3 Calcul de l'erreur sur les forces de puits

Les valeurs de forces de puits sont mesurées avec une erreur statistique. Les défauts ponctuels ne sentant pas la présence des autres défauts ponctuels, les absorptions successives sont des phénomènes indépendants, on peut donc évaluer les barres d'erreurs sur les valeurs de forces de puits de la façon suivante.

Pour un puits donné, la force de puits s'écrit (en omettant l'indice j désignant le puits) :

$$k^2 = \frac{N^{\text{abs}}}{Dt\bar{N}}. \quad (4.10)$$

Ainsi,

$$\frac{\Delta k^2}{k^2} = \frac{\Delta N^{\text{abs}}}{N^{\text{abs}}} + \frac{\Delta \bar{N}}{\bar{N}}. \quad (4.11)$$

Le premier terme du membre de droite représente l'erreur sur le nombre de défauts absorbés. Il est calculé en annexe D. Au terme de ce calcul, on obtient

$$\frac{\Delta N^{\text{abs}}}{N^{\text{abs}}} = \sqrt{\frac{N_{\text{tot}} - N^{\text{abs}}}{N_{\text{tot}} N^{\text{abs}}}}, \quad (4.12)$$

soit

$$\frac{\Delta N^{\text{abs}}}{N^{\text{abs}}} \sim \sqrt{\frac{1}{N^{\text{abs}}}}. \quad (4.13)$$

Dans ces équations, N_{tot} est le nombre total de défauts absorbés, c'est-à-dire $N_{\text{tot}} \simeq Gt_{\text{sim}}$.

Le second terme du membre de droite représente l'erreur sur le nombre moyen de défauts ponctuels présents en régime permanent. D'après les résultats obtenus au chapitre 3, pour des temps simulés suffisamment longs, cette erreur est faible. Elle varie en

théorie comme $\frac{1}{\sqrt{N_{\text{tot}}}}$, ce qui est très inférieur à l'erreur sur le nombre de défauts absorbés $\frac{1}{\sqrt{N_{\text{abs}}}}$.

On obtient donc l'erreur sur la force de puits $\sigma = \frac{\Delta k^2}{k^2}$ par la relation :

$$\sigma = \frac{\Delta N_{\text{abs}}}{N_{\text{abs}}} = \sqrt{\frac{N_{\text{tot}} - N_{\text{abs}}}{N_{\text{tot}} N_{\text{abs}}}}, \quad (4.14)$$

soit

$$\sigma \sim \sqrt{\frac{1}{N_{\text{abs}}}}. \quad (4.15)$$

Nous avons vérifié que cette expression représente bien l'erreur sur la force de puits, en calculant la force de puits de certains puits, dans une microstructure donnée, sur 500 simulations indépendantes et pour différentes valeurs de N_{tot} . Cette étude est présentée en annexe D. On utilisera donc l'équation (4.15) pour déterminer les erreurs statistiques qui seront utilisées dans ce chapitre. Dans la suite, les barres d'erreurs indiquées correspondent à 3σ .

4.3.4 Valeurs sur réseau

Les valeurs de forces de puits obtenues dans les microstructures sont comparées à celles obtenues sur un réseau de puits. Ces valeurs sont obtenues selon la méthode décrite dans le chapitre 3, dans des boîtes cubiques, contenant une seule boucle. La dimension de ces boîtes est définie pour avoir des densités identiques à celles obtenues dans les microstructures. Ces tailles de boîtes $l_{\text{réseau}}$ seront donc déterminées par

$$l_{\text{réseau}} = (\bar{\rho})^{-\frac{1}{3}}. \quad (4.16)$$

Dans cette équation, $\bar{\rho}$ est la densité moyenne de boucles pour un taux de création donné, calculée par

$$\bar{\rho} = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \bar{\rho}_m, \quad (4.17)$$

où $\bar{\rho}_m = \frac{N_m^{\text{puits}}}{V}$ est la densité de puits dans la boîte m , cette boîte étant de volume V et contenant N_m^{puits} boucles.

4.4 Amas sphériques sans interactions élastiques

4.4.1 Définition de l'étude

Ici, on s'intéresse aux microstructures obtenues dans le cas 1 : absorption des interstitiels sur les sphères englobantes, sans interactions élastiques. On étudie les microstructures obtenues pour 3 valeurs du taux de création G_{p} . 5 boîtes de simulation sont considérées pour $G_{\text{p}} = 10^{-1}$ dpa.s⁻¹, et 10 boîtes de simulation pour $G_{\text{p}} = 10^{-2}$ dpa.s⁻¹ et $G_{\text{p}} = 10^{-3}$ dpa.s⁻¹.

Les valeurs de forces de puits obtenues pour ces séries de calculs sont comparées aux valeurs analytiques correspondant aux cavités sphériques :

- Modèle de Laplace (équation (1.58)), considérant que les puits sont immergés dans un milieu infini, c'est-à-dire $Z = 1$, soit

$$\kappa_i = 4\pi(r_L + r_{DP} + \varepsilon). \quad (4.18)$$

Ici, on utilise $\varepsilon = -\frac{a_0}{4}$ pour prendre en compte les sauts discrets en OKMC (cf. chapitre 3).

- Modèle de Wiedersich (équation (1.60)), prenant en compte un milieu fini de taille R et pour lequel on utilise également la valeur $r_L + r_{DP} + \varepsilon$. La taille R est déterminée à partir de la densité moyenne de puits $\bar{\rho}$ dans les boîtes de simulation (eq. (4.17)) par la relation

$$R = \left(\frac{3}{4\pi\bar{\rho}} \right)^{\frac{1}{3}}. \quad (4.19)$$

4.4.2 Forces de puits dans les microstructures

Les valeurs de κ obtenues dans les microstructures formées avec les différentes valeurs de G_{μ} sont présentées sur la figure 4.8. On rappelle que toutes les microstructures ont été formées en un temps $t_{\mu} = 10^{-3}$ s. Les barres d'erreur calculées à partir de l'équation (4.15) sont indiquées sur toutes les valeurs.

On peut d'abord constater que, comme attendu, les valeurs des efficacités d'absorption augmentent globalement avec le rayon de boucle, pour toutes les densités de boucles étudiées.

En observant les valeurs de forces de puits obtenues dans les microstructures, on voit apparaître une dispersion des valeurs de forces de puits, c'est-à-dire des valeurs différentes de κ pour des boucles de même rayon. Cette dispersion semble s'amplifier quand la densité de boucles augmente.

Pour quantifier cette dispersion, un écart type est calculé pour un rayon r_L donné. Pour cela, on définit une largeur d'intervalle Δr . On calcule ensuite la valeur moyenne $\bar{\kappa}(r, \Delta r)$ et l'écart type des valeurs de κ pour les N boucles de rayon r_i ($i \in \{1, \dots, N\}$) vérifiant

$$r_L - \frac{\Delta r}{2} < r_i \leq r_L + \frac{\Delta r}{2}. \quad (4.20)$$

La valeur de l'écart type indiqué ci-dessous utilise la notation suivante :

$$\sigma(r, \Delta r) = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (\kappa_i - \bar{\kappa}(r, \Delta r))^2}. \quad (4.21)$$

Les écarts types calculés pour les trois dispersions de forces de puits de la figure 4.8 sont :

$$G_{\mu} = 10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1} : \sigma(r = 0.9, \Delta r = 0.3) = 1.39 \text{ sur 123 points,}$$

$$G_{\mu} = 10^{-2} \text{ dpa.s}^{-1} : \sigma(r = 1.5, \Delta r = 0.3) = 1.80 \text{ sur 334 points,}$$

$$G_{\mu} = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1} : \sigma(r = 2.7, \Delta r = 0.3) = 3.94 \text{ sur 219 points,}$$

où r et Δr sont exprimés en nm. On a ici regardé la dispersion à des rayons jugés représentatifs de la distribution des forces de puits pour valeur de G_{μ} . Ainsi, on voit que si la dispersion reste comparable pour les deux densités plus faibles, elle devient beaucoup plus forte pour la densité de boucles la plus élevée. Cependant, la comparaison des dispersions est ici difficile, car les distributions de forces de puits obtenues ne permettent pas la comparaison à des rayons identiques.

Regardons maintenant les valeurs obtenues dans la configuration du réseau. Ces valeurs se situent sur le dessus de la distribution, en particulier pour les fortes densités et les rayons importants, c'est notamment visible sur la figure 4.8 (c). Ainsi, l'organisation spatiale non périodique des boucles a tendance à faire diminuer les forces de puits des boucles par rapport au cas du réseau périodique.

Enfin, observons les forces de puits obtenues avec les deux modèles analytiques. Tout d'abord, le modèle de Wiedersich (eq. (1.60)) prenant en compte le milieu fini estime bien les valeurs obtenues sur le réseau de puits. La correction en $a_0/4$ permet un très bon accord entre ces valeurs. Ainsi, ce modèle représente relativement bien les valeurs obtenues dans les microstructures pour les faibles densités et rayons, mais surestime les valeurs obtenues pour les rayons supérieurs à environ 1 nm et pour les fortes densités. Le modèle de Laplace en milieu infini (eq. (1.58)) estime bien les valeurs aux plus faibles densités, mais n'est pas satisfaisant aux densités plus fortes, car il ne représente pas la tendance de variation des forces de puits avec le rayon de la boucle, puisqu'il correspond à une évolution linéaire de κ avec le rayon. On note que des valeurs de forces de puits se situent sous la courbe du modèle de Laplace.

En résumé, nous observons que les forces de puits des boucles dans les microstructures sont dispersées. Cette dispersion est notamment très importante pour la plus forte densité étudiée. Ces résultats semblent indiquer un lien entre la densité de boucles et la dispersion des valeurs de forces de puits. Les valeurs sur le réseau sont de plus supérieures à la majorité des valeurs obtenues dans les microstructures.

Nous allons donc chercher à comprendre l'origine de la dispersion des forces de puits. Il est également nécessaire d'expliquer pourquoi les valeurs obtenues sur le réseau de puits sont situées sur le dessus des distributions de forces de puits, et comment des valeurs peuvent se situer sous la courbe du modèle de Laplace. Enfin, nous devons également nous assurer du lien entre la densité de boucles et la dispersion des valeurs. En effet, il est difficile d'identifier le rôle de la densité de boucles sur la figure 4.8, car les rayons de boucles obtenus pour la densité la plus faible (figure 4.8 (a)) sont plus petits que ceux obtenus pour la densité la plus forte (figure 4.8 (c)). On ne peut donc pas comparer la dispersion aux rayons où celle-ci est la plus marquée (par exemple, pour $r_L = 2$ nm).

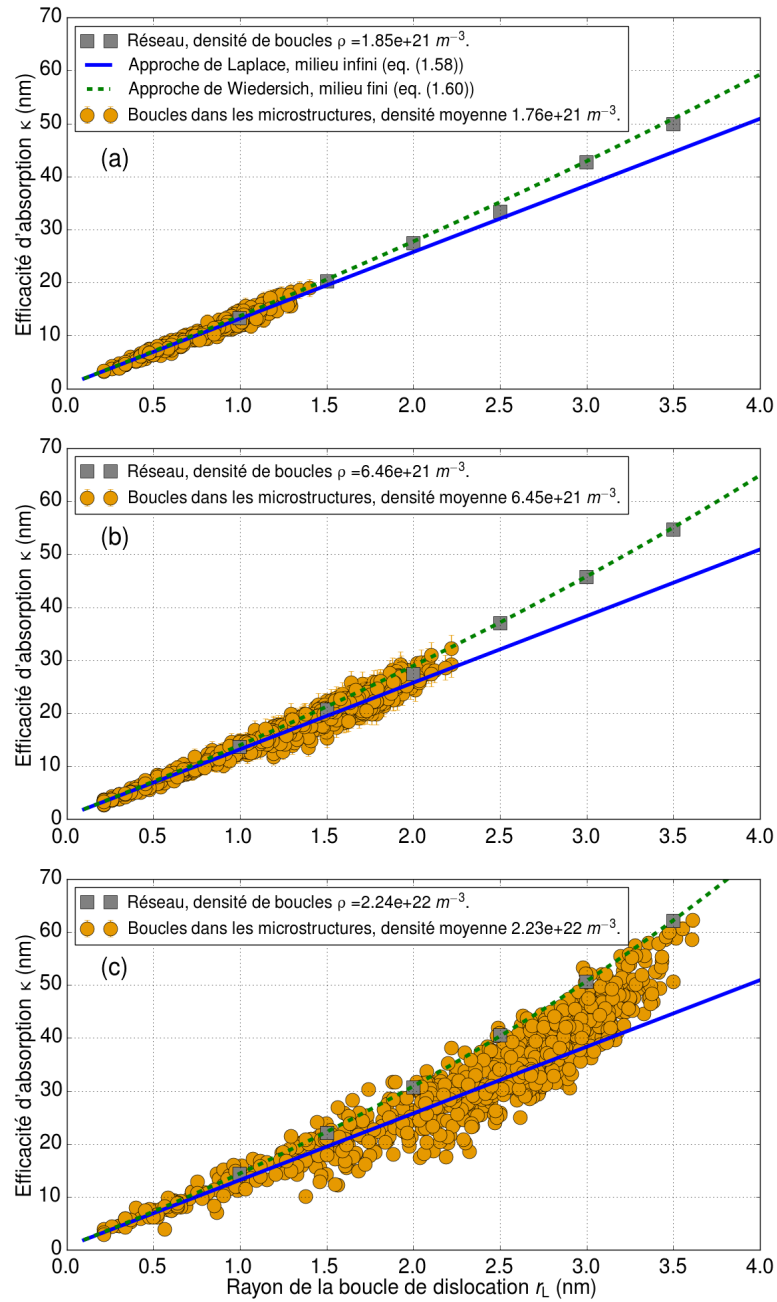


FIGURE 4.8 – Efficacités d’absorption $\kappa = k^2/\rho$ obtenues dans le cas 1 (absorption sur les sphères englobantes sans interactions élastiques), dans les microstructures formées en $t_{\mu} = 10^{-3} \text{ s}$ avec (a) $G_{\mu} = 10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1}$, densité moyenne de puits de $1.76 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$, (b) $G_{\mu} = 10^{-2} \text{ dpa.s}^{-1}$, densité moyenne de puits de $6.45 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$, (c) $G_{\mu} = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$, densité moyenne de puits de $2.23 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$.

4.4.3 Analyse

Volumes de Voronoï

Afin de comprendre la cause de la dispersion des forces de puits, on cherche à les relier à l'environnement local de chaque boucle. Pour cela, on calcule les volumes de Voronoï dans chaque microstructure. Il s'agit d'un découpage de l'espace, attribuant à chaque boucle la zone contenant tous les points de l'espace qui sont plus proches du centre de la boucle que de ceux des autres boucles. Ces volumes sont calculés à partir des positions des boucles dans chaque boîte, en utilisant le programme QHULL [168]. Le volume associé à chaque boucle est donc indépendant du rayon de cette dernière.

Un exemple de résultats de ces calculs est donné sur la figure 4.9, où les symboles sont colorés en fonction de la valeur des volumes de Voronoï, pour les microstructures obtenues avec $G_{\text{II}} = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$. Des résultats similaires sont obtenus pour les autres densités de boucles (les autres valeurs de G_{II}).

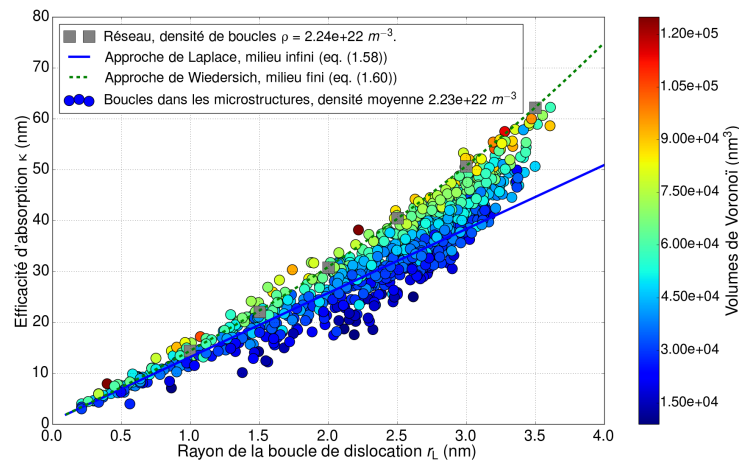


FIGURE 4.9 – Valeurs des efficacités d'absorption $\kappa = k^2/\rho$ et des volumes de Voronoï dans les microstructures obtenues avec $G_{\text{II}} = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$ pour le cas 1. Les valeurs des volumes de Voronoï pour chaque boucle sont indiquées par l'échelle de couleur.

On voit donc apparaître une corrélation entre la taille des volumes de Voronoï et les valeurs de forces de puits. Les forces de puits les plus élevées sont obtenues pour les volumes les plus grands.

Pour comprendre cette corrélation, il est nécessaire de repartir de l'équation (4.6), utilisée pour calculer les valeurs de k_i^2 :

$$k_i^2 = \frac{\varphi_i}{DN} = \frac{\phi_i}{DC}. \quad (4.22)$$

Dans cette équation, on considère la concentration de défauts ponctuels \bar{C} dans les boîtes de simulation et ϕ_i le flux volumique correspondant à φ_i .

Prenons l'exemple d'une seule boîte où la concentration de défauts ponctuels est \bar{C} . Du fait de la définition des volumes de Voronoï, une boucle i située dans un petit volume V_i est entouré de boucles avec une densité supérieure à la densité moyenne. La force de puits locale $k_{i,\text{loc}}^2$ est donc plus élevée que la force de puits totale k_{tot}^2 .

En première approximation, la concentration locale autour du puits i est donnée par

$$C_{i,\text{loc}} = \frac{\phi_i}{Dk_{i,\text{loc}}^2}, \quad (4.23)$$

et sera donc plus faible que la concentration moyenne globale \bar{C} . En calculant la force de puits à partir de cette concentration globale, on sous-estime donc la force de puits. L'analyse inverse pour un gros volume de Voronoï V_j montre que la concentration locale $\bar{C}_{j,\text{loc}}$ est proche de la valeur globale \bar{C} . En effet, on a

$$\bar{C} = \frac{1}{V} \sum_i \bar{C}_{i,\text{loc}} V_i. \quad (4.24)$$

Cette somme étant dominée par les gros volumes V_j , $\bar{C} \sim \bar{C}_{j,\text{loc}}$. Pour une boucle située dans ce gros volume, la force de puits n'est donc que peu affectée par l'utilisation de \bar{C} au lieu de $\bar{C}_{j,\text{loc}}$. C'est pourquoi on retrouve une corrélation entre les valeurs de volumes et celles de forces de puits.

Cette analyse peut expliquer pourquoi la courbe du modèle de Wiedersich se situe sur le dessus des valeurs obtenues dans les microstructures, et pourquoi les forces de puits peuvent être inférieures à la valeur donnée par le modèle de Laplace en milieu infini.

Ceci permet également de comprendre la forme de la dispersion : on remarque en effet que pour les boucles les plus grandes, peu de petits volumes (de façon équivalente, peu de faibles forces de puits) sont présents. Ceci est cohérent, car une boucle située dans un grand volume aura une force de puits plus élevée. Elle croît donc plus que celles situées dans les petits volumes. Les plus grandes boucles sont donc situées dans des grands volumes. Elles conservent ces grands volumes, car elles absorbent facilement les défauts ponctuels, et donc ne favorisent pas la croissance d'autres boucles dans leur voisinage.

En résumé, la dispersion des forces de puits est due aux variations spatiales de la concentration de défauts ponctuels. Celles-ci étant liées à la taille des volumes de Voronoï, il existe une corrélation entre les valeurs de forces de puits et les tailles de ces volumes. Ceci permet d'expliquer pourquoi les valeurs sont inférieures aux valeurs obtenues sur un réseau de puits.

Cependant, ceci n'explique pas exactement les valeurs que nous observons : la dispersion n'est en effet pas exactement corrélée aux tailles des volumes de Voronoï, certaines valeurs pour les faibles volumes sont sur le dessus de la distribution. Il doit donc exister d'autres effets que ceux de la taille du volume.

Nous allons donc tenter d'identifier les effets dus aux variations de formes de ces volumes et aux variations de positions des boucles dans ces volumes.

Effets de forme et de position

Les tailles des volumes de Voronoï calculées précédemment ne portent pas toutes les informations sur les microstructures. En effet, la position des boucles peut varier, elles ne se situent pas nécessairement au centre du volume (voir l'illustration sur la figure 4.10 (a) et (b)). De même, la forme des volumes peut être très éloignée du cas cubique idéal (figure 4.10 (c) et (d)). On cherche donc ici à déterminer l'importance de ces éléments.

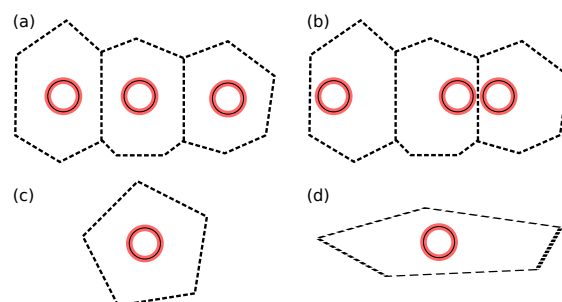


FIGURE 4.10 – Illustration simplifiée de différentes configurations possibles pour les volumes de Voronoï. (a) et (b) : volumes identiques et positions de boucles différentes. (c) et (d) : volumes identiques de formes différentes.

Pour identifier l'effet de la position de la boucle dans le volume, nous construisons un cas d'étude simple d'une boîte contenant deux boucles de dislocation. Cette boîte est un pavé de largeur L et de hauteur $2L$. Les boucles sont initialement placées à une distance L , situation équivalente au cas d'une boucle unique dans une boîte cubique de côté L , qui constitue le cas de référence. La valeur de L est fixée à 36 nm, correspondant à une densité de boucles de $2.14 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$. On diminue ensuite la distance h entre les deux boucles. La géométrie est illustrée sur la figure 4.11 (b), et les valeurs de forces de puits obtenues pour chaque valeur de h/L sont données sur la figure 4.11 (a). On voit que la force de puits diminue quand la distance entre les boucles diminue. Ainsi, la position de la boucle dans le volume de Voronoï peut influencer la valeur de la force de puits et ajouter de la dispersion.

Pour identifier l'effet de la forme du volume, le cas simple d'une boîte de hauteur L et de largeur l contenant une boucle est construit. Les valeurs de forces de puits sont déterminées pour différentes valeurs de L et l en conservant un volume de boîte identique, c'est-à-dire une densité constante fixée à $2.14 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$. La géométrie ainsi obtenue est illustrée sur la Figure 4.11 (d). Les valeurs de forces de puits obtenues sont données sur la figure 4.11 (c). Comme pour la distance entre les boucles, on constate que la diminution du rapport d'aspect l/L engendre la diminution des valeurs de forces de puits. Ainsi, plus un volume de Voronoï aura une forme irrégulière, c'est-à-dire éloignée de la sphère ou du cube, plus la force de puits sera réduite.

En conclusion, nous avons identifié que les effets de voisinage se traduisent par une variation de concentration locale, qui engendre une dispersion des forces de puits, avec

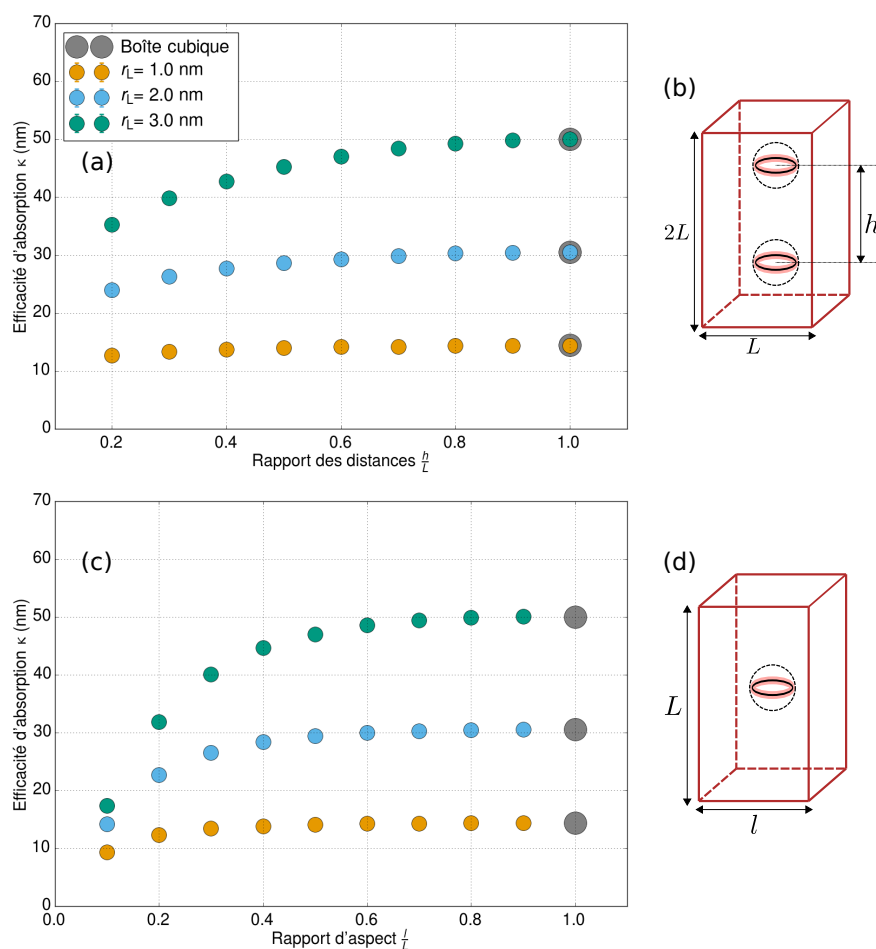


FIGURE 4.11 – Étude de l'effet de la position des boucles de dislocation et de la forme du volume de Voronoï sur les valeurs de forces de puits, pour le cas 1. (a) Variation de la force de puits de boucle de 1 à 3 nm de rayon en fonction de la distance entre boucles h , définie sur la géométrie (b). (c) Variation de la force de puits de boucles de dislocation de 1 à 3 nm de rayon, en fonction du rapport d'aspect l/L , où l et L sont définis sur la géométrie (d). En (a) et (c), les points gris indiquent les résultats obtenus point une boîte de cubique, contenant une seule boucle. La densité de boucle, pour les deux géométries, est fixée à $2.14 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$.

des valeurs globalement inférieures aux valeurs analytiques du modèle de Wiedersich et sur réseau, à densités identiques. La variation de concentration locale est liée à la densité locale de puits, donc en première approximation au volume de Voronoï du puits considéré. À cet effet de volume s'ajoute un effet de forme et de position des boucles dans ces volumes.

4.4.4 Effet de la densité

Nous avons expliqué la dispersion des valeurs de forces de puits, il reste maintenant la question du lien entre dispersion et densité de boucles.

Pour étudier l'influence de la densité de boucles, les microstructures obtenues avec le taux de création $G_{\text{p}} = 10^{-1}$ dpa.s⁻¹ sont prises comme point de départ. La densité de boucles est ensuite diminuée en dilatant les M boîtes : les tailles de boîtes et positions de boucles sont augmentées de façon isotrope, mais les rayons de boucles restent inchangés :

$$\begin{aligned} \text{densité :} & \quad \rho \longrightarrow \rho_{\text{cible}} \\ \text{taille de boîte :} & \quad l \longrightarrow fl \\ \text{position de la boucle :} & \quad (x, y, z) \longrightarrow (fx, fy, fz) \end{aligned}$$

où l'on a noté f le facteur $f = (\frac{\rho}{\rho_{\text{cible}}})^{\frac{1}{3}}$. Les trois cas comparés sont présentés dans le tableau 4.4. En procédant de cette façon, seule la densité de boucles varie, les environnements des boucles restent comparables et les rayons de boucles sont suffisants pour constater des différences avec la variation de densité.

	Densité (m ⁻³)	f	Taille de boîte l (nm)
Boîtes non dilatées	2.23 10 ²²	-	200
1 ^{ère} dilatation	1.76 10 ²¹	2.33	466
2 ^{nde} dilatation	2.00 10 ²⁰	4.81	962

TABLEAU 4.4 – Densités de boucles étudiées par dilatation des boîtes de simulation formées avec $G_{\text{p}} = 10^{-1}$ dpa.s⁻¹.

Les valeurs de forces de puits obtenues pour les trois densités comparées sont données sur la figure 4.12. On constate que les dispersions de forces de puits sont bien amplifiées lorsque la densité de boucles augmente. En effet, pour des environnements comparables comme ceux que nous étudions ici, la dispersion est réduite aux plus faibles densités. Le calcul de l'écart type, par la même méthode que celle indiquée précédemment, donne

$$\text{Boîtes non dilatées : } \sigma(r = 2.7, \Delta r = 0.3) = 3.94$$

$$\text{Dilatation 1 : } \sigma(r = 2.7, \Delta r = 0.3) = 2.35$$

$$\text{Dilatation 2 : } \sigma(r = 2.7, \Delta r = 0.3) = 2.14$$

Cependant, même aux plus faibles densités (figure 4.12 (c)), une dispersion demeure. La dispersion est donc présente dans les microstructures même aux très faibles densités, mais augmente quand la densité de boucles augmente.

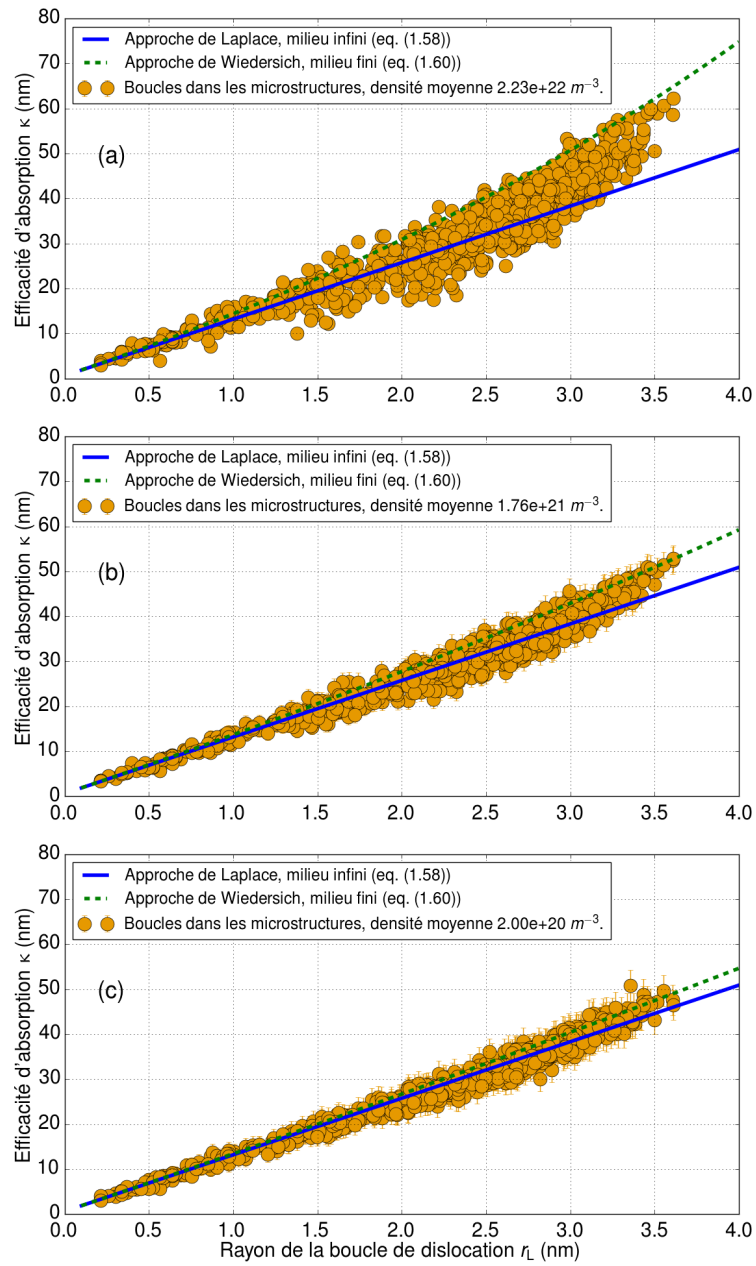


FIGURE 4.12 – Efficacités d’absorption $\kappa = k^2/\rho$ dans les microstructures, pour différentes dilatations des boîtes. (a) Valeurs dans les boîtes non dilatées ($l = 200$ nm). (b) Valeurs pour la dilatation 1 ($l = 466$ nm). (c) Valeurs pour la dilatation 2 ($l = 962$ nm).

4.5 Amas toriques sans interactions élastiques

4.5.1 Définition de l'étude

On s'intéresse ici aux microstructures formées dans le cas 2 (absorption sur les tores sans interactions élastiques). Pour chaque valeur de G_{p} (pour chaque densité de boucles), $M = 10$ boîtes sont sélectionnées.

Les valeurs de forces de puits obtenues dans les microstructures sont comparées aux valeurs analytiques des modèles suivants :

- Modèle de Cade : approche de type Laplace, avec une boucle dans un milieu infini (eq. (1.71)).
- Modèle de Jourdan : approche de type Laplace, avec une boucle dans un milieu fini (eq. (1.75)). Dans cette expression, les interactions élastiques ne sont pas prises en compte : c'est donc bien le rayon du tore r_c qui est utilisé (i. e. $r_c^{\text{eff}} = r_c$).
- Modèle de Wiedersich pour les cavités (sphères englobantes de rayon $r_L + r_c$). (eq. (1.60)).

La prise en compte des sauts discrets en OKMC se fait en corrigeant la valeur de r_c par $\varepsilon = -\frac{a_0}{4}$, c'est-à-dire en utilisant $r_c + \varepsilon$.

4.5.2 Forces de puits dans les microstructures

Les résultats des calculs de force de puits dans les microstructures obtenues dans le cas 2 sont présentés sur la figure 4.13.

Là encore, la tendance globale de variation des efficacités d'absorption est celle attendue, avec une augmentation en fonction du rayon de boucle, pour toutes les densités étudiées.

En ce qui concerne les valeurs de forces de puits dans les microstructures, on constate encore une dispersion des valeurs, qui s'amplifie quand la densité augmente. En calculant l'écart type par rapport à la valeur moyenne dans un intervalle de largeur 0.3 nm centré en r , on obtient :

$$\begin{aligned} G_{\text{p}} = 10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1} : \quad \sigma(r = 0.9, \Delta r = 0.3) &= 1.05 \quad \text{sur 97 points,} \\ G_{\text{p}} = 10^{-2} \text{ dpa.s}^{-1} : \quad \sigma(r = 1.8, \Delta r = 0.3) &= 1.61 \quad \text{sur 380 points,} \\ G_{\text{p}} = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1} : \quad \sigma(r = 2.7, \Delta r = 0.3) &= 3.07 \quad \text{sur 882 points.} \end{aligned}$$

On constate donc, comme pour les sphères, que la dispersion augmente avec la densité de boucles. Enfin, on voit ici que les valeurs de σ sont comparables à celles relevées dans le cas de l'absorption sur les sphères englobantes. Notons cependant que ces résultats ne sont pas rigoureusement comparables. En effet, dans le cas présent où l'absorption se fait sur les tores, le rayon du défaut ponctuel est négligé. Les sphères englobant les tores sont donc de rayon $r_L + r_c$ où $r_c = 2b$, contrairement à celles étudiées dans la section précédente qui étaient de rayon $r_L + r_c + r_{\text{DP}}$ où $r_{\text{DP}} = r_{\text{at}}$ et $r_c = 0$. Il faudra donc comparer les géométries toroïdales et sphériques dans des cas rigoureusement équivalents.

Les valeurs obtenues pour un réseau de boucles sont situées relativement au milieu des valeurs obtenues dans les microstructures pour ce qui est de la densité la plus faible

(figure 4.13 (a)). Quand la densité augmente, les valeurs du réseau se placent sur le dessus de la distribution des valeurs de force de puits, en particulier pour la densité la plus élevée (figure 4.13 (c)).

Comparons maintenant les valeurs de forces de puits issues des simulations OKMC aux valeurs analytiques. Tout d'abord, on constate que la formule de Wierdersich pour les cavités, appliquée aux sphères englobantes, surestime largement les valeurs de forces de puits obtenues dans ces microstructures. Le modèle de Jourdan (eq. (1.75)) sous-estime légèrement les valeurs obtenues dans le cas du réseau, et donc estime convenablement les valeurs obtenues dans les microstructures. Le léger décalage vers le bas des valeurs analytiques est en partie expliqué par l'approche de Laplace utilisée. De même, pour les densités considérées, le modèle de Cade est assez proche de la formule analytique de Jourdan considérant le milieu fini. Elle reste donc en bon accord avec les valeurs du réseau de boucles, à l'exception de la densité la plus élevée pour laquelle l'écart entre ces deux modèles est plus marqué. Notons que le modèle de Seeger (eq. (1.68)), non représenté sur la figure, donne des résultats identiques au modèle de Cade, une petite différence apparaît simplement aux faibles rayons.

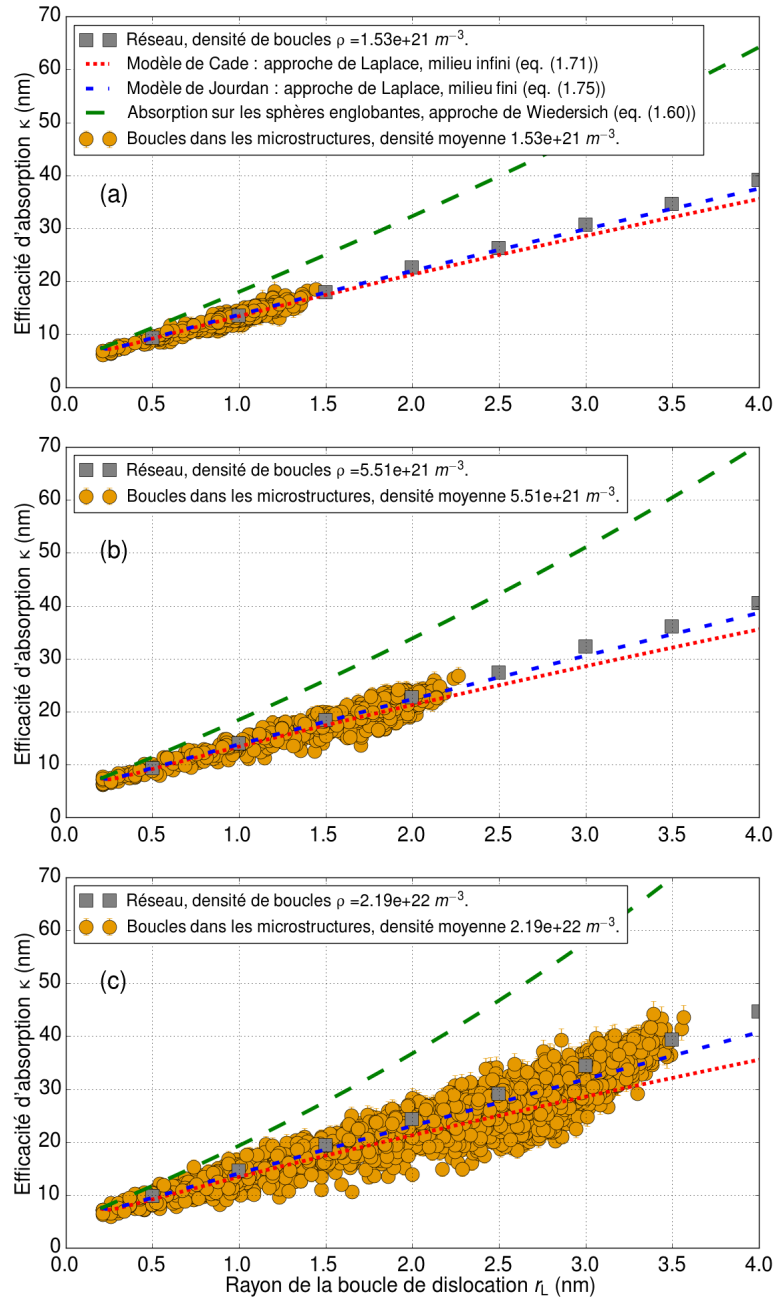


FIGURE 4.13 – Efficacités d'absorption $\kappa = k^2/\rho$ obtenues pour le cas 2 (absorption sur les tores sans interactions élastiques), dans les microstructures formées avec (a) $G_{\text{pl}} = 10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1}$, densité moyenne de puits de $1.53 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$, (b) $G_{\text{pl}} = 10^{-2} \text{ dpa.s}^{-1}$, densité moyenne de puits de $5.51 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$, (c) $G_{\text{pl}} = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$, densité moyenne de puits de $2.19 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$. Dans ces figures, la courbe du modèle de Jourdan est obtenue sans prendre en compte les interactions élastiques, c'est-à-dire en imposant $r_c^{\text{eff}} = r_c$.

4.5.3 Analyse

Volumes de Voronoï

Les valeurs de forces de puits associées aux tailles des volumes de Voronoï sont représentées sur la figure 4.14, pour l'exemple des microstructures obtenues avec $G_{\mu} = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$. Ces valeurs indiquent l'existence d'une corrélation entre les valeurs de forces de puits et les valeurs des volumes. Les valeurs de forces de puits élevées sont en majorité liées aux grands volumes de Voronoï. Le lien entre cette observation et l'expression (4.6) est le même que dans le cas analysé précédemment. Cette corrélation reflète donc un effet du voisinage sur les valeurs de forces de puits engendrant la dispersion.

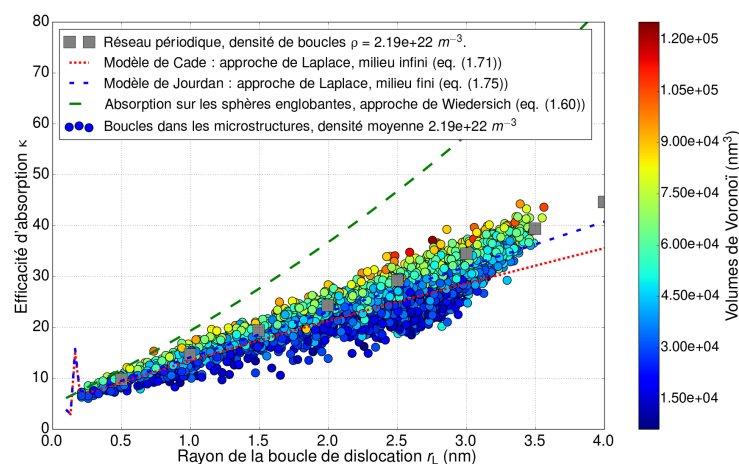


FIGURE 4.14 – Relation entre les forces de puits et les volumes de Voronoï pour les microstructures obtenues dans le cas 2, avec $G_{\mu} = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$.

Ces résultats confirment donc les résultats observés dans le cas des amas sphériques. Comme précédemment, la corrélation n'est cependant pas parfaite. Des valeurs de forces de puits dans le bas de la distribution peuvent être associées à des grands volumes de Voronoï.

Effet de forme et de position

Pour qualifier l'influence de la forme du volume et de la position des boucles dans ces volumes, nous reprenons la même démarche, visant à construire des cas simples permettant de quantifier l'influence de ces éléments. Cependant, à la différence des sphères, la géométrie n'est ici pas isotrope. Nous allons donc différencier deux directions.

Pour identifier l'effet de la position de la boucle dans son volume de Voronoï sur sa force de puits, nous construisons les géométries illustrées sur la figure 4.15 (b). Ici la boîte de dimensions L par $2L$ contient deux boucles, dans un cas l'une au-dessus de l'autre dans la direction du vecteur de Burgers, et dans un second cas dans le même plan

(111), séparées par une distance h . La valeur de L est fixée à 55.23 nm correspondant à une densité de boucles de $5.94 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$. Les valeurs de forces de puits obtenues en fonction du ratio h/L sont données sur la figure 4.15 (a). Ici, la réduction de la distance h entre deux boucles induit également une réduction de la valeur de la force de puits. Ceci est vrai pour les deux directions étudiées. Les valeurs à h/D donné sont de plus identiques pour les deux cas.

L'effet de la forme du volume est également étudié en construisant une boîte de simulation de dimensions L par l , contenant une boucle en son milieu. On fait ensuite varier L et l de façon à déformer la boîte à volume constant, conservant une densité de boucles de $5.94 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$, comme illustré sur la figure 4.15 (d). On constate (figure 4.15 (c)) ici aussi que pour les volumes très déformés, les valeurs de forces de puits sont réduites.

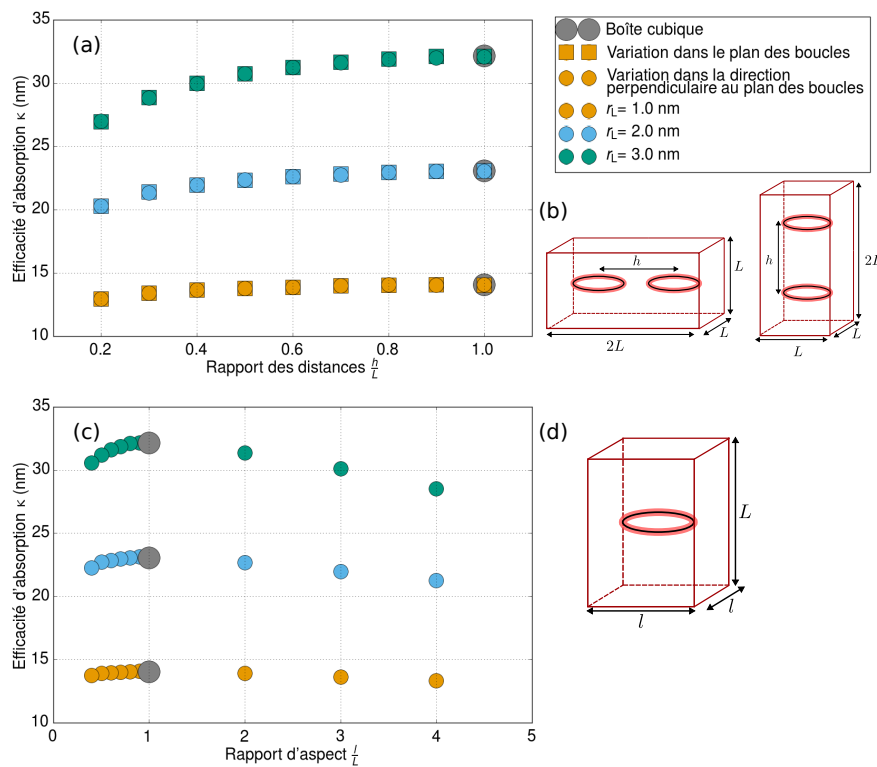


FIGURE 4.15 – Étude de l'effet de la position des boucles de dislocation et de la forme du volume de Voronoï et sur les valeurs de forces de puits, pour le cas 2. (a) Variation de la force de puits de boucles de 1 à 3 nm de rayon en fonction de la distance entre boucles h , définie sur la géométrie (b). (c) Variation de la force de puits de boucles de dislocation de 1 à 3 nm de rayon, en fonction du rapport d'aspect l/L , où l et L sont définis sur la géométrie (d). En (a) et (c), les points gris indiquent les résultats obtenus pour une boîte cubique, contenant une seule boucle. Pour les deux géométries, la densité de boucles est fixée à $5.94 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$.

Ceci confirme donc que la dispersion des forces de puits vient d'un effet de densité, auquel s'ajoute l'effet de la forme et de la position.

4.5.4 Effet de la géométrie du puits

Définition de l'étude

Il nous reste maintenant à quantifier l'influence de la géométrie du puits sur les valeurs de κ , et surtout sur la dispersion de ces valeurs.

Pour quantifier l'influence de la géométrie du puits, autrement dit l'influence des conditions d'absorption, il faut construire des cas de simulation comparables. Pour cela, on reprend pour microstructure de départ les boîtes obtenues dans le cas 1, avec $G_{\mu} = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$. On crée deux séries de simulations avec les conditions suivantes : le rayon du défaut ponctuel est négligé ($r_{\text{DP}} = 0$) et le rayon de la section du tore est fixé à $r_c = 2b$.

- Série 1 : absorption sur les sphères englobantes de rayon $r = r_L + r_c$ (fig. 4.2 (a))
- Série 2 : absorption sur les tores de rayon r_L et de section de rayon r_c (fig. 4.2 (b)).

Pour ces deux séries de calculs, la densité de boucles et les voisinages de chacune des boucles sont identiques.

On crée également des configurations réseau équivalentes pour chaque série, constituées d'une boucle dans une boîte de simulation avec les mêmes conditions d'absorption que pour la série correspondante.

Forces de puits

Les résultats obtenus sont illustrés sur la figure 4.16.

Les forces de puits obtenues pour la série 1 avec absorption sur les sphères englobantes sont globalement supérieures aux valeurs obtenues pour la géométrie toroïdale (série 2). Ce résultat était attendu, car dans ce cas sans interactions élastiques, la force de puits est surtout liée à la géométrie du puits. On observe cependant que les valeurs de forces de puits sont plus dispersées dans le cas des sphères (figure 4.16 (a)) que pour les tores (figure 4.16 (b)). En effet, en calculant l'écart type par rapport à la valeur moyenne σ , on obtient

$$\begin{aligned} \text{Série 1 (sphères)} \quad \sigma(2.7, 0.3) &= 5.30 \\ \text{Série 2 (tores)} \quad \sigma(2.7, 0.3) &= 2.46, \end{aligned}$$

soit un écart type deux fois plus grand dans le cas des sphères englobantes (ce même ratio est conservé si l'on considère les écarts relatifs $\sigma/\bar{\kappa}$ qui dans ce cas valent 13% pour la série 1 et 8% pour la série 2).

À cette densité de $2.24 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$, les points de référence sur réseau périodique se situent sur le dessus de la distribution, les modèles analytiques de Wiedersich et de Jourdan estiment bien les forces de puits sur réseau périodique pour les sphères et les tores respectivement.

Ainsi, la géométrie de l'amas impacte bien la dispersion.

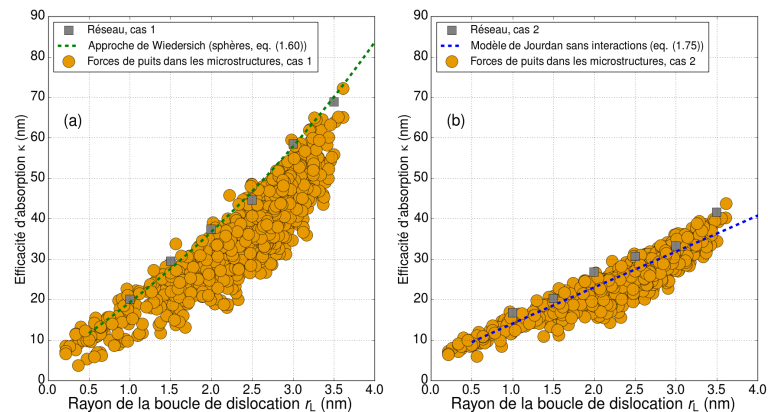


FIGURE 4.16 – Comparaison des deux conditions d’absorption dans des microstructures identiques avec une densité de boucles de $2.24 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$. Efficacités d’absorption $\kappa = k^2/\rho$ de puits obtenues (a) pour la série 1 (absorption sur les sphères englobantes) et (b) pour la série 2 (absorption sur les tores). Pour les deux séries, les interactions élastiques sont négligées.

4.6 Amas toriques avec interactions élastiques

4.6.1 Définition de l’étude

Pour calculer les forces de puits dans le cas 3, on sélectionne $M = 10$ boîtes de simulation pour chaque valeur de G_{11} .

Les forces de puits calculées dans ces microstructures sont comparées à la valeur analytique proposée par T. Jourdan dans le cas d’une boucle dans un milieu fini, avec présence des interactions élastiques, soit l’équation (1.75). Dans cette équation, on utilise donc le rayon de capture effectif r_c^{eff} (eq. (1.73)), qui vise à prendre en compte les interactions élastiques, au travers du volume de relaxation ΔV . La valeur $r_c^{\text{eff},\infty}$ nécessaire au calcul de r_c^{eff} (eq. (1.74)) est ici légèrement modifié pour prendre en compte des sauts discrets de l’OKMC, selon :

$$r_c^{\text{eff},\infty} = \alpha_1 L + \left(2 + \frac{\varepsilon}{b}\right) \exp(-\alpha_2 L^{\alpha_3}). \quad (4.25)$$

Le volume de relaxation sera ici calculé par l’équation (1.13), à partir du dipôle des interstitiels au point stable, donné au chapitre 3. Ainsi, on obtient $\Delta V = 2.34 \Omega$ (où Ω est le volume atomique). Pour ces valeurs, la portée des interactions élastiques est $L = 12.85 \text{ nm}$.

Le modèle est en effet construit en supposant que le dipôle est isotrope et possède les mêmes propriétés au point stable et au point col (voir chapitre 1). Pour les interstitiels que nous considérons ici, $\text{Tr}(\mathbf{P}^{\text{sta}})$ est très proche de $\text{Tr}(\mathbf{P}^{\text{col}})$ (au point col, $\Delta V = 2.39 \Omega$). De plus, les interstitiels ne sont que faiblement anisotropes au point stable et

au point col. La comparaison entre les valeurs OKMC et ce modèle analytique semble donc pertinente, puisque les hypothèses de ce dernier sont presque vérifiées.

On compare également les valeurs OKMC à la formule analytique du modèle de Cade (eq. (1.71)), utilisant la valeur de r_c^{eff} permettant la prise en compte des interactions élastiques. Ce modèle suppose que la boucle est immergée dans un milieu infini.

4.6.2 Force de puits

Les forces de puits obtenues dans les microstructures formées par agglomération des interstitiels durant $t_{\text{p}} = 10^{-3}$ s sont présentées sur la figure 4.17.

On retrouve une augmentation des efficacités d'absorption en fonction du rayon de la boucle, et on constate sans surprise que les valeurs de force de puits sont globalement augmentées par rapport au cas sans interactions élastiques conformément aux observations faites dans le chapitre 3. La dispersion des forces de puits semble également plus importante, et ce dès les plus faibles densités (figure 4.17 (a)). En effet, si l'on calcule l'écart type par rapport à la valeur moyenne, on obtient les valeurs suivantes :

$$G_{\text{p}} = 10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1} : \quad \sigma(r = 1.5, \Delta r = 0.3) = 3.89 \quad \text{sur 88 points,}$$

$$G_{\text{p}} = 10^{-2} \text{ dpa.s}^{-1} : \quad \sigma(r = 2.1, \Delta r = 0.3) = 5.86 \quad \text{sur 311 points,}$$

$$G_{\text{p}} = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1} : \quad \sigma(r = 3.3, \Delta r = 0.3) = 11.76 \quad \text{sur 106 points.}$$

La dispersion est donc très importante, l'écart type est plus de deux fois plus grand que dans le cas précédent. Les interactions élastiques augmentent donc à la fois les valeurs de forces de puits et leur dispersion.

Les valeurs obtenues sur le réseau se situent sur le dessus de la distribution de force de puits, même pour la plus faible densité. Cependant, les tendances de variation des valeurs de forces de puits avec le rayon de boucle sont identiques pour ces valeurs sur réseau et pour les valeurs obtenues dans les microstructures.

Enfin, on peut constater ici que les modèles analytiques prenant en compte les interactions élastiques représentent convenablement les forces de puits dans les microstructures aux deux plus faibles densités (figure 4.17 (a) et (b)). Le modèle de Cade, ne prenant pas en compte l'effet du milieu fini sous-estime globalement les forces de puits dans les microstructures. L'expression prenant en compte le milieu fini représente mieux les forces de puits aux fortes densités. Cependant, cette expression sous-estime les valeurs du réseau pour les trois densités étudiées, elle ne capture en effet pas la tendance de variation des forces de puits avec le rayon de boucle. Il faut noter que cette formule a été obtenue pour une approche de Laplace (système (1.41)). Ceci ne correspond pas aux conditions utilisées dans le calcul OKMC. Pour vérifier l'importance de cette différence de conditions aux limites, des calculs EF sont réalisés pour calculer la force de puits d'une boucle, utilisant la géométrie 2D illustrée sur la figure 4.18, correspondant à une boîte cylindrique plus proche de la géométrie cubique utilisée en OKMC que celle utilisée pour le traitement analytique qui est sphérique. Ces calculs sont faits pour les deux approches de Laplace et de Wiedersich.

Les résultats sont indiqués sur la figure 4.17. On obtient d'une part un bon accord entre les résultats des calculs EF avec l'approche de Laplace et la solution analytique et

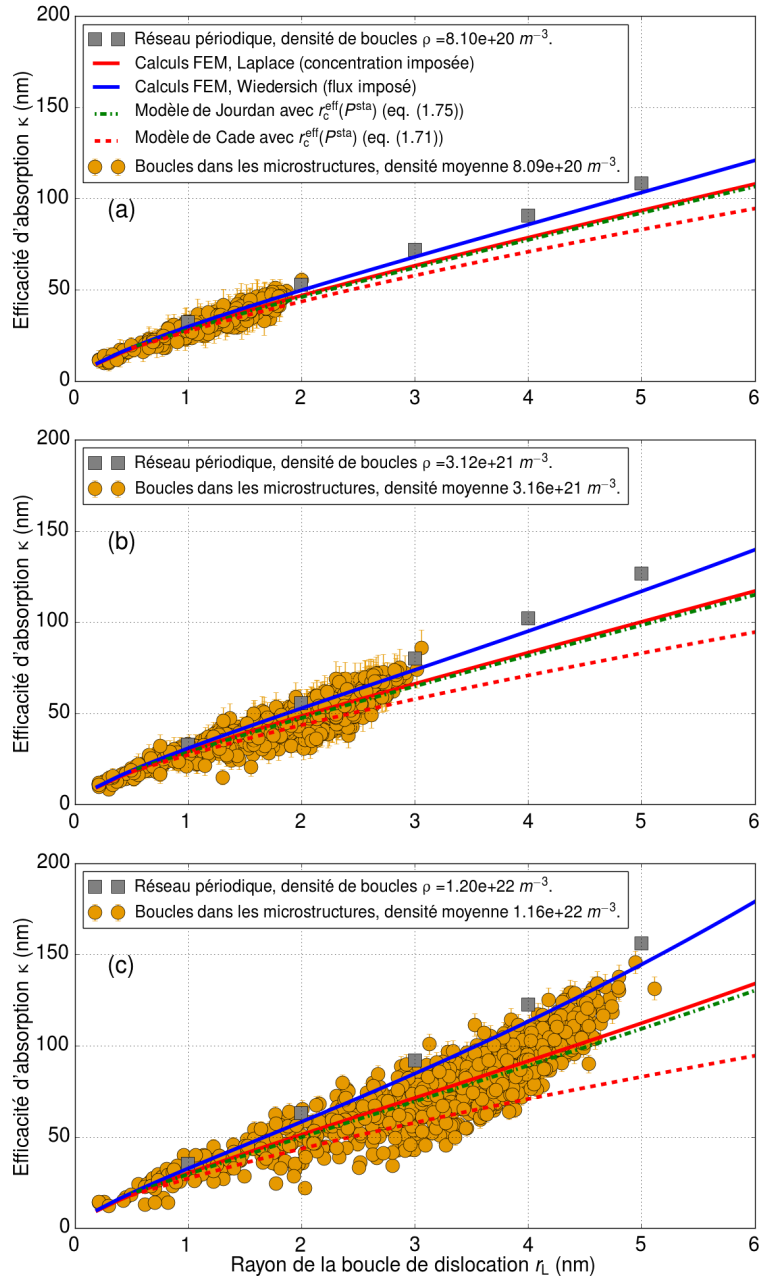


FIGURE 4.17 – Efficacités d’absorption $\kappa = k^2/\rho$ calculées dans les microstructures obtenues pour le cas 3 (absorption sur les tores avec interactions élastiques) avec (a) $G_{\mu} = 10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1}$, densité moyenne de boucles de $8.09 \cdot 10^{20} \text{ m}^{-3}$, (b) $G_{\mu} = 10^{-2} \text{ dpa.s}^{-1}$, densité moyenne de boucles de $3.12 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$, (c) $G_{\mu} = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$, densité moyenne de boucles de $1.16 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$.

d'autre part un bon accord entre les calculs EF avec l'approche de Wiedersich et les calculs OKMC sur réseau. On peut ainsi voir que la différence de conditions aux limites est responsable de la plus grande partie de la différence entre l'expression analytique (1.75) et les résultats OKMC.

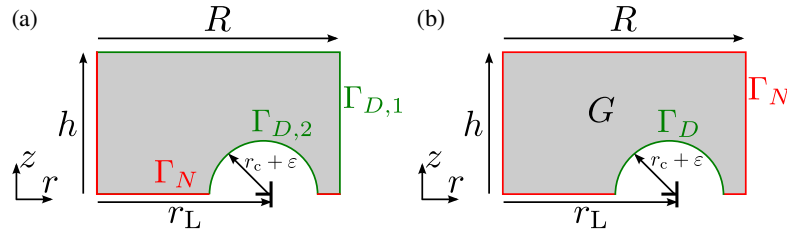


FIGURE 4.18 – Géométrie utilisée pour le calcul des forces de puits des boucles par méthode EF. (a) Pour le traitement de Laplace, la concentration est imposée sur $\Gamma_{D,1}$ et nulle sur $\Gamma_{D,2}$ et le flux est nul sur Γ_N . La force de puits est déduite du flux sur $\Gamma_{D,2}$. (b) Pour le traitement de Wiedersich, le taux de création G est imposé dans le domaine, la concentration est nulle sur Γ_D et le flux nul sur Γ_N . La force de puits est déduite de la concentration moyenne.

4.6.3 Analyse

Les volumes de Voronoï sont encore une fois calculés à partir des positions de boucles. Les résultats sont indiqués sur la figure 4.19. La corrélation entre tailles des volumes et valeurs des forces de puits est encore une fois présente et traduit l'effet de l'environnement local sur la force de puits des boucles.

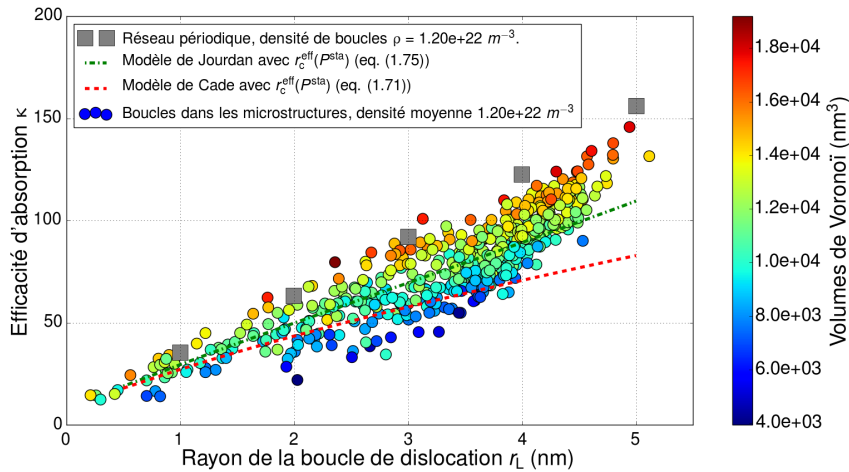


FIGURE 4.19 – Relation entre les forces de puits et les volumes de Voronoï pour les microstructures obtenues dans le cas 3, avec $G_{\mu} = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$.

Afin de quantifier les effets des interactions élastiques sur les valeurs des forces de puits et sur la dispersion, nous allons calculer les forces de puits dans des microstructures identiques, en incluant ou non les interactions élastiques et en modifiant les conditions d'absorption.

4.6.4 Effet des interactions élastiques sur les forces de puits

Définition de l'étude

Afin de quantifier les effets des interactions élastiques sur les forces de puits nous reprenons les microstructures définies dans la sous-section 4.5.4. Les séries 1 et 2 sont comparées à la série 3, pour laquelle on calcule les forces de puits en considérant que l'absorption se fait sur les tores (fig. 4.2 (b)) avec de plus prise en compte des interactions élastiques. Ceci permet d'identifier les effets des interactions élastiques pour des environnements locaux identiques.

Force de puits

Les résultats sont présentés sur la figure 4.20, où les parties (a) et (b) sont des rappels des résultats obtenus pour les séries 1 et 2 sans interactions élastiques déjà présentés sur la figure 4.16.

De cette façon, on voit que les interactions élastiques sont responsables d'une forte augmentation des valeurs de forces de puits. On peut également voir ici que les valeurs sont plus dispersées que dans le cas sans interactions élastique. En effet, on peut

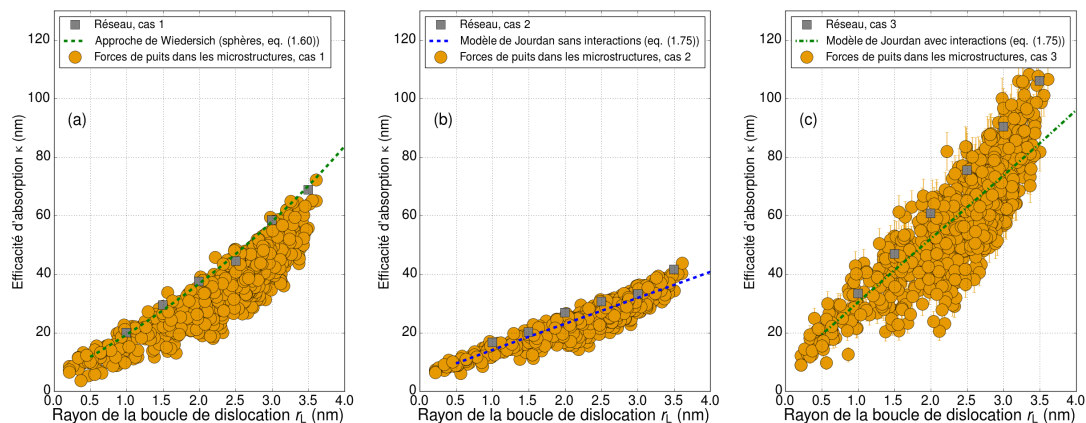


FIGURE 4.20 – Comparaison des trois conditions d'absorption dans des microstructures identiques avec une densité de boucles de $2.24 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$. Efficacités d'absorption $\kappa = k^2/\rho$ obtenues (a) pour la série 1 (absorption sur les sphères englobantes), (b) pour la série 2 (absorption sur les tores) et (c) pour la série 3 (absorption sur les tores avec interactions élastiques).

calculer que pour la série 3 (tores avec les interactions), $\sigma(2.7, 0.3) = 9.98$, traduisant l'amplification de la dispersion par la présence d'interactions élastiques.

4.7 Résumé

Dans ce chapitre, nous avons quantifié les effets de voisinage influençant les valeurs de forces de puits dans des microstructures.

Pour cela, nous avons tout d'abord formé des microstructures par des simulations OKMC, qui prennent naturellement en compte les corrélations spatiales, en vue de reproduire les cas généralement considérés dans les simulations de DA. Nous avons ensuite calculé les forces de puits dans les microstructures formées, pour comparer les valeurs à celles obtenues dans le cas d'un réseau périodique afin de quantifier les effets de voisinage. Nous avons également comparé les valeurs aux modèles analytiques utilisés le plus souvent en DA.

Les résultats obtenus dans les trois cas considérés montrent que les valeurs de forces de puits obtenues dans les microstructures sont dispersées, avec des valeurs généralement inférieures à celles obtenues dans le cas d'un réseau périodique à densité identique. Cette dispersion est due aux différences d'environnements locaux, qui font varier les concentrations locales de défauts ponctuels. Ceci reflète un effet de taille finie, qui se traduit par la corrélation entre les valeurs de forces de puits et les tailles de volumes de Voronoï. Les fortes valeurs de forces de puits sont en effet associées à des grands volumes de Voronoï. Cependant, ces volumes ne portent pas toutes les informations sur l'environnement local, car il existe aussi un effet de la forme du volume de Voronoï, ainsi que de la position de la boucle dans le volume. En comparant des microstructures identiques avec différentes conditions d'absorption (sur la sphère englobante ou le tore), nous avons identifié que la géométrie du puits joue un rôle sur la dispersion des forces de puits. Nous avons également vu que les interactions élastiques influencent fortement les forces de puits, car elles augmentent les valeurs, mais amplifient également leurs dispersions.

Nous avons également comparé les forces de puits dans les microstructures aux valeurs analytiques couramment utilisées en DA. Ces modèles ne reflètent pas les effets de voisinage. Pour les amas sphériques, nous avons identifié que le modèle couramment utilisé en DA, utilisant l'approche de Laplace et considérant que les boucles sont immergées dans un milieu infini, ne capture pas totalement la variation des forces de puits avec le rayon de la boucle. De son côté, l'approche de Wiedersich surestime la majorité des valeurs obtenues dans les microstructures. Pour les amas toriques sans interactions élastiques, on constate que le modèle assimilant les tores aux sphères qui les englobent surestime de façon très importante les forces de puits. Quant à eux, les modèles de Cade et Jourdan estiment mieux les forces de puits dans les microstructures, à l'exception des plus fortes densités. Dans le cas où les interactions élastiques sont prises en compte, l'expression analytique sous-estime les forces de puits obtenues en configuration de réseau, notamment du fait des conditions aux limites utilisées pour obtenir cette formule (approche de Laplace). La tendance de variation des forces de puits dans les microstructures

avec le rayon de la boucle n'est pas parfaitement représentée par ce modèle.

L'absence de prise en compte de la dispersion dans ces modèles et, plus largement, dans le formalisme de la DA pourrait être à l'origine de l'imprécision des résultats des simulations DA. Ce point est abordé dans le chapitre suivant.

Chapitre 5 —

Développement d'une méthode pour intégrer les effets de voisinage dans la dynamique d'amas

Sommaire

5.1	Introduction	135
5.2	Dynamique d'amas sans effets de voisinage	136
5.2.1	Méthode	136
5.2.2	Absorption sur les sphères englobantes, sans interactions élastiques	137
5.2.3	Absorption sur les tores, sans interactions élastiques	142
5.2.4	Absorption sur les tores avec interactions élastiques	145
5.3	Développement d'une expression de force de puits prenant en compte les effets de voisinage	147
5.3.1	Absorption sur les sphères englobantes sans interactions élastiques	147
5.3.2	Absorption sur les tores sans interactions élastiques	154
5.3.3	Absorption sur les tores avec interactions élastiques	157
5.3.4	Résumé	159
5.4	Introduction de la dispersion des forces de puits dans la dynamique d'amas	160
5.4.1	Méthode	160
5.4.2	Résultats	163
5.5	Résumé et conclusion	170

5.1 Introduction

L'objectif de ce chapitre est de comprendre les conséquences de l'absence de prise en compte des effets de voisinage sur les résultats de la DA, et de proposer une méthode afin de permettre la prise en compte de ces effets.

On continue l’étude initiée dans le chapitre précédent, en s’intéressant à des microstructures composées uniquement de boucles interstitielles. La section 5.2 est consacrée à la comparaison des distributions de tailles d’amas obtenues en DA à celles issues de simulations OKMC, qui prennent naturellement en compte les corrélations spatiales et donc incluent les effets de voisinage. Cette comparaison vise à quantifier les imprécisions de la DA résultant de l’absence de ces effets. On s’intéressera aux trois modèles régulièrement utilisés en DA identifiés au chapitre 4 que l’on rappelle ici :

- Premier cas : l’absorption des interstitiels par les boucles se fait sur la sphère englobant la boucle interstitielle. Les interactions élastiques ne sont pas prises en compte.
- Second cas : l’absorption se fait directement sur les tores qui constituent les boucles, sans interactions élastiques.
- Troisième cas : l’absorption se fait directement sur les tores, avec, de plus, prise en compte des interactions élastiques.

Ensuite, on cherche à introduire les effets de voisinage dans la DA afin de pouvoir retrouver les distributions de tailles d’amas issues de l’OKMC. Pour cela, on commence par développer une expression de force de puits permettant de reproduire la dispersion des valeurs observées dans le chapitre précédent. Ce développement, présenté dans la section 5.3, est effectué en étudiant le premier cas (absorption sur les sphères) et l’expression obtenue est ensuite adaptée aux deux autres cas. En reproduisant les dispersions des valeurs des forces de puits, ce sont les effets de voisinage qui sont inclus dans l’expression. On développe ensuite une méthode permettant d’introduire cette dispersion de force de puits dans la DA, en autorisant notamment des amas de même taille à avoir des forces de puits différentes. Cette méthode est présentée dans la section 5.4. À la fin de cette section, les résultats obtenus par cette nouvelle méthode pour les trois cas étudiés sont présentés.

5.2 Dynamique d’amas sans effets de voisinage

5.2.1 Méthode

Il s’agit ici de comparer les distributions de tailles d’amas issues des simulations OKMC, qui ont été présentées au chapitre précédent (figures 4.4 à 4.6), à celles obtenues pour des conditions identiques en DA. On va donc s’intéresser aux trois cas définis au chapitre 4, qui sont les suivants :

- Cas 1 :** Absorption sur les sphères englobant les boucles de dislocations, sans interactions élastiques,
- Cas 2 :** Absorption sur les tores, sans interactions élastiques,
- Cas 3 :** Absorption sur les tores, avec interactions élastiques.

Différentes distributions de tailles d’amas sont comparées, avec différentes doses atteintes, en faisant varier le taux de création G (noté G_{p} au chapitre précédent, pour différencier la phase de création des microstructures de celle du calcul des forces de

puits) entre 10^{-3} dpa.s $^{-1}$ et 10^{-1} dpa.s $^{-1}$ en simulant un temps $t = 10^{-3}$ s. Ce temps correspond à une limite atteignable par les simulations OKMC qui nécessitent de considérer des boîtes de grande taille. Pour atteindre des temps plus longs, des simulations EKMC sont donc utilisées.

Les microstructures obtenues en OKMC sont celles présentées au chapitre 4 : les boucles sont donc formées par agglomération d’interstitiels, avec des conditions d’absorption correspondant au cas traité : équation (4.3) pour l’absorption sur les sphères, et équation (4.4) pour les tores, avec les paramètres définis dans le tableau 4.1.

Pour obtenir les distributions de tailles d’amas en DA, on simule l’agglomération d’interstitiels selon les équations présentées au chapitre 2. Les lacunes sont donc exclues de la simulation et les paramètres utilisés sont ceux présentés dans le tableau 2.2. Les forces de puits exprimées selon les différents modèles étudiés sont présentes dans les coefficients d’absorption et d’émission de mono-interstitiels par les amas, qui sont donc des boucles interstitielles. Nous allons donc comparer les distributions OKMC à celles obtenues en DA avec les différentes expressions de forces de puits données par les modèles analytiques correspondant à ceux étudiés dans le chapitre précédent.

5.2.2 Absorption sur les sphères englobantes, sans interactions élastiques

Définition de l’étude

Dans ce chapitre, seul les interstitiels sont considérés. Les lacunes n’interviennent donc pas dans les simulations DA, et pour plus de simplicité les forces de puits $k_{n,1}^2$ et les coefficients d’absorption $\beta_{n,1}$ des amas pour les interstitiels seront notés respectivement k_n^2 et β_n .

Les distributions de tailles d’amas obtenues en OKMC dans le premier cas, où l’absorption se fait sur les sphères englobant les tores (eq. (4.3), figure 4.4) sont comparées à celles obtenues en DA utilisant les modèles suivants, correspondant aux cavités sphériques :

- Modèle de Laplace (équation (1.58)), considérant que les puits sont immergés dans un milieu de taille infinie, c’est-à-dire $Z = 1$, soit

$$\beta_n = 4\pi(r_n + r_{\text{DP}} + \varepsilon)D. \quad (5.1)$$

Ici, pour correspondre aux simulations OKMC, on utilise $r_{\text{DP}} = r_{\text{at}}$ pour le rayon de l’interstitiel et $\varepsilon = -\frac{a_0}{4}$ pour reproduire les sauts discrets en OKMC. Dans cette équation, D est le coefficient de diffusion de l’interstitiel,

- Modèle de Wiedersich (équation (1.60)), prenant en compte un milieu fini de taille R , pour lequel on utilise également la valeur $r_n + r_{\text{DP}} + \varepsilon$. On a alors :

$$\beta_n = 4\pi(r_n + r_{\text{DP}} + \varepsilon)Z_{\text{Wiedersich}}^{\text{cav.}}(r_n + r_{\text{DP}} + \varepsilon, R)D, \quad (5.2)$$

où les valeurs de r_{DP} et ε sont celles définies ci-dessus. Comme pour l’OKMC, la taille R est déterminée à partir de la densité moyenne de puits $\bar{\rho}$ dans les boîtes

de simulation (eq. (4.17)) par la relation

$$R = \left(\frac{3}{4\pi\bar{\rho}} \right)^{\frac{1}{3}}, \quad (5.3)$$

avec ici $\bar{\rho} = \sum_{n \geq 2} C_n$.

Ainsi, on réalise les simulations DA utilisant les forces de puits comparées à celles obtenues dans les microstructures issues des simulations OKMC sur la figure 4.8.

Résultats

Les distributions de tailles d’amas obtenues pour les taux de création de $G = 10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1}$ à $G = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$, pour lesquelles les forces de puits sont celles de la figure 4.8, sont présentées sur les figures 5.1 (a), (c) et (d). Les densités de boucles et rayons moyens correspondants sont donnés dans le tableau 5.1.

Tout d’abord, pour la valeur la plus faible du taux de création de défauts ponctuels, on peut voir (fig. 5.1 (a)) qu’un bon accord est obtenu entre les distributions OKMC et les distributions DA, avec de plus une très faible différence entre les deux résultats DA correspondant aux modèles de Laplace et Wiedersich. Pour les valeurs de G les plus élevées, on voit apparaître un décalage entre l’OKMC et la DA, avec une distribution OKMC qui est plus étalée que celles issues des simulations DA. En particulier pour la valeur de G la plus élevée, ou de manière équivalente, pour la valeur de densité la plus forte, les distributions DA sont plus piquées que celle issue de l’OKMC. Les rayons moyens de différentes distributions OKMC (ou EKMC) et DA sont cependant très proches, même si le modèle de Wiedersich prédit un rayon très légèrement plus grand. Les densités de boucles obtenues en DA avec le modèle de Laplace sont très proches de celles obtenues en OKMC quelle que soit la valeur de G (voir tableau 5.1). La principale différence entre les résultats DA et OKMC provient donc bien d’un étalement plus important de la distribution OKMC.

Ces observations sont cohérentes avec les valeurs de forces de puits obtenues précédemment et illustrées sur la figure 4.8. En effet, pour la densité de boucles la plus faible, les valeurs des forces de puits obtenues dans les microstructures OKMC sont très proches des valeurs obtenues dans les modèles de Laplace et Wiedersich. Les distributions de tailles d’amas sont donc très semblables. Pour le taux de création le plus élevé (ou la densité de boucles la plus forte) les forces de puits dans les microstructures OKMC sont très dispersées. Le modèle de Laplace se situe presque au milieu de la distribution des forces de puits, sauf pour les plus gros amas. Ceci tend à diminuer la croissance des grandes boucles, ce qui mène à des concentrations moins importantes pour ces grands amas. Pour le modèle de Wiedersich, qui se situe sur le dessus de la distribution OKMC, le rayon moyen est légèrement augmenté. Néanmoins, les deux distributions obtenues en DA sont moins étalées que la distribution obtenue en OKMC. Il semble donc que, d’une part, un décalage entre OKMC et DA apparaisse aux fortes densités d’amas, et d’autre part que ce décalage soit corrélé à la dispersion des forces de puits obtenues en OKMC.

Pour simuler des temps plus longs et voir si la différence entre l’OKMC et la DA apparaîtrait pour des taux de création plus faibles à des temps plus longs, on réalise des

simulations EKMC. Comme indiqué dans le chapitre 2, le code EKMC JERK que nous utilisons inclut les fusions entre les amas, c'est-à-dire la coalescence des boucles, lorsque celles-ci sont de trop grandes tailles. Pour que l'EKMC reste équivalent à l'OKMC, qui ne prend pas en compte ces événements, il faut donc rester dans des régimes où ces fusions sont très rares. C'est pourquoi seul le taux de création le plus faible $G = 10^{-3}$ dpa.s⁻¹ est considéré en EKMC. On commence par simuler l'agglomération des interstitiels pendant 10^{-3} s pour reproduire ce qui a été simulé en OKMC. Le résultat est indiqué sur la

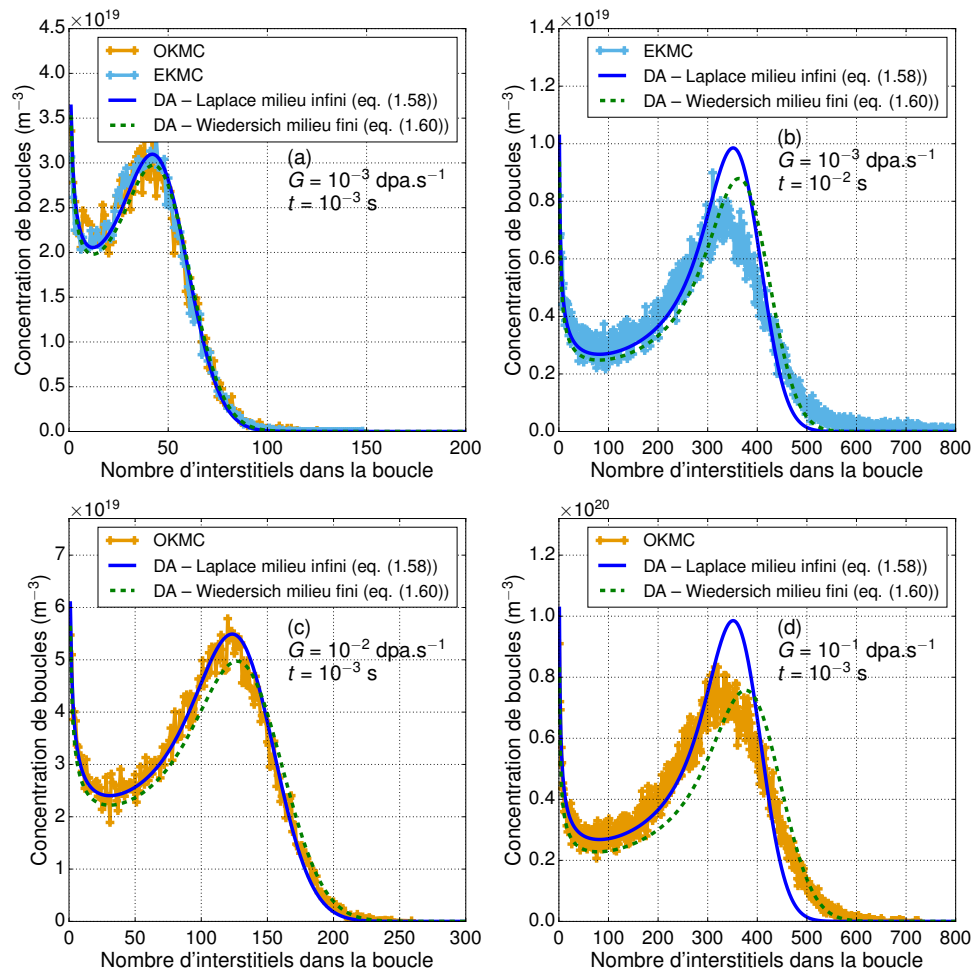


FIGURE 5.1 – Distributions de tailles d'amas obtenues dans le cas 1 (absorption sur les sphères), avec les différents modèles (OKMC, modèles de DA et EKMC) et pour les différentes valeurs de G : (a) $G = 10^{-3}$ dpa.s⁻¹, $t = 10^{-3}$ s, (b) $G = 10^{-3}$ dpa.s⁻¹, $t = 10^{-2}$ s, (c) $G = 10^{-2}$ dpa.s⁻¹, $t = 10^{-3}$ s, (d) $G = 10^{-1}$ dpa.s⁻¹, $t = 10^{-3}$ s. Les densités de boucles et rayons moyens correspondant à chaque courbe sont donnés dans le tableau 5.1.

figure 5.1 (a). La distribution de tailles d’amas obtenue en EKMC est identique à celle obtenue en OKMC, de même que la densité de boucles. Ceci valide l’emploi de l’EKMC dans ce contexte. Pour éviter les fusions d’amas, le temps maximum simulé reste limité à $t = 10^{-2}$ s. Les résultats obtenus en EKMC sont comparés à la DA sur la figure 5.1 (b). On peut constater que même si les densités de boucles restent faibles, un décalage entre l’EKMC et la DA est apparu, avec une distribution EKMC plus étalée. En abaissant le taux de création et en augmentant le temps simulé, les germinations de boucles sont rendues plus rares tandis que l’absorption est favorisée, on amplifie donc l’effet de la dispersion des forces de puits.

On peut donc conclure qu’il existe une corrélation entre la dispersion des forces de puits et le décalage entre OKMC et DA. Ce décalage est donc une conséquence de l’absence des effets de voisinage en DA.

	$G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$		$G = 10^{-2}$ dpa.s $^{-1}$	$G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$
	$t = 10^{-3}$ s	$t = 10^{-2}$ s	$t = 10^{-3}$ s	$t = 10^{-3}$ s
Fig. 5.1	(a)	(b)	(c)	(d)
	Densité de boucles $\bar{\rho}$ (m $^{-3}$)			
OKMC	1.68 10 21	-	6.28 10 21	2.22 10 22
EKMC	1.67 10 21	2.22 10 21	-	-
DA - Laplace	1.67 10 21	2.26 10 21	6.26 10 21	2.26 10 22
DA - Wiedersich	1.64 10 21	2.17 10 21	6.02 10 21	2.07 10 22
	Rayon moyen \bar{r} (nm)			
OKMC	0.95	-	1.54	2.59
EKMC	0.94	2.60	-	-
DA - Laplace	0.94	2.56	1.54	2.56
DA - Wiedersich	0.95	2.61	1.57	2.67

TABLEAU 5.1 – Densités de boucles $\bar{\rho}$ (en m $^{-3}$) et rayons moyens \bar{r} (en nm) obtenus avec les différents modèles et pour les différentes valeurs de G , dans le cas 1 (absorption sur les sphères).

Deux pistes s’offrent donc à nous pour inclure les effets de voisinage en DA :

- utiliser une expression de force de puits reproduisant mieux la valeur moyenne des forces de puits dans les microstructures OKMC aux grands rayons,
- et/ou formuler une expression de force de puits reproduisant la dispersion de ces valeurs.

Meilleure représentation de la valeur moyenne des forces de puits aux grands rayons

Cette première solution ne consiste pas à intégrer la dispersion des forces de puits dans la DA, mais à utiliser une expression de force de puits représentant mieux les valeurs obtenues dans les microstructures. Une telle expression de force de puits est par

exemple celle proposée par A. D. Brailsford *et al.* (eq. (1.61)). Il s’agit d’une approche de type milieu effectif, où la force d’un puits donné dépend de la force de puits totale du milieu. Pour comparer ce modèle aux valeurs obtenues en OKMC, on évalue donc les paramètres :

- $R = \left(\frac{3}{4\pi\bar{\rho}}\right)^{\frac{1}{3}}$, avec $\bar{\rho}$ calculée sur les microstructures.
- k_{tot}^2 comme la somme des forces de puits de toutes les boucles présentes, qui s’écrit, au premier ordre :

$$k_{\text{tot}}^2 = \sum_i 4\pi r_i \frac{1}{V}, \quad (5.4)$$

où V est le volume de la boîte.

Une autre façon d’évaluer la force de puits totale est d’utiliser l’approche présentée au chapitre 3 par $k_{\text{tot}}^2 = G/D\bar{N}$, où D est le coefficient de diffusion des interstitiels et \bar{N} est le nombre moyen d’interstitiels dans la boîte en régime permanent. Ces deux méthodes donnent des résultats très proches.

De manière équivalente, l’expression de A. D. Brailsford *et al.* est utilisée en DA pour calculer les forces de puits k_n^2 , et donc les coefficients d’absorption β_n , en évaluant R selon l’équation (5.3), et la force de puits totale comme

$$k_{\text{tot}}^2 = \sum_{n \geq 2} 4\pi (r_n + r_{\text{DP}} + \varepsilon) C_n. \quad (5.5)$$

À l’issue du calcul des forces de puits de tous les amas, on peut recalculer la force de puits totale par $k_{\text{tot}}^2 = \sum_{n \geq 2} k_n^2$. Plusieurs cycles d’autocohérence peuvent être réalisés pour obtenir la valeur finale de k_n^2 et donc de β_n . En pratique, nous avons vérifié que les résultats avec et sans cycles d’autocohérence sont très semblables.

On représente la force de puits obtenue avec ce modèle sur la figure 5.2 (a), où l’on s’est intéressé aux cas des microstructures aux plus fortes densités de boucles. On peut constater que la force de puits ainsi obtenue est relativement proche de la valeur obtenue par le modèle de Wiedersich aux faibles rayons, mais aux rayons plus grands la force de puits du milieu effectif devient inférieure à celle de Wiedersich, tout en restant au-dessus de la courbe du modèle de Laplace. Cette formule estime donc mieux la valeur moyenne de force de puits aux grands rayons. On peut donc s’attendre à obtenir un meilleur accord des distributions de tailles d’amas obtenues avec l’approche en milieu effectif avec celles de l’OKMC.

Les résultats sont présentés sur la fig. 5.2 (b) pour un temps de $t = 10^{-3}$ s et sur la fig. 5.2 (c) pour un temps de $t = 2 \cdot 10^{-3}$ s. Dans les deux cas, on constate bien que la distribution se situe entre les courbes issues des modèles de Laplace et Wiedersich, mais la distribution reste plus piquée que celle issue de l’OKMC. On peut donc en conclure que la dispersion des forces de puits est responsable de l’étalement de la distribution de tailles d’amas.

Il est donc nécessaire d’introduire cette dispersion dans la DA pour reproduire les effets de voisinage : c’est l’objectif des sections suivantes, après avoir étudié les cas où l’absorption se fait sur les tores.

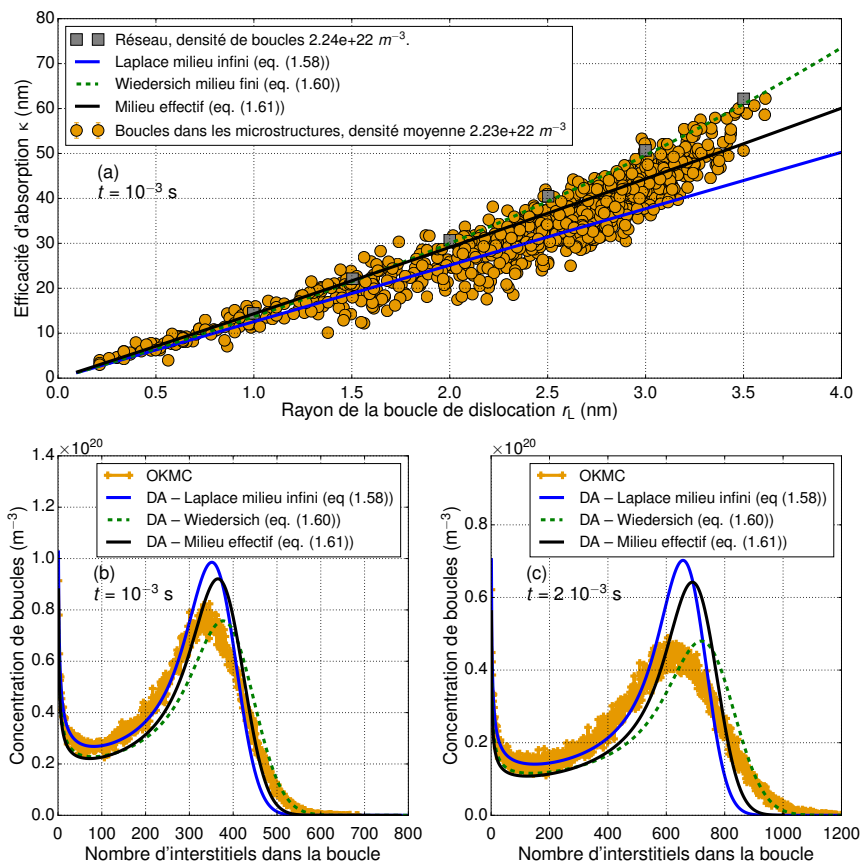


FIGURE 5.2 – (a) Forces de puits obtenues dans les microstructures formées en OKMC avec $G = 10^{-1}$ dpa.s⁻¹ et $t = 10^{-3}$ s, comparées aux modèles analytiques de Laplace, Wiedersich et avec l’approche milieu effectif de A. D. Brailsford *et al.*. Distributions de tailles d’amas obtenues en OKMC comparées à celles issues de simulations DA utilisant les différents modèles, avec un temps simulé de (b) $t = 10^{-3}$ s et (c) $t = 2 \cdot 10^{-3}$ s.

5.2.3 Absorption sur les tores, sans interactions élastiques

Définition de l’étude

Pour étudier ce cas 2, on reprend les microstructures obtenues en OKMC au chapitre précédent, pour lesquelles l’absorption se fait sur les tores (eq. (4.4)) sans interactions élastiques, avec les paramètres présentés dans le tableau 4.1. On réalise aussi les simulations DA utilisant les trois expressions de forces de puits comparées à celles obtenues en OKMC sur la figure 4.13, qui sont les suivantes :

- Modèle de Cade : approche de type Laplace, avec une boucle dans un milieu infini (eq. (1.71)), avec un rayon de tore $r_c + \varepsilon$ ($\varepsilon = -a_0/4$) :

$$\beta_n = 2\pi r_L Z_{\text{Cade}}^{\text{boucle}}(r_L, r_c + \varepsilon) D \quad (5.6)$$

- Modèle de Jourdan : approche de type Laplace, avec une boucle dans un milieu fini (eq. (1.75)) et sans interactions élastiques ($r_c^{\text{eff}} = r_c + \varepsilon$) :

$$\beta_n = 2\pi r_L Z_{\text{Jourdan}}^{\text{boucle}}(r_L, r_c + \varepsilon, R)D \quad (5.7)$$

- Modèle de Wiedersich pour les cavités (sphères englobantes de rayon $r_L + r_c + \varepsilon$) (eq. (1.60)) :

$$\beta_n = 4\pi (r_L + r_c + \varepsilon) Z_{\text{Wiedersich}}^{\text{cav.}}(r_L + r_c + \varepsilon, R)D \quad (5.8)$$

Résultats

Les distributions de tailles obtenues sont illustrées sur la figure 5.3.

Pour les trois densités étudiées, les distributions de tailles d’amas obtenues en DA sont plus piquées que celles issues de l’OKMC pour les modèles de Cade et Jourdan. Le modèle de Wiedersich semble mieux reproduire l’étalement de la distribution OKMC.

Les distributions DA obtenues avec les modèles de Cade et Jourdan sont assez proches, conformément à la proximité des valeurs de forces de puits obtenues sur la figure 4.13. Les rayons moyens obtenus avec ces deux modèles sont très proches de ceux obtenus en OKMC (tab. 5.2). À l’inverse le modèle de Wiedersich pour les sphères aboutit à des rayons moyens plus élevés que l’OKMC, conformément aux forces de puits trop élevées qui sont obtenues avec ce modèle.

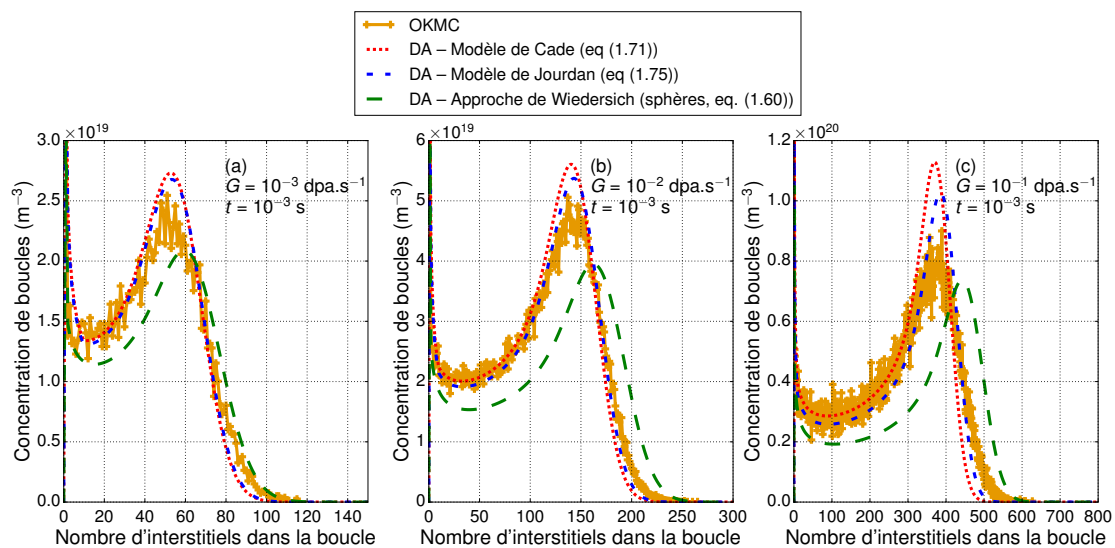


FIGURE 5.3 – Distributions de tailles d’amas obtenues en OKMC dans le cas 2 (absorption sur les tores) comparées à celles obtenues en DA avec les différents modèles de force de puits, avec $t = 10^{-3}$ s et pour (a) $G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$, (b) $G = 10^{-2}$ dpa.s $^{-1}$ et (c) $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$. Les densités de boucles et rayons moyens correspondant à chaque courbe sont donnés dans le tableau 5.2.

Les densités de boucles obtenues dans les différents modèles DA sont assez proches de celles obtenues en OKMC (voir tab. 5.2), à l’exception du modèle de Wiedersich qui donne des densités plus faibles : avec ces forces de puits plus élevées, les boucles sont moins nombreuses mais plus grandes qu’en OKMC.

Comme dans le cas des sphères, les modèles DA se trouvent incapables de reproduire les distributions OKMC, la dispersion des forces de puits n’étant pas prise en compte en DA.

	$G = 10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1}$	$G = 10^{-2} \text{ dpa.s}^{-1}$	$G = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$
	$t = 10^{-3} \text{ s}$		
Fig. 5.3	(a)	(b)	(c)
	Densité de boucles $\bar{\rho}$ (m^{-3})		
OKMC	$1.38 \cdot 10^{21}$	$5.61 \cdot 10^{21}$	$2.16 \cdot 10^{22}$
DA - Cade	$1.44 \cdot 10^{21}$	$5.75 \cdot 10^{21}$	$2.23 \cdot 10^{22}$
DA - Jourdan	$1.43 \cdot 10^{21}$	$5.63 \cdot 10^{21}$	$2.13 \cdot 10^{22}$
DA - Wiedersich	$1.28 \cdot 10^{21}$	$4.98 \cdot 10^{21}$	$1.85 \cdot 10^{22}$
	Rayon moyen \bar{r} (nm)		
OKMC	1.03	1.63	2.62
DA - Cade	1.01	1.61	2.58
DA - Jourdan	1.02	1.62	2.64
DA - Wiedersich	1.07	1.73	2.83

TABLEAU 5.2 – Densités de boucles $\bar{\rho}$ (en m^{-3}) et rayons moyens \bar{r} (en nm) obtenus avec les différents modèles et pour les différentes valeurs de G , dans le cas 2 (absorption sur les tores, sans interactions élastiques).

Effets de la géométrie du puits sur les distributions

Les distributions obtenues en OKMC pour les cas 1 et 2 ne sont pas comparables du fait des différences entre les paramètres r_{DP} et r_c utilisés pour les obtenir. On réalise donc des simulations OKMC pour obtenir les distributions OKMC permettant de comparer les distributions. Pour cela, on utilise, pour les deux conditions d’absorption, les paramètres $r_{\text{DP}} = r_{\text{at}} = 0.1503 \text{ nm}$ et $r_c = 0$.

Les résultats obtenus pour un taux de création de $G = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$ et pour un temps de $t = 10^{-3} \text{ s}$ sont illustrés sur la figure 5.4. On voit que dans le cas où l’absorption se fait sur les sphères, les boucles sont globalement plus grandes, avec de plus une densité plus faible que dans le cas où l’absorption se fait sur les tores. Les boucles sont donc moins nombreuses mais plus grandes dans le cas des sphères que dans celui des tores. Ici, les interactions élastiques ne sont pas prises en compte, donc seuls la géométrie du puits et les effets de voisinage influencent la force de puits de chaque boucle. Les forces de puits sont plus élevées pour les sphères que pour les tores (voir figure 4.16). Les boucles absorbent donc plus facilement les interstitiels dans ce premier cas, ce qui explique ces résultats.

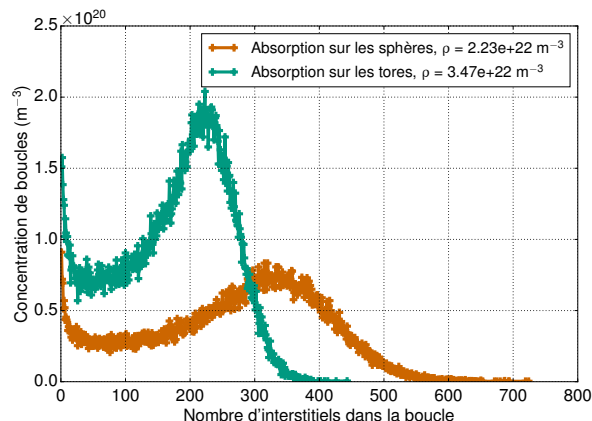


FIGURE 5.4 – Comparaison des distributions de tailles d’amas obtenues dans deux conditions d’absorption (sur les sphères et les tores), utilisant les mêmes paramètres $r_{DP} = r_{at} = 0.1503$ nm et $r_c = 0$.

5.2.4 Absorption sur les tores avec interactions élastiques

Définition de l’étude

Les distributions de tailles d’amas obtenues dans le cas 3 en OKMC, représentées sur la figure 4.6, sont comparées aux distributions de tailles d’amas obtenues en DA en utilisant les expressions de force de puits prenant en compte les interactions élastiques, soit :

- le modèle de Cade, définissant la force puits en milieu infini, par l’équation (1.71), c’est-à-dire :

$$\beta_n = 2\pi r_L Z_{\text{Cade}}^{\text{boucle}}(r_L, r_c^{\text{eff}})D, \quad (5.9)$$

- le modèle de Jourdan, prenant en compte l’effet de taille finie, selon l’équation (1.75) :

$$\beta_n = 2\pi r_L Z_{\text{Jourdan}}^{\text{boucle}}(r_L, r_c^{\text{eff}}, R)D, \quad (5.10)$$

où R est calculé selon (5.3).

Les interactions élastiques sont prises en compte par le rayon de capture effectif r_c^{eff} , comprenant la correction ε (eq. (4.25)), calculé à partir du volume de relaxation ΔV déduit du dipôle des interstitiels au point stable (voir chapitre 3, eq. (3.9)).

Résultats

Les distributions de tailles d’amas ainsi obtenues sont illustrées sur la figure 5.5, les densités de boucles et rayons moyens correspondants sont donnés dans le tableau 5.3. On peut voir que le modèle de DA en milieu infini (modèle de Cade) donne des distributions trop piquées et des rayons moyens inférieurs, surtout pour les fortes doses. La prise en compte du milieu fini ne permet pas de reproduire les résultats OKMC. Les rayons

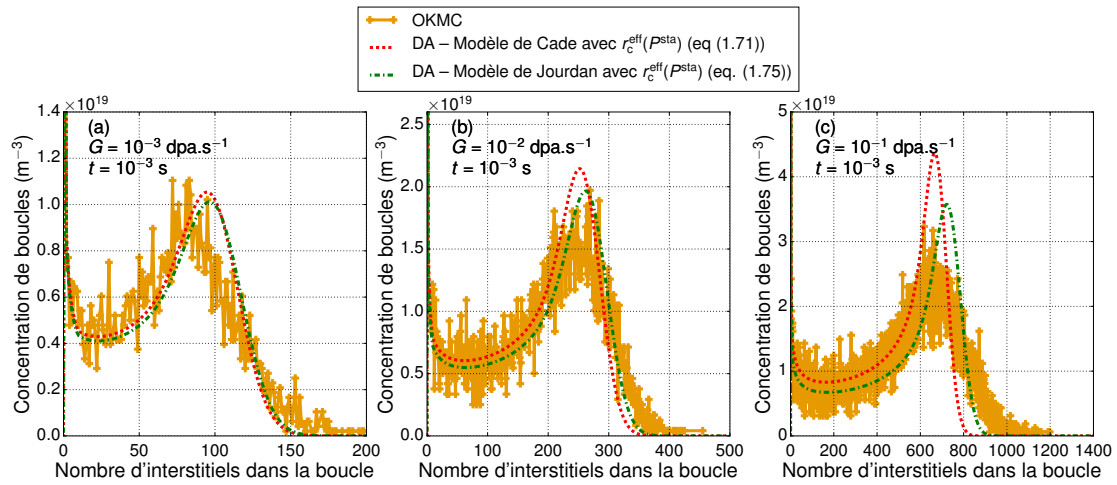


FIGURE 5.5 – Distributions obtenues en OKMC dans le cas 3 (absorption sur les tores avec interactions élastiques), comparées à celles obtenues en DA avec différents modèles de force de puits, à $t = 10^{-3}$ s et pour (a) $G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$, (b) $G = 10^{-2}$ dpa.s $^{-1}$ et (c) $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$. Les densités de boucles et rayons moyens correspondant à chaque courbe sont donnés dans le tableau 5.3.

moys sont relativement bien reproduits, mais comme dans les cas précédents, le modèle de force de puits ne permet pas de reproduire l'étalement de la distribution OKMC.

	$G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$	$G = 10^{-2}$ dpa.s $^{-1}$	$G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$
	$t = 10^{-3}$ s		
Fig. 5.5	(a)	(b)	(c)
	Densité de boucles $\bar{\rho}$ (m $^{-3}$)		
OKMC	$8.35 \cdot 10^{20}$	$3.13 \cdot 10^{21}$	$1.16 \cdot 10^{22}$
DA - Cade	$8.32 \cdot 10^{20}$	$3.24 \cdot 10^{21}$	$1.24 \cdot 10^{22}$
DA - Jourdan	$8.15 \cdot 10^{20}$	$3.10 \cdot 10^{21}$	$1.134 \cdot 10^{22}$
	Rayon moyen \bar{r} (nm)		
OKMC	1.34	2.18	3.58
DA - Cade	1.33	2.14	3.46
DA - Jourdan	1.35	2.18	3.62

TABLEAU 5.3 – Densités de boucles $\bar{\rho}$ (en m $^{-3}$) et rayon moyens \bar{r} (en nm) obtenues avec les différents modèles et pour les différentes valeurs de G , dans le cas 3 (absorption sur les tores, avec interactions élastiques).

Effets des interactions élastiques sur les distributions

Pour mettre en évidence les effets des interactions élastiques sur les distributions de tailles d’amas obtenues en OKMC, on compare les résultats des cas 2 et 3 avec $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$ et $t = 10^{-3}$ s. Cette comparaison est possible car les deux séries utilisent les paramètres $r_{DP} = 0$ et $r_c = 2b$. Elle est présentée sur la figure 5.6.

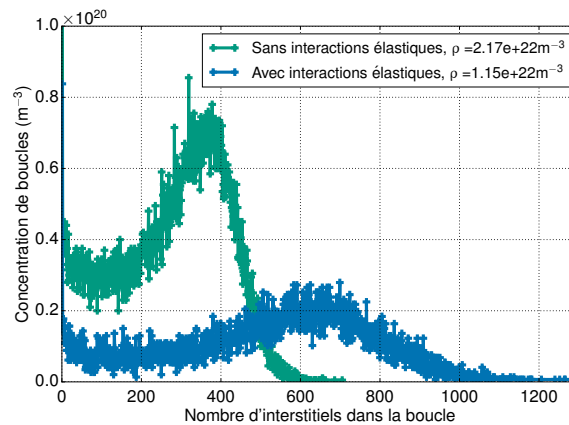


FIGURE 5.6 – Comparaison des distributions de tailles d’amas obtenues dans le cas où l’absorption se fait sur les tores avec et sans interactions élastiques. Les mêmes paramètres $r_{DP} = 0$ et $r_c = 2b$ sont utilisés.

Comme on pouvait s’y attendre, la prise en compte des interactions mène à des densités moins élevées, mais des rayons de boucles plus grands. L’augmentation des forces de puits et de leur dispersion due aux interactions élastiques a donc amplifié l’étalement de la distribution OKMC.

5.3 Développement d’une expression de force de puits prenant en compte les effets de voisinage

L’objectif de cette section est de construire une expression de force de puits permettant de reproduire la dispersion des forces de puits obtenues en OKMC.

Le travail de développement est réalisé en étudiant le cas 1 où l’absorption se fait sur les sphères englobant les tores et où les interactions élastiques ne sont pas prises en compte. Une fois construite, cette expression est adaptée aux cas 2 et 3 concernant l’absorption sur les tores.

5.3.1 Absorption sur les sphères englobantes sans interactions élastiques

On s’intéresse donc ici uniquement au cas 1. Les résultats obtenus au chapitre 4 ont permis de montrer que les valeurs de forces de puits et leur dispersion pouvaient être

reliées aux volumes de Voronoï (voir fig. 4.9, 4.14 et 4.19). Même s’il a été montré qu’un effet de forme et de position contribuait aussi à la dispersion des forces de puits (voir fig. 4.11 et 4.15), il semble que les forces de puits dépendent avant tout des volumes. C’est pourquoi on souhaite introduire les valeurs des volumes de Voronoï dans une expression de force de puits pour reproduire la dispersion des valeurs issues de l’OKMC.

La première étape de ce travail de développement de force de puits est donc de caractériser la distribution des volumes de Voronoï obtenus dans les microstructures OKMC d’où découlera la distribution des forces de puits.

Caractérisation des volumes de Voronoï

Afin de caractériser les volumes de Voronoï obtenus dans les microstructures OKMC, le volume moyen est calculé :

$$\langle V \rangle = \frac{1}{N^{\text{puits}}} \sum_i^{N^{\text{puits}}} V_i, \quad (5.11)$$

où V_i sont les volumes de Voronoï des N^{puits} présents dans les microstructures OKMC obtenues pour la même valeur du taux de création G , c’est-à-dire pour la même densité de boucles. On calcule ensuite la distribution des volumes de Voronoï normalisés $v = V/\langle V \rangle$.

Les résultats sont présentés pour le taux de création le plus élevé $G = 10^{-1}$ dpa.s⁻¹ sur la figure 5.7. La distribution est calculée à différents temps $t = 10^{-5}$, 10^{-4} et 10^{-3} s. On constate que la distribution reste identique au cours du temps, seul le volume moyen $\langle V \rangle$ évolue. Des résultats similaires sont obtenus pour les autres valeurs de G , mais ne sont pas présentés dans ce manuscrit.

Ces distributions sont comparées à l’expression analytique définissant la distribution de Poisson-Voronoï. Il s’agit de la distribution de volumes de Voronoï (normalisés) déterminés sur des points répartis aléatoirement dans l’espace. On utilise ici l’expression proposée par S. Kumar *et al.* [169] :

$$p(v) = \frac{v^{\gamma-1}}{\beta\gamma\Gamma(\gamma)} \exp\left(-\frac{v}{\beta}\right). \quad (5.12)$$

Dans cette équation, p est la probabilité de présence du volume, Γ est la fonction gamma, et β et γ sont deux paramètres. Ces derniers ont été déterminés par E. A. Lazar *et al.* [170] qui ont étudié 250 000 000 volumes :

$$\beta = 0.1790, \quad (5.13)$$

$$\gamma = \frac{1}{\beta} = 5.586. \quad (5.14)$$

L’expression analytique de la distribution de probabilité de Poisson-Voronoï est en excellent accord avec les distributions de volumes de Voronoï obtenus dans les microstructures OKMC. Ceci nous indique que les volumes de Voronoï dans ces microstructures suivent une distribution Poisson-Voronoï : les centres des boucles sont donc répartis

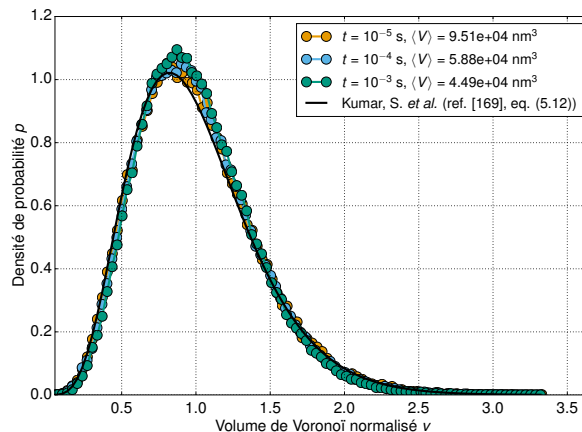


FIGURE 5.7 – Distributions des volumes de Voronoï obtenues dans les microstructures issues des simulations OKMC avec $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$ pour le cas 1 (absorption sur les sphères sans interactions élastiques), calculées à différents instants, et comparées à l’expression analytique de la distribution de Poisson-Voronoi.

aléatoirement dans l’espace. Ceci est cohérent dans notre cas, puisque les interactions élastiques ne sont pas considérées et la formation d’une boucle se fait au point de rencontre de deux interstitiels migrant selon une marche aléatoire.

Ainsi, les volumes de Voronoï sont déterminés à chaque instant par la distribution de Poisson-Voronoi (eq. (5.12)) qui pourra être introduite dans la DA.

Développement d’une expression de force de puits dépendant d’un volume effectif

L’approche envisagée ici consiste à introduire les effets de voisinage dans l’expression de force de puits en utilisant les volumes de Voronoï calculés pour chaque boucle. Comme indiqué dans le chapitre 4, la force de puits diminue si le volume de Voronoï diminue, car la densité locale de puits augmente et la concentration locale diminue : le puits considéré ne peut absorber qu’une quantité plus faible de défauts. En première approximation, on peut négliger les effets de volume fini et écrire le flux vers un puits sous la forme (Laplace, volume infini) :

$$\phi_i = 4\pi r_i D C_{i,\text{loc}}, \quad (5.15)$$

où $C_{i,\text{loc}}$ est la concentration de défauts ponctuels locale dans le voisinage de la boucle. Celle-ci est liée à la force de puits locale $k_{i,\text{loc}}^2$ par :

$$C_{i,\text{loc}} = \frac{G}{D k_{i,\text{loc}}^2}. \quad (5.16)$$

Toujours de manière approchée, la force de puits locale peut s’écrire :

$$k_{i,\text{loc}}^2 = \frac{4\pi\bar{r}}{V_i^{\text{eff}}}, \quad (5.17)$$

où \bar{r} est le rayon moyen des boucles présentes dans la microstructure, et V_i^{eff} est un volume moyen attribué à un puits dans le voisinage de i . On a donc supposé qu'il n'y a pas de corrélation entre les rayons d'amas proches. On a de plus la concentration moyenne de défauts dans toute la boîte :

$$\bar{C} = \frac{G}{Dk_{\text{tot}}^2}, \quad (5.18)$$

où k_{tot}^2 est la force de puits totale de la microstructure, que l'on écrit en première approximation comme

$$\begin{aligned} k_{\text{tot}}^2 &= \sum_i 4\pi r_i \frac{1}{V} \\ &= \frac{4\pi\bar{r}}{\langle V \rangle}, \end{aligned} \quad (5.19)$$

où $\langle V \rangle$ est le volume de Voronoï moyen.

En utilisant ces grandeurs, l'équation (5.15) devient

$$\phi_i = 4\pi r_i D \bar{C} \frac{V_i^{\text{eff}}}{\langle V \rangle}. \quad (5.20)$$

Or, la force de puits est évaluée dans les simulations OKMC par $k_{i,\text{sim}}^2 = \phi_i(1/V)/D\bar{C}$, elle pourrait donc être reproduite par la formule

$$k_i^2 = 4\pi r_i \frac{1}{V} \frac{V_i^{\text{eff}}}{\langle V \rangle}. \quad (5.21)$$

Cette expression combine la force de puits d'une boucle (ici d'une sphère, puisque l'absorption se fait sur la sphère englobante) de rayon r_i en milieu infini $4\pi r_i/V$ et un terme correctif $V_i^{\text{eff}}/\langle V \rangle$ qui vise à prendre en compte les effets de volume fini et de voisinage.

Il reste donc à déterminer les V_i^{eff} . C'est l'objet de la section suivante.

Détermination des volumes effectifs

La prise en compte des effets de voisinage dans l'expression de force de puits est donc introduite par le biais de volumes effectifs V^{eff} qui sont fonction des volumes de Voronoï. Ils correspondent au volume moyen des voisins du puits considéré (noté $V_{i,\text{pv}}$), en prenant éventuellement en compte le volume associé au puits lui-même (noté alors $V_{i,\text{pv}+v}$). Pour déterminer l'expression du volume effectif, on crée un ensemble de 100 000 points répartis aléatoirement dans un espace de taille donnée, et on détermine leurs volumes de Voronoï, qui suivent donc une distribution de Poisson-Voronoï. Ces points représentent les centres des boucles de dislocations. On calcule ensuite les volumes $V_{i,\text{pv}}$ et $V_{i,\text{pv}+v}$ en prenant en compte les voisins : le volume $V_{i,\text{pv}}$ est la valeur moyenne des volumes des premiers voisins du point i , c'est-à-dire :

$$V_{i,\text{pv}} = \frac{1}{n_i} \sum_{j=1}^{n_i} V_j, \quad (5.22)$$

où n_i est le nombre de premiers voisins du point i .

Les résultats sont représentés sur la figure 5.8. Un ajustement de ces valeurs permet d'obtenir l'expression :

$$\frac{V_{i,pv}}{\langle V \rangle} = \left(\frac{V_i}{\langle V \rangle} \right)^\alpha + \beta, \quad (5.23)$$

avec

$$\alpha = 0.25 \quad (5.24)$$

$$\beta = 0.07. \quad (5.25)$$

Si de plus on prend en compte le volume lui-même, en calculant

$$V_{i,v+pv} = \frac{1}{n_i + 1} (V_i + n_i V_{i,pv}), \quad (5.26)$$

on obtient une expression similaire, mais avec les paramètres

$$\alpha = 0.30 \quad (5.27)$$

$$\beta = 0.08. \quad (5.28)$$

Ces paramètres donnent lieu à une variation du volume effectif avec le volume de Voronoï indiquant qu'un gros volume est plus favorablement entouré de gros volumes que de petits volumes. Ceci semble cohérent avec la formation d'une microstructure.

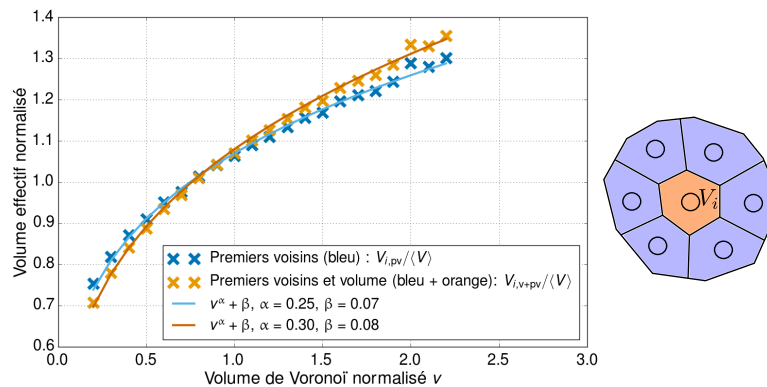


FIGURE 5.8 – Détermination du volume effectif à partir d'une distribution de volumes de Poisson-Voronoi. Le schéma de droite représente un volume de Voronoï et ses voisins, pour définir le code couleur utilisé.

On envisage donc de calculer le volume effectif sous la forme :

$$\frac{V_i^{\text{eff}}}{\langle V \rangle} = \left(\frac{V_i}{\langle V \rangle} \right)^\alpha + \beta, \quad (5.29)$$

c'est-à-dire, pour les volumes normalisés :

$$v_i^{\text{eff}} = v^\alpha + \beta. \quad (5.30)$$

Résultats

Pour tester la pertinence de cette formule, on utilise les valeurs de forces de puits k_i^2 obtenues dans les microstructures formées en OKMC pour calculer la grandeur $V_i^{\text{eff}}/\langle V \rangle = k_i^2/(4\pi(r_i+r_{\text{DP}}+\varepsilon)(1/V))$. Les résultats sont illustrés sur les figures 5.9 (a) et (d), pour les valeurs obtenues dans les microstructures formées avec $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$ et $G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$. On constate que les valeurs des volumes effectifs permettant de reproduire les valeurs de forces de puits obtenues dans les microstructures en OKMC sont bien de la forme donnée par l’équation (5.30). De plus, avec les valeurs obtenues pour la dispersion la plus élevée (pour $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$), on trouve pour paramètres optimaux (calculés par la méthode des moindres carrés) les valeurs $\alpha = 0.27$ et $\beta = 0.07$. Ceci est très proche des valeurs obtenues dans le cas où les premiers voisins sont utilisés pour déterminer le volume effectif (eq. (5.23)). Pour le cas où $G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$, pour lequel la dispersion était beaucoup plus faible, les paramètres optimaux trouvés sont $\alpha = 0.07$ et $\beta = 0.01$, traduisant la très faible dispersion des volumes et des forces de puits.

En calculant les forces de puits par l’équation (5.21), et en utilisant les paramètres α et β optimaux pour chaque cas, on obtient les efficacités d’absorption représentées sur les figures 5.9 (b) pour $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$ et (e) pour $G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$. On peut voir, par comparaison aux figures 4.8 (a) et (c), que les dispersions de forces de puits obtenues dans les microstructures OKMC sont assez bien reproduites par ces paramètres.

En utilisant les paramètres théoriques, on obtient enfin les figures 5.9 (c) pour $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$ et (f) pour $G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$. La différence entre les paramètres optimaux et théoriques étant faible pour le premier cas, la dispersion est ici encore bien représentée. Mais pour le taux de création le plus faible, la dispersion est surestimée.

En conclusion, la dispersion des forces de puits en OKMC peut être reproduite de façon satisfaisante aux fortes doses, en utilisant l’expression (5.21). Elle est construite en multipliant la force de puits obtenue en milieu infini par un facteur correctif prenant en compte les effets de volumes finis et de voisinage. Ce terme dépend d’un volume effectif qui est calculé sous la forme (5.30), et représente le volume moyen des voisins de chaque boucle. Les paramètres α et β ont été déterminés en étudiant une distribution de Poisson-Voronoi. Il valent $\alpha = 0.25$ et $\beta = 0.07$.

Il est important de noter que cette expression, en particulier lorsque les paramètres $\alpha = 0.25$ et $\beta = 0.07$ sont utilisés, introduit de la même façon la dispersion des forces de puits quelle que soit la densité de boucles. Il s’agit d’une approximation, puisque les résultats du chapitre 4 ont montré que la dispersion dépend de la densité de boucles. En conséquence, l’emploi des formules (5.21) et (5.30) avec $\alpha = 0.25$ et $\beta = 0.07$ en DA pourrait mener à des distributions trop étalées en comparaison aux résultats OKMC. On conserve cependant cette approche, car elle fournit des résultats relativement corrects en présentant l’avantage d’une grande simplicité, et d’une justification physique des paramètres α et β . D’autres formulations, notamment basées sur l’approche de A. D. Brailsford *et al.* (eq. (1.61)), ont été envisagées dans le but de réduire la dispersion aux faibles densités d’amas (voir annexe E). En effet, ce modèle repose sur l’existence d’un volume propre autour de l’amas qui peut être assimilé au volume de Voronoi. Cependant, ces approches n’ont pas été fructueuses.

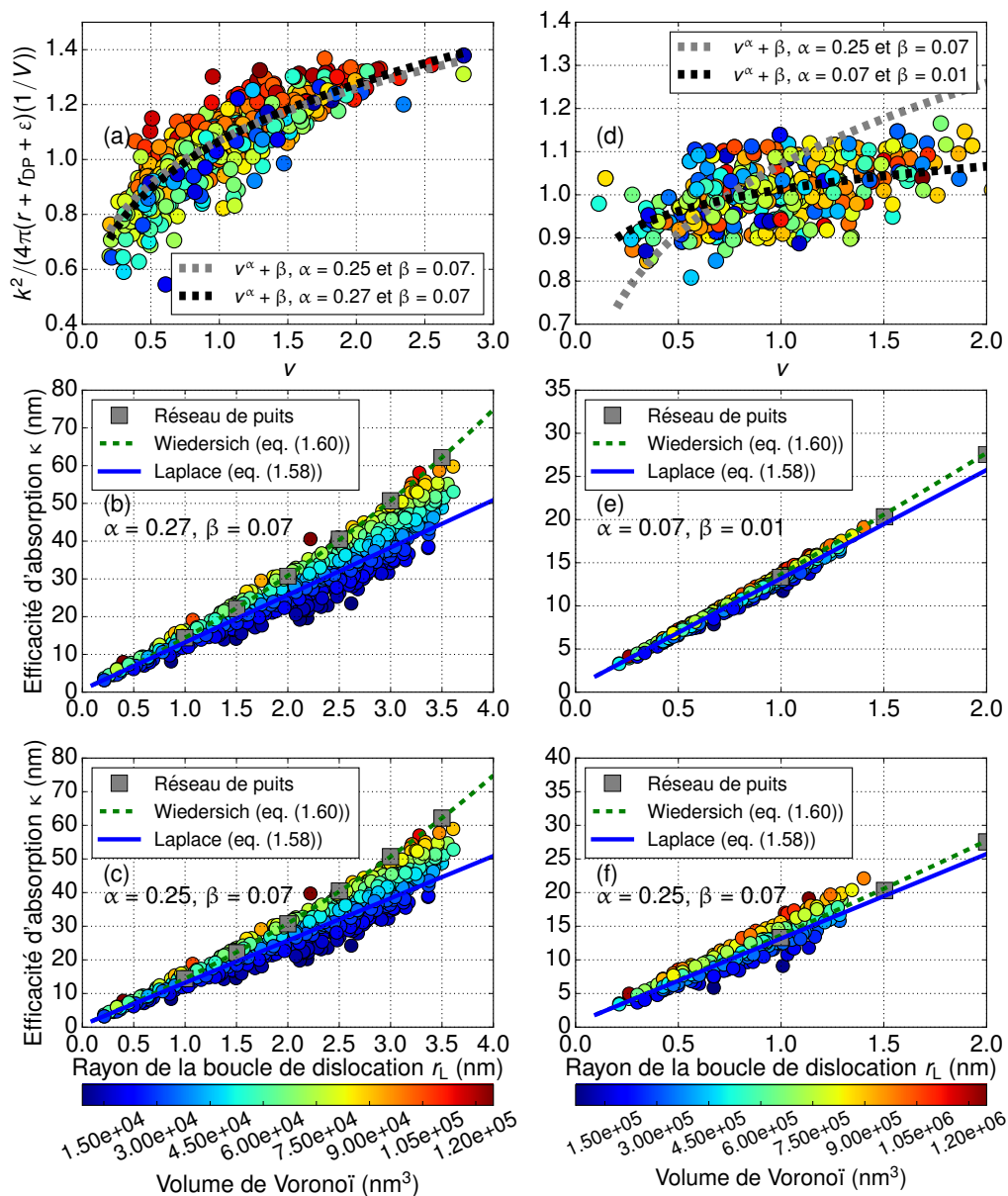


FIGURE 5.9 – Cas 1 - absorption sur les sphères englobantes sans interactions élastiques. Calcul du facteur $V_i^{\text{eff}}/\langle V \rangle = k_i^2/(4\pi(r_i + r_{DP} + \epsilon)(1/V))$ à partir des valeurs issues des calculs OKMC dans les microstructures obtenues avec (a) $G = 10^{-1}$ dpa.s⁻¹ et (d) $G = 10^{-3}$ dpa.s⁻¹. Les courbes grises représentent les valeurs obtenues avec les paramètres α et β issus de l'analyse sur les distributions de Poisson-Voronoi ($\alpha = 0.25$ et $\beta = 0.07$), et les courbes noires sont obtenues par un ajustement par moindres carrés des valeurs OKMC. Valeurs des forces de puits reproduites à partir des formules (5.21) et (5.30), en utilisant les paramètres optimaux pour les microstructures obtenues avec (b) $G = 10^{-1}$ dpa.s⁻¹ et (e) $G = 10^{-3}$ dpa.s⁻¹, puis en utilisant les paramètres $\alpha = 0.25$ et $\beta = 0.07$ pour les microstructures obtenues avec (c) $G = 10^{-1}$ dpa.s⁻¹ et (f) $G = 10^{-3}$ dpa.s⁻¹.

Dans la suite, on propose une adaptation de cette formule pour les deux cas où l’absorption se fait sur les tores (cas 2 et 3).

5.3.2 Absorption sur les tores sans interactions élastiques

Caractérisation des volumes de Voronoï

La première étape pour adapter la formule de force de puits (5.21) au cas des tores est de caractériser les volumes de Voronoï des microstructures. Dans ce cas (cas 2) où les interactions ne sont pas prises en compte, les centres des boucles devraient encore être répartis aléatoirement dans l’espace et donc les distributions des volumes devraient encore suivre la distribution de Poisson-Voronoi. Pour s’en assurer la distribution des volumes est calculée pour les microstructures obtenues dans le cas 2. Les résultats obtenus à différents instants dans les microstructures formées avec $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$ sont illustrés sur la figure 5.10 (des résultats similaires sont obtenus pour les autres valeurs de G). On constate encore une fois que les distributions de volumes normalisés sont inchangées au cours du temps et sont en très bon accord avec la formule analytique de S. Kumar *et al.* (ref. [169], eq. (5.12)).

La distribution de Poisson-Voronoi pourra donc être utilisée en DA, de la même façon que dans le cas précédent.

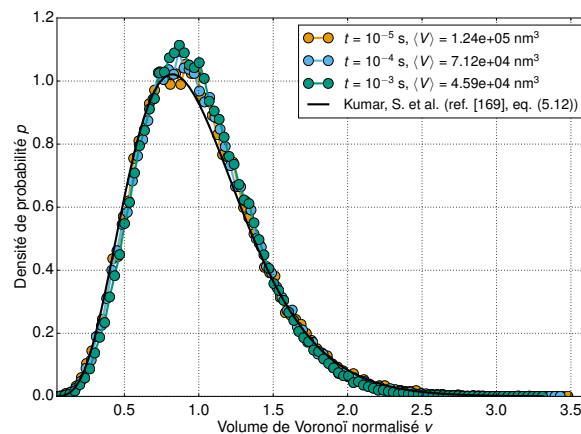


FIGURE 5.10 – Distributions des volumes de Voronoï obtenues dans les microstructures issues des simulations OKMC avec $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$ pour le cas 2 (absorption sur les tores sans interactions élastiques), calculées à différents instants, et comparées à l’expression analytique de la distribution de Poisson-Voronoi.

Adaptation d’une expression de force de puits dépendant d’un volume effectif

La formule (5.21) développée pour les sphères est constituée de deux termes : la force de puits en milieu infini et un terme correctif $V^{\text{eff}}/\langle V \rangle$. Dans le cas des tores sans

interactions élastiques, la force de puits en milieu infini d'une boucle i , de rayon r_i peut s'écrire :

$$k_i^2 = 2\pi r_i Z_{\text{Cade}}^{\text{boucle}}(r_i, r_c + \varepsilon) \frac{1}{V}, \quad (5.31)$$

où $r_c = 2b$ est le rayon de la section circulaire et $Z_{\text{Cade}}^{\text{boucle}}$ est l'efficacité d'absorption du tore en milieu infini donnée par l'équation (1.71).

On propose donc la formule suivante pour reproduire la dispersion des forces de puits obtenue en OKMC dans le cas 2 :

$$k_i^2 = 2\pi r_i Z_{\text{Cade}}^{\text{boucle}}(r_i, r_c + \varepsilon) \frac{1}{V} \frac{V_i^{\text{eff}}}{\langle V \rangle}. \quad (5.32)$$

Les volumes effectifs théoriques étant indépendants de la géométrie du puits, on conserve l'expression (5.30).

Résultats

À partir des valeurs de forces de puits déterminées au chapitre 4 pour le cas 2, on calcule les valeurs $V_i^{\text{eff}}/\langle V \rangle = k_i^2/(2\pi r_i(1/V)Z_{\text{Cade}}^{\text{boucle}}(r_i, r_c + \varepsilon))$. Les valeurs obtenues pour les microstructures formées avec $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$ et $G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$ sont représentées sur les figures 5.11 (a) et (d) respectivement. Comme dans le cas des sphères, on constate que l'expression (5.30) est bien adaptée pour représenter les volumes effectifs dans le cas où la dispersion est la plus importante. Les paramètres α et β obtenus par moindres carrés sont $\alpha = 0.24$ et $\beta = 0.08$, très proches de ceux obtenus théoriquement ($\alpha = 0.25$ et $\beta = 0.07$). Pour le cas du taux de création le plus faible, on constate que les volumes effectifs permettant de reproduire la dispersion sont très surestimés par les valeurs théoriques des paramètres, les valeurs optimales étant de $\alpha = 0.04$ et $\beta = 0.01$, du fait de la très faible dispersion des valeurs de forces de puits.

Comme pour les sphères, on représente ensuite les valeurs de forces de puits obtenues par la formule (5.32), pour les paramètres optimaux déterminés pour chaque cas (fig. 5.11 (b) et (e)) et pour les paramètres théoriques (fig. 5.11 (c) et (f)). On constate que pour le taux de création le plus élevé, la dispersion obtenue en OKMC (visible sur les figures 4.13 (a) et 4.14) est bien représentée pour les deux valeurs des paramètres α et β . Mais comme pour le cas 1, la dispersion est surestimée pour les valeurs obtenues avec le taux de création le plus faible, si on utilise les paramètres théoriques $\alpha = 0.25$ et $\beta = 0.07$.

On peut donc utiliser l'expression (5.32) pour représenter la dispersion des valeurs de forces de puits, avec les équations (5.30), (5.24) et (5.25). Il faut alors, comme pour les sphères, s'attendre à des distributions de tailles d'amas trop étalées aux plus faibles densités.

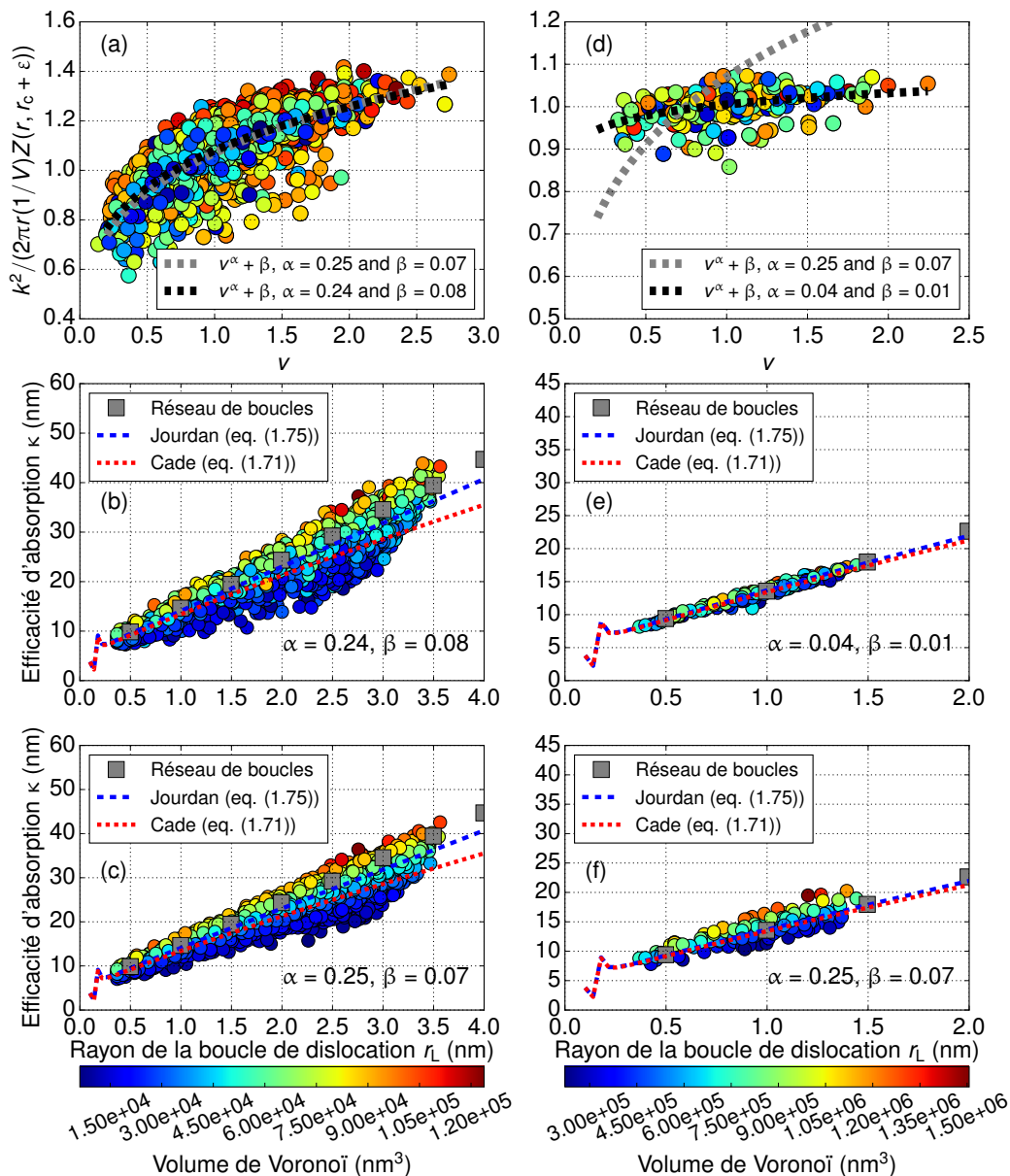


FIGURE 5.11 – Cas 2 - absorption sur les tores sans interactions élastiques. Calcul du facteur $V_i^{\text{eff}} / \langle V \rangle = k_i^2 / (2\pi r_i (1/V) Z_{\text{Cade}}^{\text{boucle}}(r_i, r_c + \epsilon))$ à partir des valeurs issues des calculs OKMC dans les microstructures obtenues avec (a) $G = 10^{-1}$ dpa.s⁻¹ et (d) $G = 10^{-3}$ dpa.s⁻¹. Les courbes grises représentent les valeurs obtenues avec les paramètres α et β issus de l'analyse sur les distributions de Poisson-Voronoi ($\alpha = 0.25$ et $\beta = 0.07$), et les courbes noires sont obtenues par un ajustement par moindres carrés des valeurs OKMC. Valeurs des forces de puits reproduites à partir des formules (5.21) et (5.30), en utilisant les paramètres optimaux pour les microstructures obtenues avec (b) $G = 10^{-1}$ dpa.s⁻¹ et (e) $G = 10^{-3}$ dpa.s⁻¹, puis en utilisant les paramètres théoriques ($\alpha = 0.25$ et $\beta = 0.07$) pour les microstructures obtenues avec (c) $G = 10^{-1}$ dpa.s⁻¹ et (f) $G = 10^{-3}$ dpa.s⁻¹.

5.3.3 Absorption sur les tores avec interactions élastiques

Caractérisation des volumes de Voronoï

Les distributions des volumes de Voronoï obtenues dans les microstructures formées dans le cas 3, où l’absorption se fait sur les tores avec prise en compte des interactions élastiques dès la formation d’amas de deux interstitiels ou plus et avec $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$, sont calculées à différents instants. Les résultats sont représentés sur la figure 5.12. On constate cette fois-ci que la distribution analytique de Poisson-Voronoï ne représente plus parfaitement les distributions issues des simulations OKMC. Ceci n’est pas surprenant, sachant que la formation des boucles se fait par agglomération d’interstitiels, dont la migration est désormais influencée par les champs élastiques des boucles présentes. Les centres des boucles ne sont donc plus répartis aléatoirement dans l’espace. Cependant, les distributions gardent une forme similaire aux valeurs obtenues par la formule analytique. On prend donc la décision de conserver la distribution de Poisson-Voronoï pour déterminer les forces de puits. Il s’agit d’une approximation qui peut nous faire perdre en précision dans ce cas, une fois introduite dans la DA.

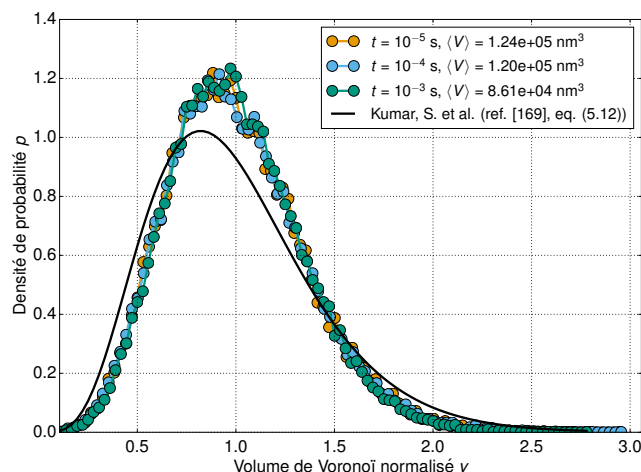


FIGURE 5.12 – Distributions des volumes de Voronoï obtenues dans les microstructures issues des simulations OKMC avec $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$ pour le cas 3 (absorption sur les tores avec interactions élastiques), calculées à différents instants, et comparées à l’expression analytique de la distribution de Poisson-Voronoï.

Adaptation d’une expression de force de puits dépendant d’un volume effectif

De la même façon que pour le cas des tores sans interactions élastiques, on propose d’adapter l’expression (5.21) sous la forme :

$$k_i^2 = 2\pi r_i Z_{\text{Cade}}^{\text{boucle}}(r_i, r_c^{\text{eff}}) \frac{1}{V} \frac{V_i^{\text{eff}}}{\langle V \rangle}, \quad (5.33)$$

où on utilise le rayon de capture effectif r_c^{eff} visant à prendre en compte les interactions élastiques. Il est calculé selon l'équation (1.73), à partir du volume de relaxation des interstitiels au point stable, et comprend la correction ε (eq. (4.25)).

On fait le choix de ne pas recalculer les paramètres α et β pour ajuster les valeurs OKMC par (5.33). On utilisera donc, pour calculer les volumes effectifs, les valeurs théoriques $\alpha = 0.25$ et $\beta = 0.07$. Ce choix est justifié par le fait qu'un tel ajustement pourrait inclure dans le volume effectif, et donc dans les valeurs de α et β des effets dus aux interactions élastiques, qui dépendent des conditions de calcul (notamment la température, les constantes élastiques, les propriétés des défauts ponctuels...), ce qui pourrait rendre les paramètres α et β non transposables.

On compare donc directement les valeurs obtenues dans les microstructures OKMC (fig. 4.17) aux valeurs obtenues avec la formule (5.33) et les valeurs théoriques $\alpha = 0.25$ et $\beta = 0.07$. Les résultats pour les taux de création $G = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$ et $G =$

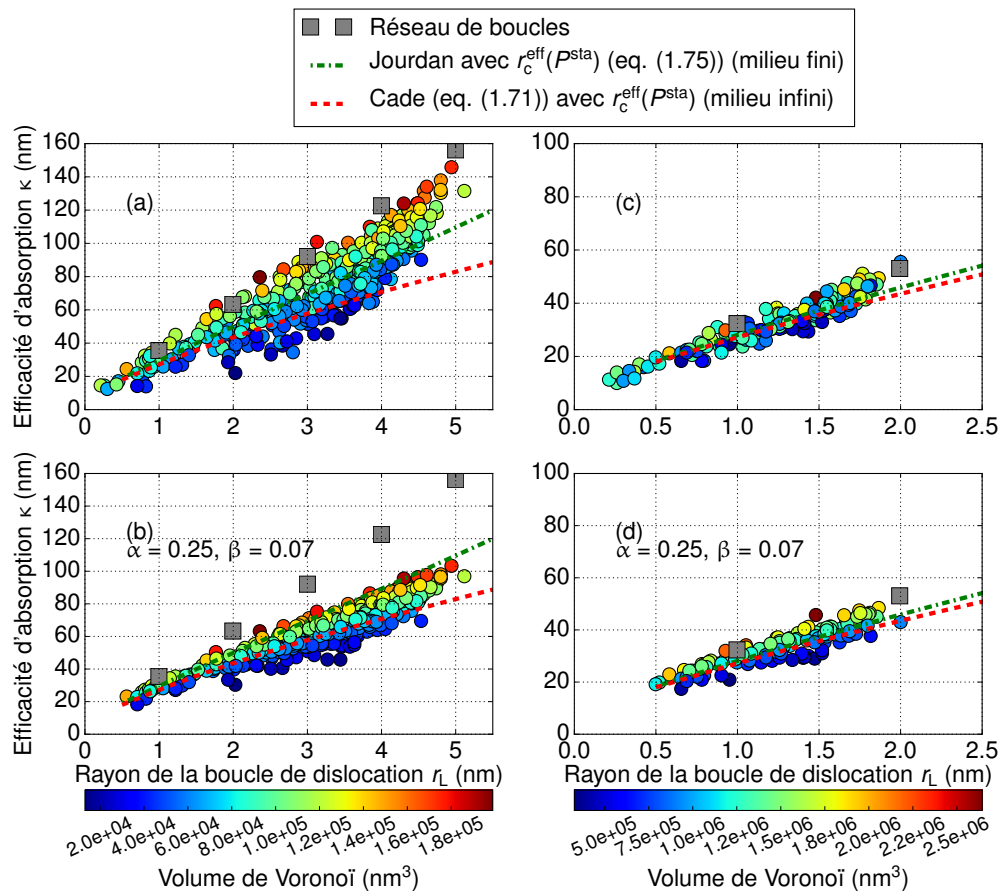


FIGURE 5.13 – Rappels des valeurs de forces de puits obtenues dans les microstructures OKMC pour (a) $G = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$ et (c) $G = 10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1}$. Valeurs de forces de puits obtenues par la formule (5.33) pour (b) $G = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$ et (d) $G = 10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1}$.

10^{-3} dpa.s⁻¹ sont présentés sur la figure 5.13. Les résultats obtenus pour la densité la plus faible (fig. 5.13 (d)) reproduisent correctement les résultats obtenus en OKMC (rappelés sur la fig. 5.13 (c)). En effet, à ces densités et rayons, le modèle de Cade passe relativement au milieu des valeurs obtenues dans les microstructures OKMC. En dispersant les forces de puits autour de cette courbe, il est donc possible de reproduire la dispersion OKMC. Comme vu au chapitre 4, la dispersion est amplifiée par la prise en compte des interactions élastiques. En conséquence, l’amplitude de la dispersion aux faibles doses est ici bien reproduite par la formule (5.30), ce qui aboutit à la bonne reproduction des résultats OKMC. En revanche pour la densité la plus élevée, le modèle de Cade sous-estime les valeurs obtenues dans les microstructures OKMC. En conséquence, les valeurs reproduites par la formule (5.33) (fig. 5.13 (b)) sont plus faibles que les valeurs obtenues en OKMC (rappelées sur la fig. 5.13 (a)). Elles sont également moins dispersées, l’expression (5.30) sous-estimant la dispersion obtenue en OKMC, qui est amplifiée par les interactions élastiques.

La formule (5.33) permet donc de reproduire la dispersion pour des densités faibles de boucles (faibles dispersions), mais ne reproduit pas les résultats les plus dispersés aux fortes densités. En l’introduisant en DA, on peut donc s’attendre à ce que les distributions restent trop piquées par rapport à l’OKMC. Un développement plus spécifique à la prise en compte des effets de voisinage dans le cas avec interactions élastiques serait nécessaire pour pouvoir bien reproduire la dispersion.

5.3.4 Résumé

Dans cette section, nous avons développé des expressions de forces de puits en vue de reproduire les forces de puits obtenues dans les microstructures en OKMC. Ces expressions dépendent des volumes de Voronoï de l’amas. Ceux-ci suivent une distribution proche de la distribution de Poisson-Voronoï, qui pourra être introduite dans la DA.

L’expression développée est constituée de la force de puits en milieu infini, multipliée par un terme correctif $v^{\text{eff}} = V^{\text{eff}}/\langle V \rangle$ incluant les effets de voisinage et de volume fini. En se plaçant d’un point de vue de la DA, la force de puits d’une population d’amas de rayon r_n et de volume de Voronoï normalisé v , présente avec une concentration $C_n(v)$, vaut :

- Cas 1 - sphères sans interactions :

$$k^2(r_n, v, C_n) = 4\pi r_n C_n(v) v^{\text{eff}}, \quad (5.34)$$

- Cas 2 - tores sans interactions :

$$k^2(r_n, v, C_n) = 2\pi r_n C_n(v) Z_{\text{Cade}}(r_n, r_c) v^{\text{eff}}, \quad (5.35)$$

- Cas 3 - tores avec interactions :

$$k^2(r_n, v, C_n) = 2\pi r_n C_n(v) Z_{\text{Cade}}(r_n, r_c^{\text{eff}}) v^{\text{eff}}, \quad (5.36)$$

avec $v^{\text{eff}} = v^\alpha + \beta$.

Dans ces équations, on utilise $\alpha = 0.25$ et $\beta = 0.07$. De cette façon, le volume effectif représente le volume de Voronoï moyen des puits voisins de la boucle. Ce facteur correctif est indépendant de la densité, ce qui est une approximation par rapport aux résultats observés en OKMC.

Compte tenu des résultats obtenus pour chaque cas, en utilisant cette expression de force de puits en DA, on peut s’attendre à :

- dans les cas sans interactions : bien reproduire l’étalement des distributions OKMC pour les fortes densités de boucles, mais surestimer celles aux faibles densités. La surestimation de l’étalement des distributions aux faibles densités pourrait cependant mener à une surestimation aux fortes doses par effet d’accumulation.
- dans le cas avec interactions élastiques : obtenir un bon accord aux faibles densités de boucles, mais sous-estimer l’étalement de la distribution aux fortes densités.

Dans la section suivante, on présente la méthode utilisée pour introduire ces expressions de forces de puits en DA, permettant à des amas appartenant à la même classe d’avoir des forces de puits différentes. L’étude des paramètres numériques est présentée en détail sur le cas 1, seuls les résultats sont présentés pour les cas 2 et 3.

5.4 Introduction de la dispersion des forces de puits dans la dynamique d’amas

5.4.1 Méthode

Dans les simulations OKMC réalisées dans cette thèse, la température est fixée à 300 K, c’est pourquoi l’émission de défauts ponctuels par les puits et amas est négligée. Les équations de la DA classique correspondant à ces simulations excluent les termes liés à l’émission. Les interstitiels constituent la seule espèce mobile, les équations sont donc les suivantes :

$$\begin{cases} \frac{dC_n}{dt} = \beta_{n-1}C_{n-1}C_1 - \beta_nC_nC_1 & n \geq 2 \\ \frac{dC_1}{dt} = -\beta_1C_1C_1 - \sum_{n \geq 1} \beta_nC_nC_1, \end{cases} \quad (5.37)$$

où C_n est la concentration d’amas de classe n , c’est-à-dire de boucles contenant n interstitiels, C_1 est la concentration d’interstitiels, et β_n est le coefficient d’absorption d’un interstitiel pour un amas de classe n . Dans cette section, on ne considère que des boucles interstitielles, donc $n > 0$ et on peut confondre classe et taille d’amas. Les coefficients d’absorption correspondent à l’approche de Laplace en milieu infini, pour des amas sphériques (cas 1).

La dispersion des forces de puits étant représentée par les équations (5.34), (5.35) et (5.36), et sachant que le coefficient d’absorption est lié à la force de puits par

$$\beta_n = \frac{k_n^2}{C_n} D, \quad (5.38)$$

la dispersion peut être introduite dans les équations de la DA par le coefficient d'absorption.

On note n^* la taille à partir de laquelle la dispersion des forces de puits est introduite, avec $n^* \geq 2$. Pour $n \geq n^*$, le coefficient d'absorption dépend donc du volume effectif normalisé v^{eff} . Ce volume est calculé à partir du volume de Voronoï normalisé, selon l'équation (5.30). En notant comme précédemment le volume de Voronoï normalisé v , on a :

— dans le cas 1 :

$$\beta_n(v) = 4\pi(r_n + r_1 + \varepsilon)(v^\alpha + \beta)D, \quad (5.39)$$

— dans le cas 2 :

$$\beta_n(v) = 2\pi r_n Z_{\text{Cade}}^{\text{boucle}}(r_n, r_c + \varepsilon)(v^\alpha + \beta)D, \quad (5.40)$$

— dans le cas 3 :

$$\beta_n(v) = 2\pi r_n Z_{\text{Cade}}^{\text{boucle}}(r_n, r_c^{\text{eff}})(v^\alpha + \beta)D, \quad (5.41)$$

où $n \geq n^*$ et, pour l'équation (5.41), r_c^{eff} calculé selon l'équation (1.73) et comprend la correction ε (eq. (4.25)).

On adopte une nouvelle description des amas, qui sont désormais décrits par leur taille et leur volume de Voronoï. La concentration d'amas de classe n dépend donc également de ce volume normalisé v et est donc notée $C_n(v)$. Nous avons vu un peu plus haut que les grands amas (les grandes boucles) sont plus fréquemment présents dans les grands volumes de Voronoï que dans les plus petits. Ceci signifie que le changement de voisinage d'une boucle, c'est-à-dire son changement de volume de Voronoï, doit se faire sur un temps suffisamment long par rapport à la croissance des amas. En conséquence, il n'est pas introduit de couplage entre les concentrations $C_n(v)$ et $C_n(v')$: le voisinage d'un amas est supposé invariant. Cette approximation peut mener à une surestimation de la dispersion. Ceci peut être vérifié a posteriori sur les distributions obtenues par ces équations.

Le système (5.37) devient l'ensemble d'équations :

$$\frac{dC_n}{dt} = \beta_{n-1}C_{n-1}C_1 - \beta_n C_n C_1 \quad 2 \leq n \leq n^* - 1 \quad (5.42)$$

$$\frac{dC_n(v)}{dt} = P(v)\beta_{n-1}C_{n-1}C_1 - \beta_n(v)C_n(v)C_1 \quad n = n^*, v \in]0, \infty[\quad (5.43)$$

$$\frac{dC_n(v)}{dt} = \beta_{n-1}(v)C_{n-1}(v)C_1 - \beta_n(v)C_n(v)C_1 \quad n > n^*, v \in]0, \infty[\quad (5.44)$$

$$\frac{dC_1}{dt} = -\beta_1 C_1 C_1 - \sum_{1 \leq n \leq n^* - 1} \beta_n C_n C_1 - \int_0^\infty \sum_{n \geq n^*} \beta_n(v) C_n(v) C_1 P(v) dv. \quad (5.45)$$

Dans ces équations, $P(v)$ est la distribution de Poisson-Voronoï.

Pour résoudre ces équations numériquement, deux méthodes sont possibles : une approche déterministe et une approche stochastique.

Approche déterministe

Cette première méthode consiste à discrétiser les valeurs de volumes normalisés v . On considère alors les valeurs v_i , où $i = 1, \dots, N$, et N est le nombre de volumes normalisés considérés, séparés par un pas constant noté Δv . Les valeurs de v comprises entre 0 et 5 (c'est-à-dire des volumes de 0 à $5\langle V \rangle$) sont suffisantes pour échantillonner précisément la distribution de Poisson-Voronoi (voir fig. 5.7). On utilise alors les notations $C_{n,i} = C_n(v_i)$, $\beta_{n,i} = \beta_n(v_i)$ et $P_i = P(v_i)$. On obtient donc le nouvel ensemble d'équations à résoudre :

$$\frac{dC_n}{dt} = \beta_{n-1}C_{n-1}C_1 - \beta_n C_n C_1 \quad 2 \leq n \leq n^* - 1 \quad (5.46)$$

$$\frac{dC_{n,i}}{dt} = \Delta v P_i \beta_{n-1} C_{n-1} C_1 - \beta_{n,i} C_{n,i} C_1 \quad n = n^*, i \in [1, N] \quad (5.47)$$

$$\frac{dC_{n,i}}{dt} = \beta_{n-1,i} C_{n-1,i} C_1 - \beta_{n,i} C_{n,i} C_1 \quad n > n^*, i \in [1, N] \quad (5.48)$$

$$\frac{dC_1}{dt} = -\beta_1 C_1 C_1 - \sum_{1 \leq n \leq n^* - 1} \beta_n C_n C_1 - \sum_{i=1}^N \Delta v P_i \sum_{n \geq n^*} \beta_{n,i} C_{n,i} C_1. \quad (5.49)$$

Cet ensemble d'équations peut être facilement introduit dans le code CRESCENDO, qui permet de considérer plusieurs populations d'amas, couplées via l'équation sur les mono-interstitiels mobiles [112].

Le coût numérique est augmenté par cette méthode, puisque le nombre d'équations est multiplié par N par rapport au calcul de DA classique comprenant une seule population d'amas.

Approche hybride

Une façon plus élégante de résoudre les équations (5.42) à (5.45) est d'utiliser une méthode hybride déterministe/stochastique, développée récemment pour le code CRESCENDO [126]. Dans cette méthode, les petits amas, de taille $n \leq n^*$, sont traités de façon déterministe, et les équations pour les amas de plus grande taille sont résolues de façon stochastique, soit par un processus de saut, soit par un processus de Langevin associé à l'équation de Fokker-Planck (voir chapitre 2). Comme décrit dans le chapitre 2, les parties déterministe et stochastique sont séparées par une zone tampon, où le transfert entre la zone déterministe et la zone stochastique est effectué. La dispersion des forces de puits peut être introduite de façon naturelle dans cette méthode. Á chaque fois qu'une particule stochastique est créée, du fait du flux d'amas de la zone déterministe vers la zone stochastique, on lui associe un volume normalisé v , tiré aléatoirement dans la distribution de Poisson-Voronoi. La particule évolue ensuite, en fonction de la valeur du coefficient d'absorption qui dépend du volume normalisé.

5.4.2 Résultats

Cas 1 : absorption sur les sphères englobantes - Fortes doses et comparaison des approches déterministe et hybride

Commençons par résoudre les équations (5.42) à (5.45) dans le cas 1 - absorption sur les sphères englobantes, sans interactions élastiques. Dans un premier temps, on s'intéresse uniquement aux résultats obtenus pour le taux de création le plus important $G = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$, qui donne la plus forte dispersion des forces de puits en OKMC. On réalise les comparaisons avec la DA comprenant les forces de puits dispersées, qui est notée DA-d. Les simulations sont faites pour un temps de $t = 10^{-3} \text{ s}$, correspondant à l'instant auquel les forces des puits ont été étudiées, et pour un temps plus long de $t = 2 \cdot 10^{-3} \text{ s}$. Les résultats sont illustrés sur la figure 5.14.

On compare ici les résultats issus des simulations OKMC et de la DA classique à ceux obtenus par la DA-d avec les méthodes hybrides et stochastiques. On a utilisé $n^* = 20$, avec de plus pour la méthode stochastique une zone tampon de largeur 30. Ces valeurs sont choisies pour obtenir de bonnes performances et une bonne précision pour l'algorithme hybride. Pour la méthode déterministe, on a utilisé $N = 25$ valeurs de

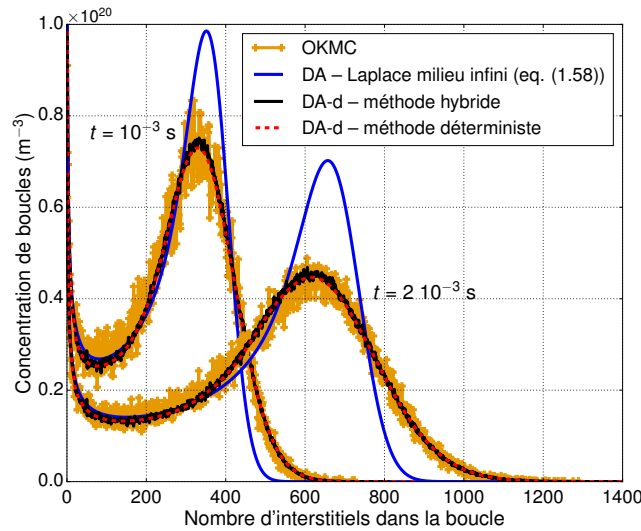


FIGURE 5.14 – Distributions de tailles d'amas obtenues pour des temps de $t = 10^{-3} \text{ s}$ et $t = 2 \cdot 10^{-3} \text{ s}$ en OKMC et pour différents modèles de DA : DA classique (sans dispersion des forces de puits) notée DA, et DA avec dispersion des forces de puits, notée DA-d. Avec la méthode hybride déterministe/stochastique, les forces de puits sont dispersées dans la partie stochastique pour des tailles supérieures à $n^* = 20$, et on utilise 2 millions de particules stochastiques. Pour la méthode déterministe, les forces de puits sont dispersées pour des tailles supérieures à $n^* = 20$, en utilisant $N = 25$ volumes normalisés pour échantillonner la distribution de Poisson-Voronoi.

volumes normalisés. On a vérifié que pour cette valeur la distribution est bien simulée, alors que pour des valeurs trop faibles de N ($N \lesssim 15$) la distribution devient déformée.

On peut remarquer que la dispersion des forces de puits introduite dans la DA-d permet de reproduire les distributions OKMC de façon très satisfaisante, contrairement à la DA classique qui aboutit à une distribution trop piquée. Pour un temps de $t = 2 \cdot 10^{-3}$ s, plus long que celui auquel l’étude des forces de puits a été réalisé, l’écart entre OKMC et DA classique s’est amplifié, tandis que la DA-d avec les forces de puits dispersées est restée très fidèle à la distribution OKMC. Ces résultats semblent indiquer que la méthode que nous utilisons est assez robuste, puisque les forces de puits n’étaient pas ajustées pour ce temps.

L’efficacité d’absorption κ des particules stochastiques simulées en DA peut être déduite des simulations DA-d par $\kappa = \beta/D$. Ici, les particules stochastiques sont assimilables aux amas qu’elles représentent. Les efficacités d’absorption obtenues en simulant un temps $t = 10^{-3}$ s avec la méthode DA-d hybride sont représentées sur la figure 5.15 (b), en fonction du rayon des amas. La forme globale de la dispersion obtenue est très proche de celle obtenue pour des conditions similaires en OKMC, rappelée sur la figure 5.15 (a), avec des grands amas présents principalement dans des grands volumes de Voronoï. Ceci est dû au fait que l’environnement d’une boucle reste constant durant la simulation DA, permettant aux boucles présentes dans des grands volumes de croître plus facilement. La similarité des dispersions de forces de puits OKMC et DA-d semble valider cette approximation. On pourrait envisager d’utiliser un modèle plus complexe, en échantillonnant à nouveau certains coefficients d’absorption des particules stochastiques en fonction du taux de germination des amas. Ce niveau de complexité ne paraît

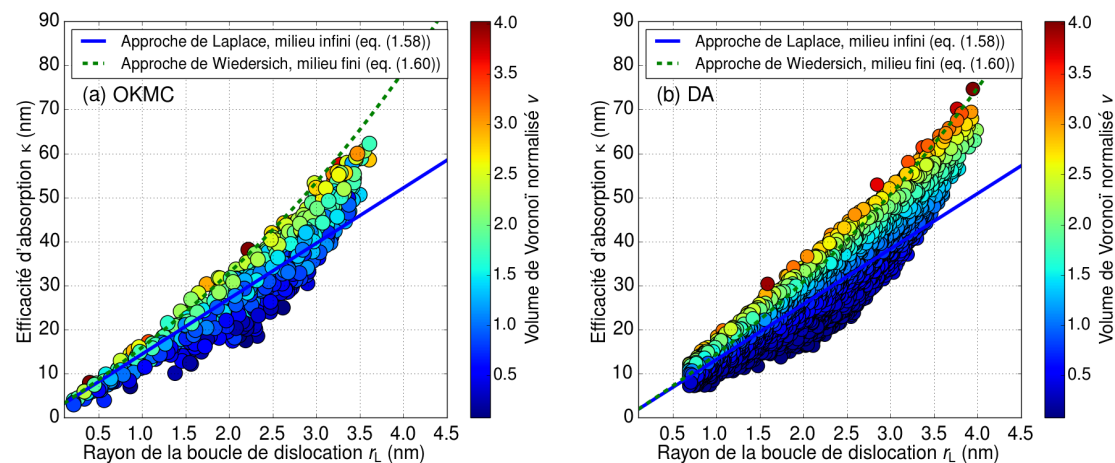


FIGURE 5.15 – (a) Efficacités d’absorption $\kappa = k^2/\rho$ et volumes de Voronoï normés dans les microstructures OKMC obtenues avec $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$ pour le cas 1, obtenues au temps $t = 10^{-3}$ s. (b) Efficacités d’absorption $\kappa = \beta/D$ obtenues à un temps $t = 10^{-3}$ s, extraites des valeurs associées aux particules stochastiques dans les calculs DA-d hybrides.

pas nécessaire pour le cas traité ici.

La valeur de n^* , définissant la taille à partir de laquelle la dispersion des forces de puits est introduite, a été choisie pour optimiser les performances, la précision et l’efficacité des calculs utilisant l’algorithme hybride. Il est très simple de faire varier ce paramètre dans les calculs utilisant la méthode déterministe, afin d’étudier l’influence de la dispersion des forces de puits des petits amas immobiles. Cette étude est présentée sur la figure 5.16. En diminuant la valeur de n^* , on obtient un moins bon accord avec la distribution OKMC que pour $n^* = 20$, mais l’accord reste meilleur qu’avec la DA classique sans dispersion des forces de puits. La formule (5.30) surestime très probablement la dispersion pour les petits rayons, ce qui explique que la distribution soit trop étalée pour les valeurs trop faibles de n^* .

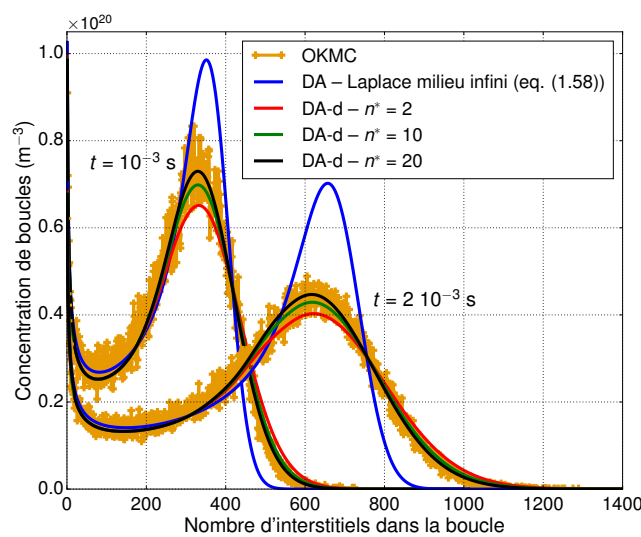


FIGURE 5.16 – Distributions de tailles d’amas obtenues pour des temps de $t = 10^{-3}$ s et $t = 2 \cdot 10^{-3}$ s, en OKMC, en DA sans dispersion des forces de puits (DA) et DA avec dispersion des forces de puits (DA-d) résolue avec la méthode déterministe introduisant la dispersion à partir de la taille n^* .

Concernant le temps de calcul, même si la DA-d implique des simulations plus longues que la DA classique, les temps de calcul restent comparables. En effet, dans l’exemple du cas 1 considéré ici, la simulation DA classique utilisant le modèle de Laplace prend moins d’une minute pour simuler un temps de 10^{-3} s. En DA-d, la simulation prend environ 5 minutes, que ce soit pour la résolution déterministe ou pour la résolution hybride (pour cette dernière, le temps de calcul dépend du nombre de particules stochastiques considérées). La simulation DA-d est donc environ 5 fois plus longue que la simulation DA. Elle reste néanmoins très courte par rapport au temps nécessaire pour obtenir la distribution OKMC, pour laquelle il faut moyenner les résultats de 3000 simulations, durant 4 heures chacune, pour le cas considéré ici.

Dans la suite, on utilise pour les simulations DA-d avec les forces de puits dispersées la méthode de résolution hybride avec $n^* = 20$.

Cas 1 : absorption sur les sphères englobantes - Faibles doses

La section précédente a montré que la DA-d reproduit bien les résultats OKMC aux fortes densités d’amas. On réalise maintenant les simulations DA avec forces de puits dispersées (DA-d) pour le cas 1 dans le but de comparer les distributions de tailles d’amas avec celles issues des simulations OKMC aux plus faibles doses. Les résultats sont présentés sur la figure 5.17.

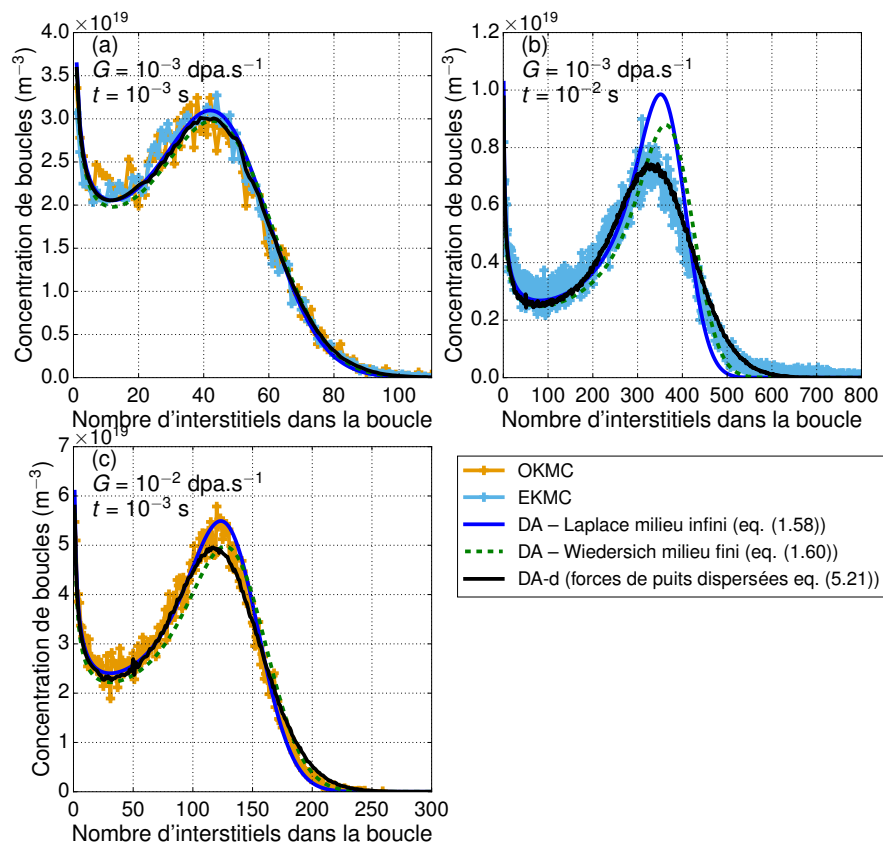


FIGURE 5.17 – Distributions de tailles d’amas obtenues dans le cas 1 (absorption sur les sphères) en OKMC (EKMC) et pour les modèles de DA correspondant, et en DA-d hybride comprenant la dispersion des forces de puits à partir de la taille $n^* = 20$. Distributions obtenues avec (a) $G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$ et $t = 10^{-3}$ s, (b) $G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$ et $t = 10^{-2}$ s et (c) $G = 10^{-2}$ dpa.s $^{-1}$ et $t = 10^{-3}$ s.

La figure 5.17 (a) présente les résultats obtenus pour $G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$ et $t = 10^{-3}$ s. Dans ces conditions, les forces de puits estimées par la formule (5.21) sont plus dispersées que celles obtenues en OKMC. Mais pour ces faibles tailles de boucles, peu

de dispersion est introduite par la méthode DA-d. La distribution est très légèrement plus étalée que les distributions obtenues en DA classique, mais la différence n’est pas significative. En simulant un temps de $t = 10^{-2}$ s, on obtient les distributions illustrées sur la figure 5.17 (b). La distribution DA-d utilisant les forces de puits dispersées est en très bon accord avec celle obtenue en EKMC. On obtient un meilleur accord avec l’EKMC qu’avec les modèles de DA classique, même celle de Wiedersich prenant en compte les effets de taille finie. Dans ce cas, le bon accord entre DA-d et EKMC indique que la méthode utilisant les forces de puits dispersées en DA est valide pour des temps simulés suffisamment longs.

La figure 5.17 (c) présente les résultats obtenus pour $G = 10^{-2}$ dpa.s $^{-1}$ et $t = 10^{-3}$ s. Dans ce cas, la densité de boucles est relativement faible et la formule (5.21) a tendance à surestimer la dispersion des forces de puits. Les tailles de boucles sont suffisantes pour qu’une dispersion trop importante soit introduite par la DA-d, ce qui aboutit à une distribution un peu plus étalée que pour l’OKMC. Dans ce cas précis, l’OKMC semble un peu mieux reproduit par la DA avec le modèle de Laplace, mais la DA-d reste en bon accord avec l’OKMC.

Notre nouveau modèle permet donc globalement une meilleure reproduction des résultats OKMC par la DA.

Cas 2 : absorption sur les tores

La figure 5.18 présente les résultats obtenus en DA classique et DA-d dans le cas 2 où l’absorption se fait sur les tores, sans prise en compte des interactions élastiques.

Pour le taux de création le plus faible $G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$ et un temps de $t = 10^{-3}$ s (fig. 5.18 (a)), la DA-d utilisant les forces de puits dispersées ne donne qu’une distribution faiblement plus étalée que le modèle de Cade en DA classique. L’accord avec l’OKMC est bon pour les deux modèles DA. Ceci peut venir de la faible taille des amas, qui implique que seule une proportion relativement faible des équations incluent des forces de puits dispersées, minimisant l’impact de cette dispersion.

Pour des taux de création plus élevés, de $G = 10^{-2}$ dpa.s $^{-1}$ (fig. 5.18 (b)) et $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$ (fig. 5.18 (c)), l’accord entre le nouveau modèle DA-d et l’OKMC est très satisfaisant, même pour un temps plus long de $t = 2 \cdot 10^{-3}$ s. La distribution de tailles obtenue en DA-d présente un étalement tout à fait comparable à celui de la distribution OKMC. Cependant, on peut noter que pour le temps le plus long, la courbe obtenue en OKMC est moins bien convergée que dans les cas précédents. Les formes des distributions OKMC et DA-d semblent un peu différentes, ce qui pourrait être vérifié en augmentant le nombre de boîtes en OKMC. Même si ce point était vérifié, l’accord entre l’OKMC et la DA-d reste bien meilleur qu’avec la DA classique, car la dispersion des forces de puits permet un étalement de la distribution DA.

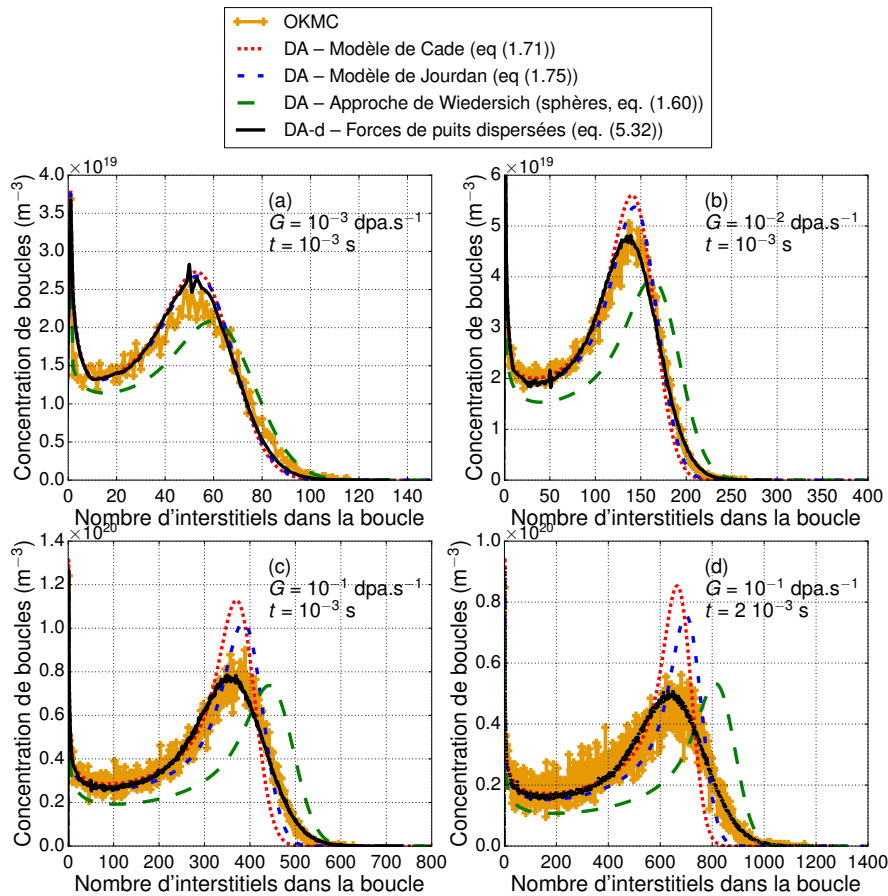


FIGURE 5.18 – Distributions de tailles d’amas obtenues dans le cas 2 (absorption sur les tores) en OKMC et pour les modèles de DA correspondant, et en DA-d hybride comprenant la dispersion des forces de puits à partir de la taille $n^* = 20$. Distributions obtenues avec (a) $G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$ et $t = 10^{-3}$ s, (b) $G = 10^{-2}$ dpa.s $^{-1}$ et $t = 10^{-3}$ s, (c) $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$ et $t = 10^{-3}$ s et (d) $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$ et $t = 2 \cdot 10^{-3}$ s.

Cas 3 : absorption sur les tores avec interactions élastiques

Dans ce dernier cas, les simulations DA et DA-d aboutissent aux distributions présentées sur la figure 5.19. Comme dans le cas précédent, la dispersion des forces de puits n’impacte que peu la distribution DA-d dans le cas où $G = 10^{-3}$ dpa.s $^{-1}$ (fig. 5.19 (a)). La DA-d est dans ce cas très proche de la DA classique, l’accord avec l’OKMC est identique pour ces deux approches. Pour les deux taux de création plus élevés de $G = 10^{-2}$ dpa.s $^{-1}$ (fig. 5.19 (b)) et $G = 10^{-1}$ dpa.s $^{-1}$ (fig. 5.19 (c)), alors que la DA classique prévoit une distribution beaucoup trop piquée, la DA-d donne un bon accord avec l’OKMC. Les distributions DA-d présentent en effet un étalement comparable à celui des distributions OKMC, même si le rayon moyen semble légèrement sous-estimé en DA-d. Les résultats OKMC pourraient masquer un décalage entre les deux du fait de la

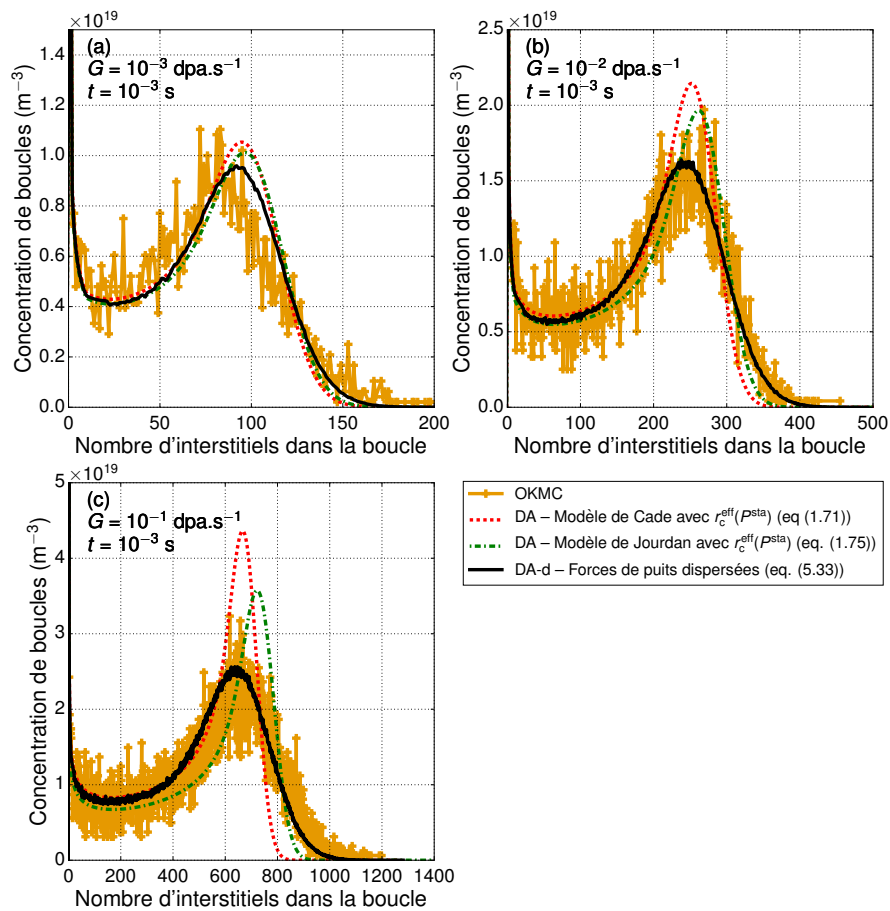


FIGURE 5.19 – Distributions de tailles d’amas obtenues dans le cas 3 (absorption sur les tores avec interactions élastiques) en OKMC et pour les modèles de DA correspondants, et en DA-d hybride comprenant la dispersion des forces de puits à partir de la taille $n^* = 20$. Distributions obtenues avec (a) $G = 10^{-3} \text{ dpa.s}^{-1}$ et $t = 10^{-3} \text{ s}$, (b) $G = 10^{-2} \text{ dpa.s}^{-1}$ et $t = 10^{-3} \text{ s}$ et (c) $G = 10^{-1} \text{ dpa.s}^{-1}$ et $t = 10^{-3} \text{ s}$.

grande variation des concentrations entre 2 tailles consécutives. Pour une comparaison plus fine, il faudrait réaliser un nombre plus important de simulations OKMC, ce qui a été impossible dans cette thèse par manque de temps. L’accord reste cependant clairement meilleur que pour les modèles de DA classique. Un aussi bon accord de la DA-d avec l’OKMC est inattendu, compte tenu des forces de puits observées sur la figure 5.13, qui montrent que la valeur moyenne et la dispersion sont sous-estimées par la formule (5.33), pour le taux de création le plus élevé.

Ces résultats semblent confirmer l’importance de la prise en compte en DA des effets de voisinage, c’est-à-dire de la dispersion des forces de puits. Il faut cependant garder en tête que l’accord observé ici pourrait être dégradé pour des temps plus longs ou des taux de création plus faibles. De plus, on rappelle que le cas présent concerne les

interstitiels dans l’aluminium, qui ne sont que peu anisotropes et ne présentent que peu de différence entre le point stable et le point col. Le modèle DA-d utilisé ici, qui utilise la même approche que le modèle de Jourdan pour la prise en compte des interactions élastiques, serait par exemple moins valide pour les lacunes pour lesquelles ces hypothèses ne sont pas vérifiées. Les résultats obtenus ici permettent néanmoins de penser que, même dans ces cas, la DA-d reproduirait mieux l’étalement de la distribution OKMC et donc fournirait un meilleur accord que la DA avec l’OKMC.

5.5 Résumé et conclusion

Dans ce chapitre, l’objectif était d’identifier les conséquences de l’absence des effets de voisinage dans la DA, et de développer une méthode permettant de les prendre en compte.

Sur les trois modèles régulièrement considérés en DA, nous avons vu que la prise en compte du volume fini seule ne suffit pas car les distributions sont moins étalées que celles obtenues en OKMC. Nous avons identifié que c’est la dispersion des forces de puits qui doit être prise en compte pour espérer reproduire les distributions de tailles d’amas obtenues en OKMC.

Une expression de force de puits permettant de reproduire la dispersion observée en OKMC a ensuite été développée. Le développement a été effectué en considérant le cas 1 (absorption sur les sphères sans interactions élastiques). L’expression finalement retenue est donnée par l’équation (5.21) : elle est composée de la force de puits en milieu infini, multipliée par un terme correctif visant à prendre en compte les effets de volume fini et les effets de voisinage. Ce terme correctif rend compte de la variation de concentration locale due à la présence de puits autour du puits considéré. Il s’écrit comme un volume effectif normalisé, qui est calculé à partir du volume de Voronoï par une loi de puissance (eq. (5.30)). Ceci peut être vu comme une expression de la moyenne des volumes environnant la boucle. Nous avons vu que les volumes de Voronoï dans les microstructures suivent une distribution de Poisson-Voronoï, qui peut être introduite dans la DA.

Grâce à cette expression de force de puits, et aux adaptations qui en sont faites pour le cas des tores sans et avec interactions, on peut reproduire correctement les dispersions des forces de puits pour les cas des taux de création les plus élevés, mais on surestime un peu les dispersions observées pour les plus faibles taux de créations. Ceci est dû au fait que le terme correctif est indépendant de la densité de boucles, la même dispersion est donc introduite aux fortes et faibles densités. Dans le cas particulier des tores avec interactions élastiques, les dispersions sont bien estimées aux faibles densités mais sous-estimées pour le taux le plus grand. Ceci est dû au fait que dans ce cas, l’expression analytique considérant la boucle dans un milieu infini sous-estime les forces de puits, et que les interactions élastiques amplifient la dispersion des forces de puits.

Enfin, une méthode a été élaborée pour intégrer cette dispersion de forces de puits dans le formalisme de la DA. Ceci est réalisé au travers du coefficient d’absorption, qui dépend du volume effectif, c’est-à-dire du volume de Voronoï normalisé. Les concentrations dépendent elles aussi de ce volume de Voronoï. Les volumes de Voronoï associés aux

amas sont choisis en échantillonnant la distribution de Poisson-Voronoi. La résolution de ces équations (5.46) à (5.49) peut être faite de façon déterministe ou stochastique dans un algorithme hybride.

Les résultats obtenus par ce modèle de DA avec dispersion des forces de puits (DA-d) sont satisfaisants. L'étalement des distributions de tailles d'amas observées en OKMC (et EKMC), qui est sous-estimé en DA classique, est bien reproduit par ce nouveau modèle de DA-d. Seules les distributions aux plus faibles densités, c'est-à-dire pour les faibles taux de création et temps courts, restent en léger désaccord avec les références OKMC. Une partie de ce désaccord peut être attribué au terme correctif qui introduit trop de dispersion aux faibles densités. Les distributions de tailles d'amas sont également bien reproduites pour des temps plus longs, ce qui tend à confirmer la généralité de la méthode proposée ici. Sa validité est aussi montrée pour des faibles taux de création si l'on simule des temps assez longs. Ce bon accord est même obtenu dans le cas avec interactions élastiques, pour lequel la dispersion des forces de puits était pourtant assez mal reproduite. Ce dernier point est à considérer avec prudence, car il ne serait a priori pas aussi généralisable que dans les cas sans interactions. Il resterait par exemple à tester sa validité dans le cas des lacunes, pour lesquelles les hypothèses du modèle analytique concernant les propriétés des défauts ne sont pas vérifiées. Les résultats obtenus avec ce modèle de DA-d montrent que la prise en compte de la dispersion des forces de puits permet d'obtenir un étalement des distributions en meilleur accord avec l'OKMC.

Conclusion et perspectives

Cette thèse porte sur le calcul des forces de puits, qui sont les paramètres utilisés en DA pour représenter la capacité des puits à absorber les défauts ponctuels. C'est donc au travers de ces paramètres que sont inclus les effets des interactions élastiques et des propriétés des défauts ponctuels dans la DA. Les résultats de la DA sont très sensibles aux valeurs des forces de puits. Or, ces dernières sont en général déterminées avec des hypothèses fortes simplifiant les propriétés des défauts ou les interactions élastiques. De plus l'absence de prise en compte des corrélations spatiales par la DA rend impossible la simulation de certains phénomènes et limite la précision des résultats.

L'objectif général de ce travail est d'identifier la dépendance des forces de puits vis-à-vis des interactions élastiques, des propriétés des défauts et les corrélations spatiales, le but final étant d'améliorer le formalisme de la DA pour en améliorer la précision.

Synthèse des résultats

Le premier objectif de la thèse était d'évaluer l'influence des interactions élastiques et les contributions des différentes propriétés des défauts ponctuels sur les valeurs de forces de puits. Notre étude a donc débuté par la détermination des valeurs des forces de puits, en prenant en compte des interactions élastiques et une description précise des défauts ponctuels, grâce à des simulations OKMC. Les principaux objets présents dans les microstructures irradiées, que sont la dislocation droite, la cavité sphérique et la boucle de dislocation ont été étudiés. Les défauts ponctuels ont été représentés par leurs dipôles élastiques, déterminés en DFT. Cette étude a permis de montrer que les interactions élastiques ont une influence importante sur les valeurs de forces de puits. En effet, elles sont responsables des valeurs de biais positives obtenues pour tous les types de puits. En particulier, elles confèrent à la cavité un biais positif. Les interactions élastiques sont donc déterminantes dans l'absorption préférentielle des interstitiels par les puits. Les résultats ont également montré que l'anisotropie au point col des défauts ponctuels, et en particulier de la lacune, est un paramètre important dans les valeurs de forces de puits. Cette anisotropie modifie les valeurs de ces paramètres. Elle est par exemple responsable de la diminution de la force de puits de la cavité pour les lacunes,

et donc du biais positif de la cavité, mais aussi de la différence des valeurs de biais entre les boucles interstitielles et lacunaires. Notre étude a également montré que l’anisotropie au point col impacte les trajectoires de migration de défauts vers les puits. Par exemple, elle est responsable de l’existence d’une composante de flux dans la direction de la ligne de dislocation. Dans le cas de la cavité sphérique, l’anisotropie au point col des défauts mène à une absorption anisotrope de lacunes à la surface de la cavité. L’analyse des chemins de migration de la lacune vers les boucles de dislocations a montré que cette anisotropie facilite sa migration vers la boucle interstitielle et donc diminue le biais de cette dernière. Nous avons donc identifié le rôle capital des interactions élastiques et montré que l’anisotropie au point col des défauts, et plus particulièrement de la lacune, est également un paramètre important dans la détermination des forces de puits.

Notre objectif a ensuite été d’identifier les effets de voisinage, survenant en présence de plusieurs puits, influençant les valeurs de forces de puits. Pour cela, nous avons réalisé des simulations OKMC pour former des microstructures de boucles par agglomération d’interstitiels, puis pour calculer les forces de puits des différentes boucles dans ces microstructures. Ce travail a permis de montrer les effets des différents environnements sur les valeurs de forces de puits, et également de comparer les forces de puits obtenues en OKMC à celles utilisées dans les principaux modèles d’absorption utilisés en DA. Notre étude a montré que les effets de voisinage se traduisent, pour l’ensemble des puits de même taille de la microstructure, par une dispersion des forces de puits. L’analyse des résultats obtenus a permis d’identifier que cette dispersion est due aux variations locales de la densité de boucles dans la microstructure, qui induit donc une variation de la concentration locale de défauts ponctuels, impactant l’absorption de ces derniers par les puits, et donc les forces de puits. En première approximation, les forces de puits sont donc corrélées aux volumes de Voronoï associés aux boucles. Nos résultats ont également montré que la dispersion augmente avec la densité de boucles dans les microstructures. Enfin, nous avons montré que les interactions élastiques sont responsables d’une augmentation des valeurs de forces de puits dans les microstructures, mais surtout d’une augmentation de leur dispersion. La comparaison des résultats OKMC aux modèles analytiques de force de puits utilisés en DA a permis d’identifier ceux qui donnent une bonne représentation de la variation globale des forces de puits dans les microstructures avec le rayon de boucle.

La dernière étape de ce travail a été de quantifier les imprécisions de la DA dues à l’absence de prise en compte des effets de voisinage. Pour cela, les distributions de tailles d’amas issues des simulations OKMC ont été comparées aux distributions obtenues par des simulations DA équivalentes. Les résultats ont révélé que les distributions obtenues en DA sont moins étalées que les distributions OKMC, en particulier aux fortes doses. L’analyse a montré que cette différence existe même pour les simulations DA utilisant les modèles de forces de puits prenant en compte les effets de volumes finis et représentant bien les valeurs moyennes de forces de puits dans les microstructures OKMC. Ces résultats montrent que la dispersion des forces de puits est responsable d’un étalement des distributions de tailles d’amas. Nous avons donc construit une méthode pour intégrer les effets de voisinage, c’est-à-dire la dispersion des forces de puits, dans la DA. Pour

cela, nous avons développé une expression de force de puits permettant de reproduire les valeurs obtenues en OKMC. Cette expression a été développée dans le cas où l’absorption se fait sur les sphères englobant les boucles et a été adaptée aux autres cas traités (tores sans et avec interactions). Cette expression est constituée de la force de puits de la boucle en milieu infini multipliée par un terme correctif visant à prendre en compte les effets de volumes finis et de voisinage. Ce dernier est un volume effectif normalisé, représentant le volume de Voronoï moyen dans le voisinage de chaque boucle. Il dépend du volume de Voronoï normalisé de la boucle considérée. Nos résultats ont permis de montrer que ces volumes peuvent être représentés par la distribution de Poisson-Voronoï. L’expression ainsi proposée introduit la même dispersion quelle que soit la densité de boucles, ce qui est une approximation, mais permet d’obtenir des résultats convenables quel que soit le cas traité. Avec cette expression, les dispersions de forces de puits sont bien reproduites aux fortes densités pour les cas sans interactions élastiques, et aux faibles densités pour le cas avec interactions élastiques. Nous avons ensuite développé un nouveau système d’équations permettant d’intégrer cette dispersion dans le formalisme de la DA. Il utilise un échantillonnage de la distribution de Poisson-Voronoï et peut être résolu par une méthode déterministe ou stochastique. Les résultats obtenus par ce nouveau modèle de DA reproduisent très bien les distributions obtenues en OKMC, y compris pour le cas avec interactions élastiques, sauf pour les plus faibles densités. La méthode générale proposée ici a donc permis de bien reproduire les effets de voisinage existant dans les microstructures et d’améliorer la précision des simulations DA.

Perspectives

Ce travail présente plusieurs perspectives.

Tout d’abord il serait intéressant d’effectuer des calculs de forces de puits en prenant en compte les polarisabilités des défauts ponctuels. Ceci nous permettrait de quantifier l’influence de ces éléments sur l’absorption des défauts par les puits. Ces polarisabilités pourraient en particulier influencer la migration des défauts ponctuels à proximité des puits. Cette étude permettrait de vérifier le niveau de précision nécessaire au calcul des forces de puits et de valider notre hypothèse selon laquelle les dipôles sont suffisants pour représenter les défauts ponctuels.

Dans le but de connaître le niveau de raffinement de description des défauts nécessaire à la simulation des microstructures, il serait également intéressant de comparer l’influence des propriétés des défauts à celle des effets de voisinage. Pour cela, nous pourrions envisager de simuler la formation des microstructures avec différentes hypothèses sur les dipôles élastiques (isotropes au point col, avec polarisabilités...). La comparaison des forces de puits dans de telles microstructures à celles obtenues dans le chapitre 5, où l’on a uniquement considéré l’absence d’interactions (dipôles nuls) et les dipôles élastiques complets, permettrait de quantifier l’influence des différentes propriétés des défauts et de la comparer à celle des effets de voisinage.

Nous pourrions également améliorer le modèle de DA-d, comprenant la dispersion des forces de puits, proposé au terme du chapitre 5. Le point le plus important serait

de développer une expression prenant en compte la variation de la dispersion avec la densité de boucles. Nous pourrions par exemple proposer un volume effectif normalisé dépendant de la densité de boucles et non plus seulement des volumes de Voronoï. Une autre possibilité serait de raffiner le modèle proposé par A. D. Brailsford *et al.* [39]. De plus, dans notre étude, l’expression de force de puits ne permet pas de reproduire correctement la dispersion des forces de puits dans le cas où les interactions élastiques sont prises en compte. Si l’amplitude de la dispersion est sous-estimée, les forces de puits le sont également de façon générale. Ceci vient de l’expression utilisée dans ce cas, le modèle de Jourdan, qui s’appuie sur une approche de type Laplace. Un travail supplémentaire serait nécessaire pour améliorer notre modèle au cas avec interactions élastiques. Enfin, le modèle DA-d proposé ici n’a été appliqué que pour les interstitiels. Il serait intéressant de simuler la formation de microstructures constituées de lacunes pour identifier les imprécisions éventuelles des modèles de la DA correspondants. Si besoin, un travail supplémentaire serait alors nécessaire pour adapter la DA au cas des lacunes.

D’un point de vue plus large, le travail présenté dans ce manuscrit pourrait s’étendre à l’étude des phénomènes de fluage. Il serait en effet possible d’appliquer une contrainte extérieure à une boîte de simulation OKMC contenant une dislocation droite, et d’étudier la variation de la force de puits en fonction de l’amplitude de la contrainte et de son orientation par rapport à la ligne de dislocation [56]. Il serait alors d’autant plus intéressant de prendre en compte les polarisabilités des défauts ponctuels, qui modifieraient les valeurs des dipôles élastiques et donc la migration des défauts vers les puits. Cette étude permettrait de comparer les phénomènes de SIPA-I et de SIPA-AD. Il serait aussi possible d’étudier le phénomène de SIPA dû à la variation du biais des boucles de dislocations en fonction de leur orientation vis-à-vis de la contrainte [18], dans des configurations sur réseau et dans des microstructures.

Annexe A –

Évaluation de l’erreur sur les forces de puits par la méthode des moyennes par blocs

Dans cette annexe, on présente la méthode utilisée pour calculer l’erreur sur les valeurs de force de puits déterminées par calculs OKMC, au chapitre 3.

La force de puits k^2 est déterminée à partir du nombre moyen de défauts ponctuels \bar{N} présents dans la boîte en régime permanent. Cette valeur est calculée comme la moyenne des M mesures, qui sont effectuées tous les 10^4 pas de temps durant le régime permanent. Il faut donc évaluer l’erreur sur la moyenne \bar{N} de ces M observations $\{N_i\}_{i \in \{1, \dots, M\}}$. Classiquement, l’erreur sur la moyenne est évaluée en utilisant l’erreur type de la moyenne $\sigma_{\text{sem}, \bar{N}}$ (« sem » pour *standard error of the mean*), donnée par :

$$\sigma_{\text{sem}, \bar{N}} = \frac{1}{\sqrt{M}} \sqrt{\frac{1}{M-1} \sum_{i=1}^M (N_i - \bar{N})^2}. \quad (\text{A.1})$$

Cette méthode ne s’applique que si les M mesures sont indépendantes, c’est-à-dire pour des valeurs N_i non corrélées. Elle ne peut donc pas s’appliquer ici car, pour des boîtes de grande taille, les mesures sont corrélées. Cela signifie que certains des défauts présents lors de la mesure de N_i sont encore présents lors de la mesure de N_{i+1} : N_{i+1} dépend donc de N_i . Ceci est illustré sur les exemples donnés fig. A.1 (a) dans le cas de lacunes migrant vers une dislocation, les corrélations étant assez faibles, et fig. A.2 (a) pour le cas de lacunes migrant vers une cavité avec des valeurs plus fortement corrélées.

On utilise donc la méthode dite des « moyennes par blocs » [150], qui permet de tenir compte de ces corrélations. Cette méthode consiste à découper l’ensemble $\{N_i\}_{i \in \{1, \dots, M\}}$ contenant M mesures en sous-ensembles consécutifs, appelés « blocs », contenant un nombre fixé p de valeurs. On obtient ainsi Q blocs, avec $M = Q * p^1$.

$$\{N_i\}_{i \in \{1, \dots, M\}} \longrightarrow \{N_i\}_{i \in \{1, \dots, p\}}, \{N_i\}_{i \in \{p+1, \dots, 2p\}}, \dots, \{N_i\}_{i \in \{(M-p)+1, \dots, M\}}$$

1. Pour des valeurs de p non diviseurs de M , le dernier intervalle contenant moins de p points est exclu du calcul. On considère alors un nombre M' de mesures inférieur à M . Pour $p \ll M$, ce qui est généralement le cas ici, la précision des résultats n’est pas impactée par ce choix.

ANNEXE A – ÉVALUATION DE L'ERREUR SUR LES FORCES DE PUIITS PAR LA MÉTHODE DES MOYENNES PAR BLOCS

La valeur moyenne \bar{N}_q est calculée pour chaque intervalle $q \in \{1, \dots, Q\}$. On estime alors l'erreur sur \bar{N} pour cette taille de bloc p par :

$$\sigma_p = \sqrt{\frac{1}{Q(Q-1)} \sum_{q=1}^Q (\bar{N}_q - \bar{N})^2}. \quad (\text{A.2})$$

Cette opération est répétée pour différentes tailles de bloc p (et donc différents nombres de blocs Q). Il s'agit ensuite d'étudier la variation de σ_p en fonction de la taille du bloc p . Dans le cas limite $p = 1$ ($Q = M$), on retrouve l'erreur type (eq. (A.1)). Plus les blocs sont gros, moins on observe de corrélation entre les valeurs moyennes calculées sur les blocs. Pour des valeurs de p suffisantes, on obtient un palier qui correspond à l'erreur $\sigma_{\bar{N}}$ sur \bar{N} . Par contre, si p est trop grand, c'est-à-dire si les blocs sont trop gros, on peut perdre en précision, car le nombre d'échantillons (de blocs) diminue.

Deux exemples d'évaluation de $\sigma_{\bar{N}}$ sont présentés sur les figures A.1 (b) et A.2 (b). Dans le premier cas, la corrélation des valeurs est assez faible. Le palier est donc vite atteint et l'estimation de l'erreur se dégrade rapidement quand p augmente. On estime dans ce cas que $\sigma_{\bar{N}} \simeq 0.4$. Dans le second cas, les corrélations sont plus importantes. Le palier est atteint pour des valeurs plus grandes de p , et ce n'est que pour des valeurs très grandes que l'estimation perd en précision. Dans ce cas, on estime $\sigma_{\bar{N}} \simeq 0.7$.

A partir de l'erreur sur le nombre moyen de défauts ponctuels $\sigma_{\bar{N}}$, on calcule l'erreur sur la force de puits σ_{k^2} et sur le biais σ_B . Les formules obtenues et utilisées dans le chapitre 3 sont, pour la force de puits :

$$\sigma_{k^2} = k^2 \frac{\sigma_{\bar{N}}}{\bar{N}}, \quad (\text{A.3})$$

et pour le biais :

$$\sigma_B = \frac{G_v D_i}{G_i D_v} \frac{1}{\bar{N}_v^2} \sqrt{\bar{N}_v^2 \sigma_{\bar{N}_i}^2 + \bar{N}_i^2 \sigma_{\bar{N}_v}^2 + \sigma_{\bar{N}_i}^2 \sigma_{\bar{N}_v}^2} \quad (\text{A.4})$$

ANNEXE A – ÉVALUATION DE L'ERREUR SUR LES FORCES DE PUICTS PAR LA MÉTHODE DES MOYENNES PAR BLOCS

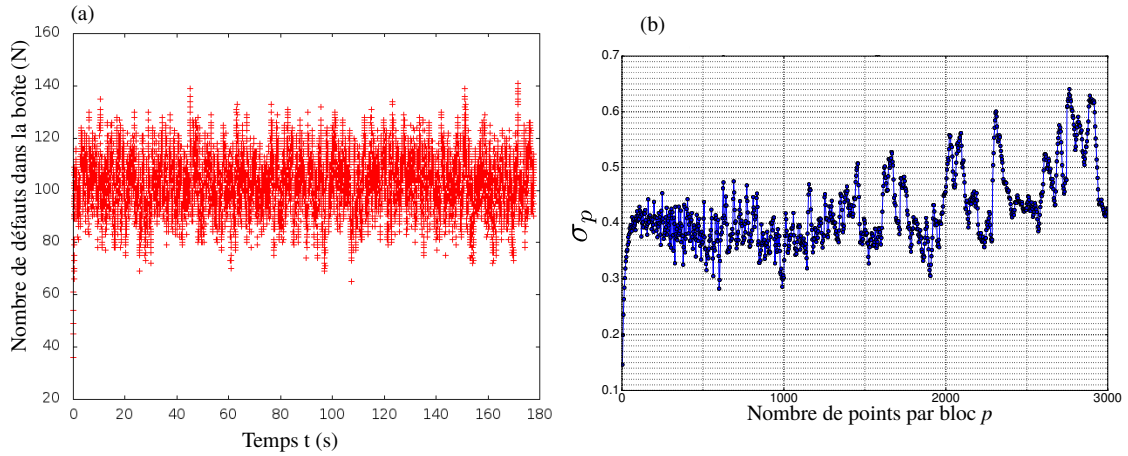


FIGURE A.1 – Évaluation de l'erreur sur \bar{N} par la méthode des moyennes par blocs. Exemple des lacunes (défauts réels, cas 2 du chapitre 3) migrant vers une dislocation droite. (a) Évolution du nombre de défauts dans la boîte en fonction du temps, avec $\bar{N} = 103.32$. Les valeurs sont relativement peu corrélées. (b) Évaluation de l'erreur sur \bar{N} σ_p en fonction de la taille du bloc p , la valeur du palier est $\sigma_{\bar{N}} \simeq 0.4$. La densité de dislocations est de 10^{16} m^{-2} ($l_x = 10 \text{ nm}$).

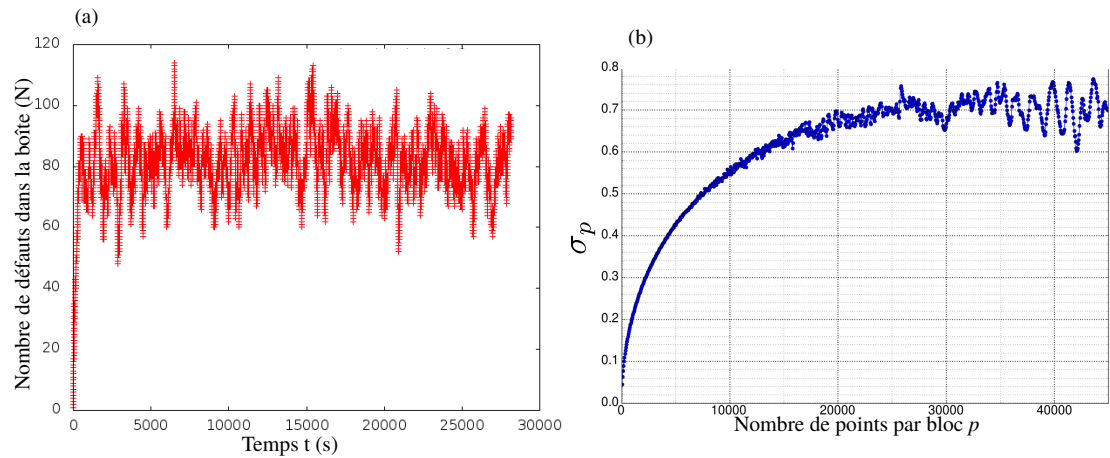


FIGURE A.2 – Évaluation de l'erreur sur \bar{N} par la méthode des moyennes par blocs. Exemple des lacunes (inclusions sphériques, cas 1 du chapitre 3) migrant vers une cavité sphérique. (a) Évolution du nombre de défauts dans la boîte en fonction du temps, avec $\bar{N} = 83.13$. Les valeurs sont fortement corrélées. (b) Évaluation de l'erreur sur \bar{N} σ_p en fonction de la taille du bloc p , la valeur du palier est $\sigma_{\bar{N}} \simeq 0.7$. La densité de cavités est de $5.6 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ ($l = 56.3 \text{ nm}$).

Annexe B –

Comparaison des résultats OKMC et des calculs analytiques pour la dislocation droite (cas 0 – défauts sans interactions)

Cette annexe est consacrée à l'étude de la différence observée entre les valeurs issues des calculs OKMC et la solution de Wiedersich, dans le cas de la dislocation droite sans prise en compte des interactions élastiques (cas 0). Pour comprendre cette différence, on réalise des calculs éléments finis (EF) pour résoudre l'équation de diffusion, sur les deux géométries illustrées sur la figure B.1. La méthode utilisée est décrite en détail dans la référence [36]. Un terme source est imposé, correspondant aux simulations OKMC et la force de puits est déduite de la concentration moyenne de défauts ponctuels, en utilisant l'équation (3.7). On reproduit donc l'approche de Wiedersich.

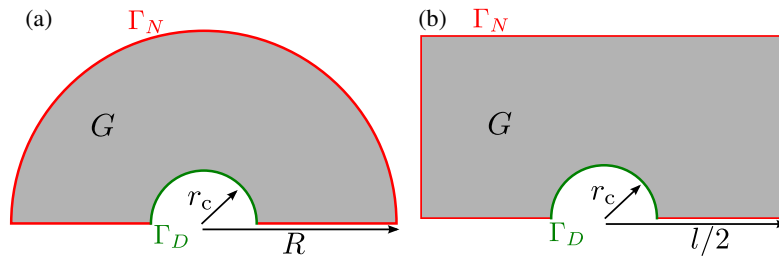


FIGURE B.1 – Domaine de simulation (en gris) pour les calculs EF. (a) Géométrie circulaire. (b) Géométrie cubique. Le taux de création G est imposé dans le volume. La concentration est nulle sur Γ_D et le flux normal à la surface Γ_N est nul.

On compare d'abord les résultats EF obtenus sur la géométrie circulaire fig. B.1 (a) à la solution analytique (eq. (1.51)). Pour cela, on utilise la même valeur r_c pour les deux approches, et la valeur de R est modifiée pour étudier différentes densités de dislocations, par la relation $\rho = \frac{1}{\pi R^2}$. Les résultats pour différentes valeurs de r_c sont illustrés sur la figure B.2. On obtient un accord parfait entre la solution de Wiedersich et les calculs EF sur la géométrie circulaire, ce qui valide l'emploi de calculs EF pour expliquer les différences observées entre la solution analytique et l'OKMC.

ANNEXE B – COMPARAISON DES RÉSULTATS OKMC ET DES CALCULS ANALYTIQUES POUR LA DISLOCATION DROITE (CAS 0 – DÉFAUTS SANS INTERACTIONS)

On compare ensuite les résultats des calculs EF sur la géométrie cubique (fig. B.1 (b)), plus proche de celle utilisée en OKMC, à la solution de Wiedersich. La correspondance entre les valeurs de R et la taille d est donnée en conservant la densité de dislocations :

$$\rho = \frac{1}{\bar{l}^2} = \frac{1}{\pi R^2}, \quad (\text{B.1})$$

$$\Rightarrow l = \sqrt{\pi}R. \quad (\text{B.2})$$

On constate sur la figure B.3 qu'en conservant de cette façon la densité de dislocations, les calculs EF sur la géométrie cubique donnent un excellent accord avec la solution analytique de Wiedersich. Il n'y a donc aucune différence entre les calculs EF sur la géométrie circulaire et sur la géométrie cubique : la géométrie du domaine de calcul n'a donc aucun impact sur les valeurs de force de puits.

La différence observée entre les calculs OKMC et la solution de Wiedersich (eq. (1.51)) pour la dislocation droite, dans le cas sans interactions élastiques (cas 0) peut donc être due à la différence de conditions aux limites en $r = r_c$. Les sauts discrets réalisés en OKMC mènent à une valeur effective de $\tilde{r}_c \leq r_c$ pour laquelle la concentration de défauts est nulle. Un meilleur accord est obtenu en utilisant la correction proposée par H. Rouchette [159] de $\tilde{r}_c = r_c - \frac{a_0}{4}$, où a_0 est le paramètre de maille, comme le montrent les résultats obtenus avec plusieurs valeurs de r_c , présentés sur la figure B.4.

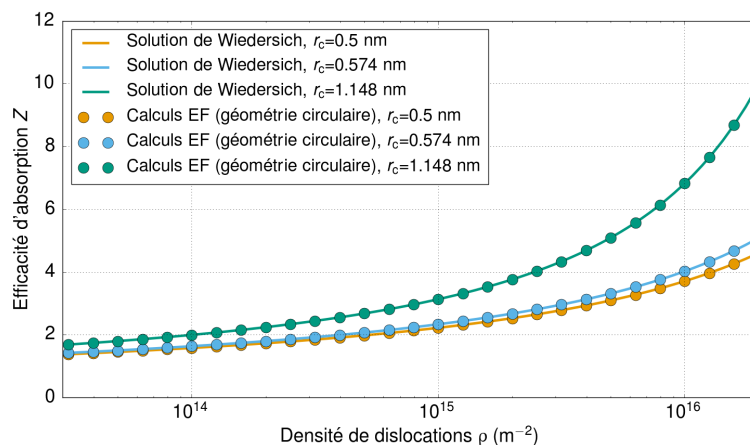


FIGURE B.2 – Comparaison des efficacités d'absorption $Z = k^2/\rho$ obtenues par la solution analytique de Wiedersich pour la dislocation droite (eq. (1.51)) et des résultats des calculs EF sur la géométrie circulaire (fig. B.1 (a)), pour différentes valeurs de r_c et différentes densités $\rho = 1/(\pi R^2)$.

ANNEXE B – COMPARAISON DES RÉSULTATS OKMC ET DES CALCULS ANALYTIQUES POUR LA DISLOCATION DROITE (CAS 0 – DÉFAUTS SANS INTERACTIONS)

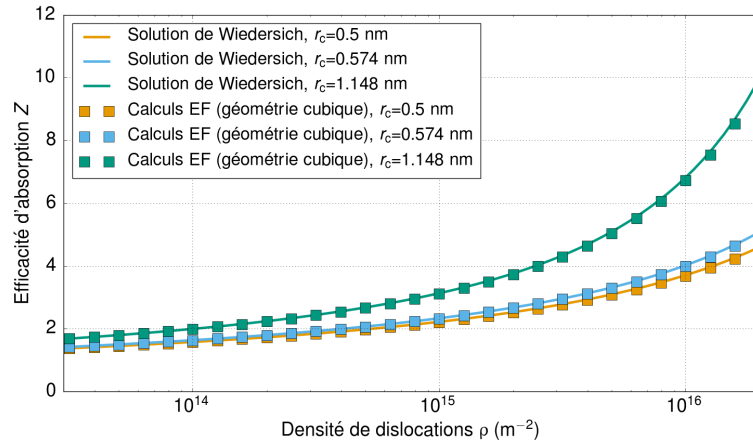


FIGURE B.3 – Comparaison des efficacités d’absorption $Z = k^2/\rho$ obtenues par la solution analytique de Wiedersich pour la dislocation droite (eq. (1.51)) et des résultats des calculs EF sur la géométrie cubique (fig. B.1 (b)), pour différentes valeurs de r_c et différentes densités $\rho = 1/(\pi R^2) = 1/l^2$.

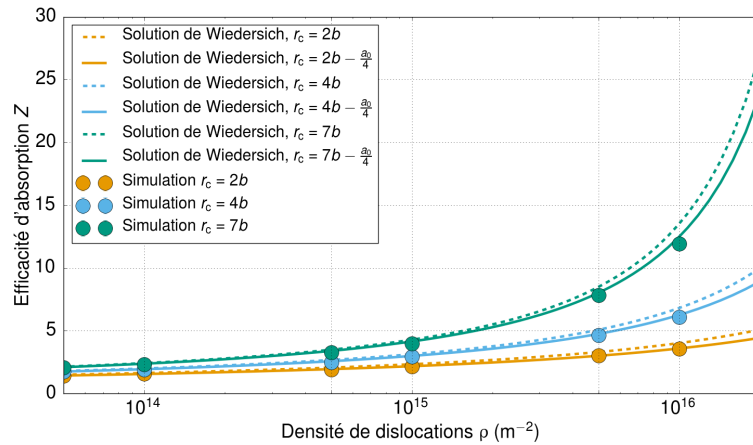


FIGURE B.4 – Comparaison des efficacités d’absorption $Z = k^2/\rho$, obtenues en OKMC pour différentes valeurs de r_c , à la solution analytique de Wiedersich (eq. (1.51)) utilisant r_c et $\tilde{r}_c = r_c - a_0/4$. Ces simulations sont réalisées en utilisant la valeur $a_0 = 0.40496$ nm [145] et $b = 0.208$ nm.

Annexe C –

Comparaison des résultats OKMC et des calculs analytiques pour la dislocation droite (cas 1 – inclusions sphériques)

Dans cette annexe, on compare les résultats des calculs OKMC réalisés au chapitre 3 sur le cas de la dislocation droite, aux calculs analytiques de H. Rauh et D. Simon [41]. Ce calcul analytique correspond à une dislocation seule, avec une concentration imposée à une distance R de la position de la dislocation. L'effet du champ de déformation d'autres dislocations n'est donc pas pris en compte.

Pour expliquer les différences observées sur la figure 3.3, l'équation de diffusion a également été résolue sur deux cas différents (fig. C.1), en utilisant la méthode des éléments finis (EF). Cette méthode est décrite en détail dans la référence [36]. Dans le premier cas (fig. C.1-(a)), la concentration est imposée sur la surface extérieure du domaine de simulation, ce qui correspond au traitement analytique dans [41] (approche de Laplace, avec une géométrie différente). La force de puits est déduite du flux vers la dislocation. Dans le second cas (fig. C.1-(b)), un terme source est imposé, correspondant aux simulations OKMC. La force de puits est déduite de la concentration moyenne de défauts ponctuels, en utilisant l'éq. (3.7) (approche de Wiedersich). Dans les deux cas, les effets des champs de déformation des dislocations avoisinantes sont pris en compte.

Les résultats sont comparés sur la figure C.2. Un très bon accord est obtenu entre les calculs EF avec un taux de création imposé et les simulations OKMC. À l'inverse, les simulations EF avec une concentration imposée se rapprochent de la solution analytique pour les faibles densités de dislocations, tandis qu'elles diffèrent quand la densité augmente. Ceci montre que la différence entre la solution analytique et les résultats OKMC vient en plus grande partie de la différence de conditions aux limites, mais aux densités de dislocations plus élevées, les effets du champ élastique des dislocations voisines contribuent également à cette différence.

ANNEXE C – COMPARAISON DES RÉSULTATS OKMC ET DES CALCULS ANALYTIQUES POUR LA DISLOCATION DROITE (CAS 1 – INCLUSIONS SPHÉRIQUES)

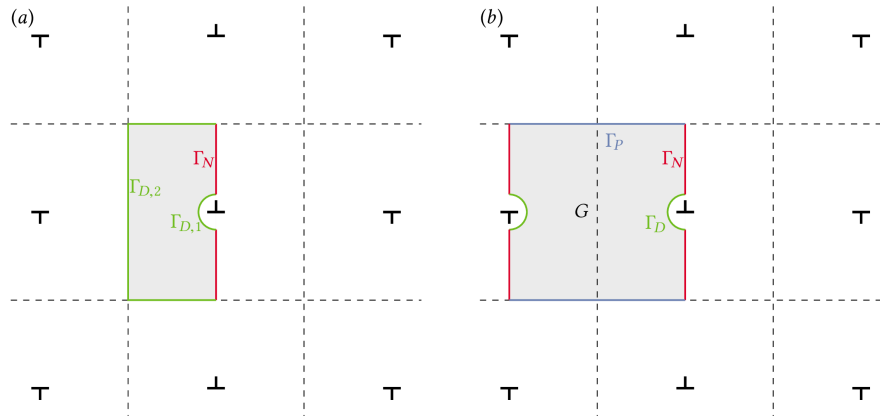


FIGURE C.1 – Domaine de simulation pour les calculs EF (en gris). (a) La concentration est imposée sur le bord extérieur ($\Gamma_{D,2}$). La concentration est nulle sur $\Gamma_{D,1}$ et le flux normal à la surface Γ_N est nul. (b) Le taux de création G est imposé dans le volume. La concentration est nulle sur Γ_D , le flux normal à la surface Γ_N est nul et des conditions aux limites périodiques sont utilisées sur Γ_P .

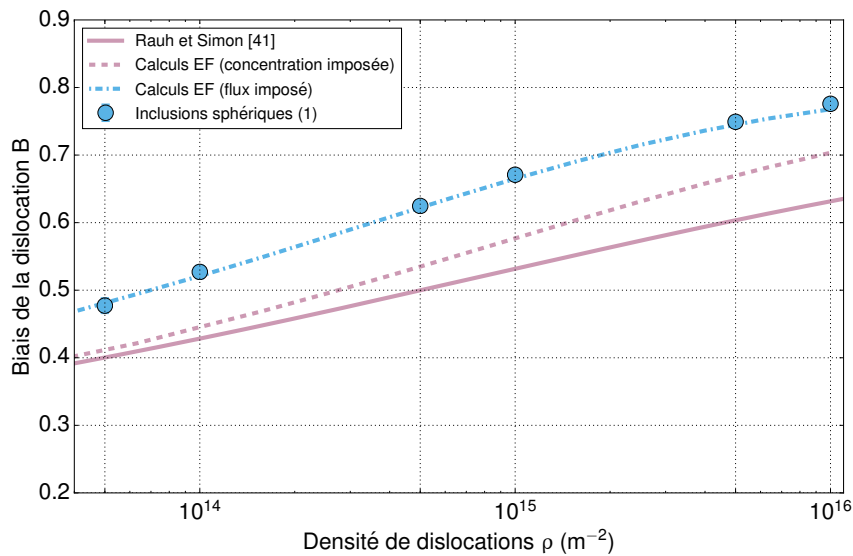


FIGURE C.2 – Biais de la dislocation droite dans le cas où les défauts sont considérés comme des inclusions sphériques (cas 1), obtenus avec différentes approches : calcul analytique de H. Rauh et D. Simon [41], calculs EF avec deux conditions aux limites différentes et calculs OKMC.

Annexe D –

Évaluation de l’erreur sur les forces de puits dans les microstructures

Dans cette annexe, on établit la formule utilisée pour calculer l’erreur sur les valeurs de force de puits déterminées dans les microstructures. Il est important d’évaluer correctement cette erreur, car l’étude vise à comparer différentes forces de puits pour identifier les effets de voisinage. On doit donc s’assurer que les différences observées ne sont pas dues à des imprécisions statistiques.

On cherche ici à relier l’erreur sur une valeur de force de puits donnée au nombre total de défauts simulés durant la simulation $N_{\text{tot}} = t_{\text{sim}}G$.

Pour cela, commençons par établir l’expression de cette erreur. La force de puits pour une boucle donnée s’écrit ici

$$k^2 = \frac{N^{\text{abs}}}{Dt_{\text{sim}}\bar{N}}, \quad (\text{D.1})$$

où D est le coefficient de diffusion des interstitiels, N^{abs} est le nombre de défauts absorbés par la boucle durant t_{sim} et \bar{N} est le nombre moyen de défauts ponctuels demeurant dans la boîte en régime permanent.

Ainsi, on a

$$\frac{\Delta k^2}{k^2} = \frac{\Delta N^{\text{abs}}}{N^{\text{abs}}} + \frac{\Delta \bar{N}}{\bar{N}}. \quad (\text{D.2})$$

La seconde partie du membre de droite est une erreur sur le nombre moyen de défauts ponctuels en régime permanent. En considérant l’étude réalisée au chapitre 3, on peut supposer que des temps de simulation suffisamment longs permettent de rendre ce terme négligeable devant $\frac{\Delta N^{\text{abs}}}{N^{\text{abs}}}$, permettant ainsi de ne pas tenir compte de ce terme dans l’évaluation de l’erreur. On conserve donc l’expression $\frac{\Delta k^2}{k^2} = \frac{\Delta N^{\text{abs}}}{N^{\text{abs}}}$.

Pour la boucle que nous considérons, on peut écrire $N^{\text{abs}} = \sum_{i=1}^{N_{\text{tot}}} n_i$ où $(n_1, \dots, n_{N_{\text{tot}}})$ sont des entiers, n_j valant 1 si le défaut simulé j est absorbé par la boucle, et 0 sinon.

Ceci revient à dire que $(n_1, \dots, n_{N_{\text{tot}}})$ est un échantillon aléatoire, suivant la même loi que la variable aléatoire parente n . Il s’agit d’une variable aléatoire discrète, pouvant prendre les valeurs 1 avec une probabilité de $p = \phi$ (en cas d’absorption) ou 0 avec une probabilité de $p = 1 - \phi$ (pas d’absorption).

Pour cette variable aléatoire, l'espérance est de

$$E(n) = 0 \cdot (1 - \phi) + 1 \cdot \phi = \phi \quad (\text{D.3})$$

et la variance peut donc être calculée comme suit :

$$\begin{aligned} V(n) &= (1 - \phi) \cdot (0 - \phi)^2 + \phi \cdot (1 - \phi)^2 \\ V(n) &= \phi(1 - \phi). \end{aligned}$$

L'écart type est donc de

$$\sigma(n) = \sqrt{\phi(1 - \phi)}. \quad (\text{D.4})$$

L'erreur sur la force de puits s'écrit :

$$\frac{\Delta k^2}{k^2} = \frac{\Delta N^{\text{abs}}}{N^{\text{abs}}} = \Delta \left(\frac{N^{\text{abs}}}{N_{\text{tot}}} \right) \frac{N_{\text{tot}}}{N^{\text{abs}}}. \quad (\text{D.5})$$

$N^{\text{abs}}/N_{\text{tot}}$ est la moyenne empirique de l'échantillon $(n_1, \dots, n_{N_{\text{tot}}})$, donc

$$\frac{\Delta N^{\text{abs}}}{N^{\text{abs}}} = \frac{\sigma(n)}{\sqrt{N_{\text{tot}}}}. \quad (\text{D.6})$$

Il faut donc estimer la valeur de ϕ pour estimer cette erreur. Comme l'échantillon $(n_1, \dots, n_{N_{\text{tot}}})$ est de grande taille, on peut supposer que la moyenne empirique de l'échantillon $N^{\text{abs}}/N_{\text{tot}}$ est une bonne estimation de l'espérance de la variable aléatoire, c'est-à-dire $\phi \simeq N^{\text{abs}}/N_{\text{tot}}$, d'où on déduit une estimation de $\sigma(n)$ par (D.4).

Ainsi, on obtient l'erreur sur la force de puits comme

$$\frac{\Delta k^2}{k^2} = \sqrt{\frac{N_{\text{tot}} - N^{\text{abs}}}{N_{\text{tot}} N^{\text{abs}}}} \quad (\text{D.7})$$

$$\sim \sqrt{\frac{1}{N^{\text{abs}}}} \quad (\text{D.8})$$

Afin de valider cette expression dans le cas des simulations dans les microstructures, on procède de la façon suivante, correspondant à la méthode décrite dans la référence [63].

On considère une boîte de simulation donnée dans laquelle sont présents plusieurs puits. Le taux de création de défauts ponctuels G est fixé et le temps de simulation t_{sim} est fixé de manière à simuler la migration et l'absorption de $N_{\text{tot}} = t_{\text{sim}} G$ défauts indépendants.

On évalue la force de puits d'une boucle donnée pour cette valeur de N_{tot} . Cette opération est répétée pour $M = 500$ simulations indépendantes sur cette même boîte. On obtient ainsi M valeurs de force de puits pour cette boucle (par exemple, voir figure D.1 (a)), permettant de définir la distribution de forces de puits. On peut ainsi vérifier que la distribution est gaussienne et donc évaluer l'écart type de cette distribution (voir figure D.1 (b)). On compare cet écart type à la formule théorique (D.7) et à son approximation (D.8).

On réalise cette comparaison pour plusieurs valeurs de N_{tot} , afin de vérifier que l'erreur varie comme prédit par ces formules. Les résultats de cette étude sont illustrés sur la figure D.1 (c). Ceci permet de valider l'emploi de la formule (D.8).

ANNEXE D – ÉVALUATION DE L'ERREUR SUR LES FORCES DE PUIITS DANS LES MICROSTRUCTURES

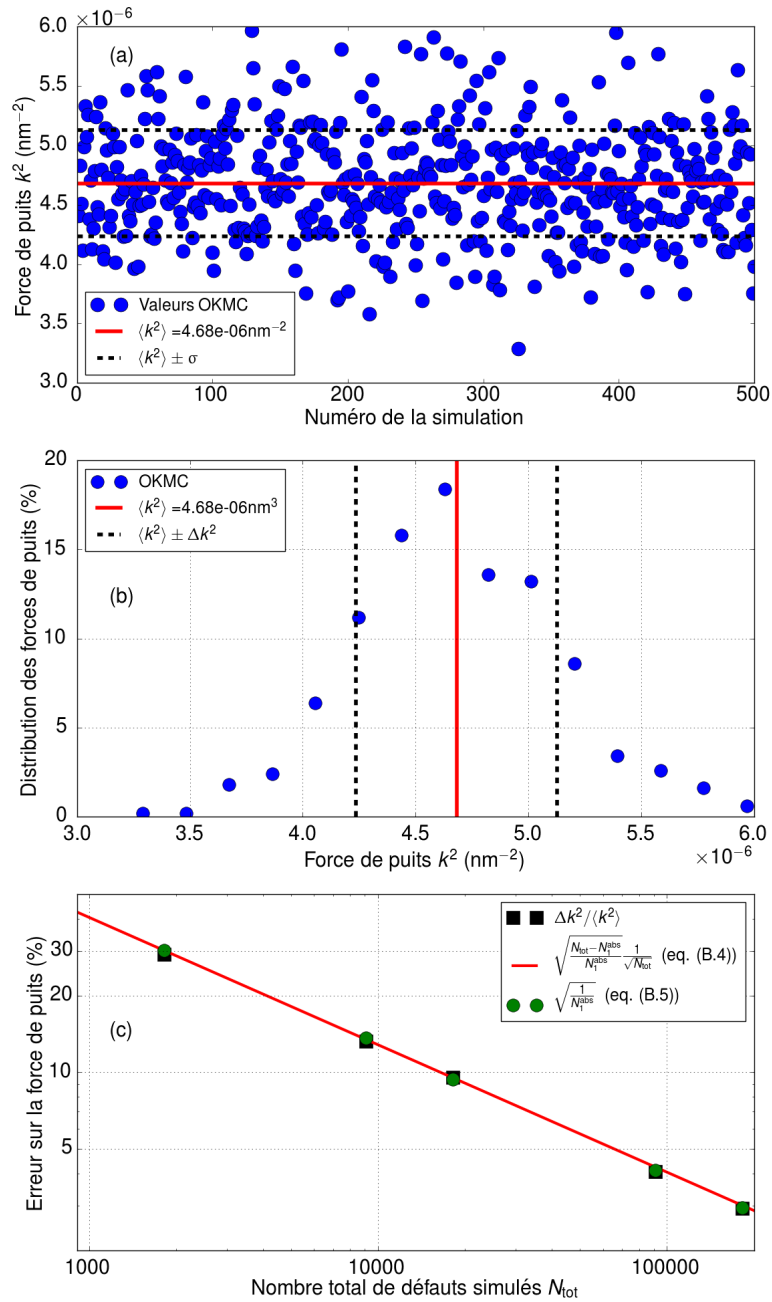


FIGURE D.1 – Validation des expressions (D.7) et (D.8) pour l'évaluation de l'erreur sur la force de puits dans les microstructures. (a) Valeurs obtenues pour la force de puits d'une boucle donnée dans une microstructure, pour les $M = 500$ évaluations indépendantes, pour $N_{\text{tot}} = 18185$. (b) Distribution des valeurs de forces de puits pour cette boucle. (c) Variation de l'erreur sur cette force de puits avec le nombre total de défauts simulés. Ici N_1^{abs} désigne la première évaluation du nombre de défauts absorbés N^{abs} sur les M indépendantes. La méthode suivie est similaire à celle de la référence [63].

Annexe E –

Reproduction de la dispersion des forces de puits en utilisant les volumes de Voronoï

On présente dans cette annexe une expression de forces de puits construite à partir des volumes de Voronoï pour reproduire la dispersion des forces de puits. Elle consiste à introduire les volumes de Voronoï dans l'expression de force de puits développée par A. D. Brailsford *et al.* [39]. Dans cette annexe, on considère le cas 1 où l'absorption se fait sur les boucles englobant les tores, sans interactions élastiques.

L'approche du milieu effectif, proposée par A. D. Brailsford *et al.* [39] dans le cas des cavités sphériques, peut être utilisée pour déterminer les forces de puits des boucles en prenant en compte leurs volumes de Voronoï. Il suffit de considérer que la boucle i est immergée dans une zone sans puits de volume V_i , son volume de Voronoï. En supposant que ce volume est sphérique, on obtient son rayon selon $R_i = (3V_i/4\pi)^{1/3}$. On estime enfin la force de puits totale par $k_{\text{tot}}^2 = G/D\bar{N}^1$. La force de puits de chaque boucle peut alors être estimée par

$$k_i^2 = F(k_{\text{tot}}) (1 + g(k_{\text{tot}})) \quad (\text{E.1})$$

$$F(k_{\text{tot}}) = \frac{4\pi r_i C_i (1 + k_{\text{tot}} R_i)}{1 + k_{\text{tot}} (R_i + r_i)} \quad (\text{E.2})$$

$$g(k_{\text{tot}}) = \frac{k_{\text{tot}}^2 (R_i - r_i)}{6 (1 + k_{\text{tot}} R_i)} \left((R_i + r_i) (3 + k_{\text{tot}} R_i) - 2k_{\text{tot}} r_i^2 \right), \quad (\text{E.3})$$

où r_i est le rayon de la boucle.

Les résultats obtenus dans le cas 1 avec $G = 10^{-1}$ dpa.s⁻¹ et pour $t = 10^{-3}$ s sont illustrés sur la figure E.1. On peut voir que la dispersion obtenue en OKMC n'est pas bien reproduite par cette approche : elle est grandement sous-estimée (pour les valeurs OKMC, voir figure 4.8 (c)).

L'emploi direct des volumes de Voronoï dans cette approche n'est donc pas concluant pour reproduire la dispersion des forces de puits.

1. Il a été vérifié dans le chapitre 5 que les mêmes résultats sont obtenus si l'on évalue k_{tot}^2 par $k_{\text{tot}}^2 = \sum_i 4\pi r_i (1/V)$.

ANNEXE E – REPRODUCTION DE LA DISPERSION DES FORCES DE PUIITS
EN UTILISANT LES VOLUMES DE VORONOÏ

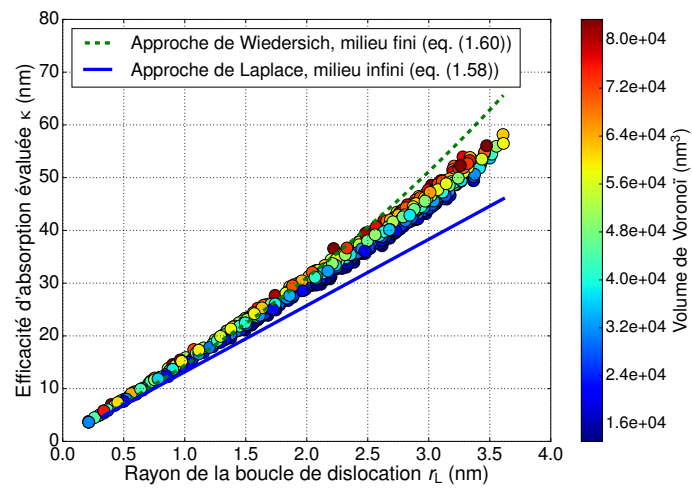


FIGURE E.1 – Forces de puits obtenues par la formules (E.1) pour les valeurs obtenues dans le cas 1 avec $G = 10^{-1}$ dpa.s⁻¹ et pour $t = 10^{-3}$ s.

Bibliographie

- [1] J. L. STRAALSUND, R. W. POWELL et B. A. CHIN : An overview of neutron irradiation effects in LMFRB materials. *J. Nucl. Mater.*, 108:299, 1982.
- [2] F.A. GARNER : 4.02 - Radiation damage in austenitic steels. In Rudy J.M. KONINGS, éditeur : *Comprehensive Nuclear Materials*, pages 33 – 95. Elsevier, Oxford, 2012.
- [3] M. GRIFFITHS : A review of microstructure evolution in zirconium alloys during irradiation. *J. Nucl. Mater.*, 159:190, 1988.
- [4] D. MOSEDALE, D. R. HARRIES, J. A. HUDSON, G. W. LEWTHWAITE et R. J. MCELROY : Irradiation creep in fast reactor core component materials. *Proc. Int. Conf. Radiat. Eff. in Breeder React. Struct. Mater.*, page 209, 1977.
- [5] K. FARRELL, J. BENTLEY et D. N. BRASKI : Direct observation of radiation-induced coated cavities. *Scripta Metall.*, 11:243, 1977.
- [6] S. J. ZINKLE, K. FARRELL et H. KANAZAWA : Microstructure and cavity swelling in reactor-irradiated dilute copper-boron alloy. *J. Nucl. Mater.*, 179-181:994, 1991.
- [7] M. KIRITANI : Microstructure evolution during irradiation. *J. Nucl. Mater.*, 216:220, 1994.
- [8] S. JITSUKAWA et K. HOJOU : Effect of temperature and flux change on the behavior of radiation induced dislocation loops in pure aluminum. *J. Nucl. Mater.*, 212:221, 1994.
- [9] S. YOSHIDA, M. KIRITANI et Y. SHIMOMURA : Dislocation loops with stacking fault in quenched aluminum. *J. Phys. Soc. Japan*, 18(2):175, 1963.
- [10] M. KIRITANI : Similarity and difference between fcc, bcc and hcp metals from the view point of point defect cluster formation. *J. Nucl. Mater.*, 276:41, 2000.
- [11] K. SHIRAIISHI, A. HISHINUMA, Y. KATANO et T. TAOKA : Electron irradiation damage in aluminum in a high voltage electron microscope. *J. Phys. Soc. Japan*, 32(4):964, 1972.
- [12] M. KIRITANI, S. YOSHIDA et H. TAKANA : Interstitial clusters in electron irradiated aluminum. *J. Phys. Soc. Japan*, 36(3):720, 1974.

- [13] B. N. SINGH et A. J. E. FOREMAN : Production bias and void swelling in the transient regime under cascade damage conditions. *Philos. Mag. A*, 66(6):975, 1992.
- [14] G. W. GREENWOOD, A. J. E. FOREMAN et D. E. RIMMER : The role of vacancies and dislocations in the nucleation and growth of gas bubbles in irradiated fissile materials. *J. Nucl. Mater.*, 4:305, 1959.
- [15] A. D. BRAILSFORD et R. BULLOUGH : The rate theory of swelling due to void growth in irradiated metals. *J. Nucl. Mater.*, 44:121, 1972.
- [16] R. BULLOUGH, B. L. EYRE et Krishan K. : Cascade damage effects on the swelling of irradiated materials. *Proc. Royal Soc. Lond. A*, 346(1644):81, 1975.
- [17] W.G. WOLFER, M. ASHKIN et A. BOLTAX : Creep and swelling deformation in structural materials during fast-neutron irradiation. *Am. Soc. Test. Mater., Spec. Tech. Publ. ; (United States)*, 570, 1 1975.
- [18] P. T. HEALD et M. V. SPEIGHT : Steady-state irradiation creep. *Philos. Mag.*, 29(5):1075, 1974.
- [19] L. K. MANSUR : Irradiation creep by climb-enabled glide of dislocations resulting from preferred absorption of point defects. *Philos. Mag. A*, 39(4):497, 1979.
- [20] C. H. WOO et E. J. SAVINO : Stress-induced preferred absorption due to saddle-point anisotropy : The case of an infinitesimal dislocation loop. *J. Nucl. Mater.*, 16:17, 1983.
- [21] B. C. SKINNER et C. H. WOO : Shape effect in the drift diffusion of point defects into straight dislocations. *Phys. Rev. B*, 30(6):3084, september 1984.
- [22] C. H. WOO et U. GÖSELE : Dislocation bias in anisotropic diffusive medium and irradiation growth. *J. Nucl. Mater.*, 119:219, 1983.
- [23] C. H. WOO : Theory of irradiation deformation in non-cubic metals : Effects of anisotropic diffusion. *J. Nucl. Mater.*, 159:237, 1988.
- [24] H. ROUCHETTE, L. THUINET, A. LEGRIS, A. AMBARD et C. DOMAIN : Influence of shape anisotropy of self-interstitials on dislocation sink efficiencies in Zr : Multiscale modeling. *Phys. Rev. B*, 90:014104, Jul 2014.
- [25] E. CLOUET, C. VARVENNE et T. JOURDAN : Elastic modeling of point-defects and their interaction. *Comput. Mater. Sci.*, 147:49, 2018.
- [26] R. SIEMS : Mechanical interactions of point defects. *Phys. Stat. Sol.*, 30:645, 1968.
- [27] W. G. WOLFER : 1.01 - Fundamental properties of defects in metals. In Rudy J.M. KONINGS, éditeur : *Comprehensive Nuclear Materials*, page 1. Elsevier, Oxford, 2012.
- [28] H. KANZAKI : Point defects in face-centred cubic lattice – I Distortion around defects. *J. Phys. Chem. Solids*, 2(1):24 – 36, 1957.
- [29] H. R. SCHOBER : Polarizabilities of point defects in metals. *J. Nucl. Mater.*, 126:220, 1984.

- [30] K. H. ROBROCK et W. SCHILLING : Diaelastic modulus change of aluminium after low temperature electron irradiation. *J. Phys. F : Metal Phys.*, 6(3):303, 1976.
- [31] V. SPIRIĆ, L. E. REHN, K.-H. ROBROCK et W. SCHILLING : Anelastic relaxation due to single self-interstitial atoms in electron-irradiated Al. *Phys. Rev. B*, 15:672, 1977.
- [32] R. A. JOHNSON : Point-defect calculations for an fcc lattice. *Phys. Rev.*, 145:423, May 1966.
- [33] P. H. DEDERICHS et K. SCHROEDER : Anisotropic diffusion in stress fields. *Phys. Rev. B*, 17(6):2524, March 1978.
- [34] Z. CHANG, D. TERYTYEV, N. SANDBERG, K. SAMUELSSON et P. OLSSON : Anomalous bias factors of dislocations in bcc iron. *J. Nucl. Mater.*, 461:221, 2015.
- [35] V. I. DUBINKO, A. S. ABYZOV et A. A. TURKIN : Numerical evaluation of the dislocation loop bias. *J. Nucl. Mater.*, 336(1):11, Jan 2005.
- [36] T. JOURDAN : Influence of dislocation and dislocation loop biases on microstructures simulated by rate equation cluster dynamics. *J. Nucl. Mater.*, 467:286, Dec 2015.
- [37] H. WIEDERSICH : On the theory of void formation during irradiation. *Radiat. Eff.*, 12:111, 1972.
- [38] F. A. NICHOLS : On the estimation of sink-absorption terms in reaction-rate-theory analysis of radiation damage. *J. Nucl. Mater.*, 75:32, 1978.
- [39] A. D. BRAILSFORD, R. BULLOUGH et M. R. HAYNS : Point defects sink strengths and void-swelling. *J. Nucl. Mater.*, 60:246, 1976.
- [40] A. D. BRAILSFORD et R. BULLOUGH : The theory of sink strengths. *Philos. Trans. Royal Soc. Lond. A*, 302(1465):87, 1981.
- [41] H. RAUH et D. SIMON : On the diffusion process of point defects in the stress field of edge dislocations. *Phys. Stat. Sol. A*, 46(2):499, 1978.
- [42] I. G. MARGVELASHVILI et Z. K. SARALIDZE : Influence of an elastic field of a dislocation on steady-state diffusion fluxes of point defects. *Sov. Phys. Solid State*, 15:1774, 1974.
- [43] Frank S. HAM : Stress-assisted precipitation on dislocations. *Journal of Applied Physics*, 30(6):915, Jun 1959.
- [44] W. G. WOLFER et M. ASHKIN : Diffusion of vacancies and interstitials to edge dislocations. *J. Appl. Phys.*, 47(3):791, 1976.
- [45] L. MALERBA, C. S. BECQUART et C. DOMAIN : Object kinetic Monte Carlo study of sink strengths. *J. Nucl. Mater.*, 360:159, 2007.
- [46] W. G. WOLFER et M. ASHKIN : Stress-induced diffusion of point defects to spherical sinks. *J. Appl. Phys.*, 46(2):547, Feb 1975.
- [47] V. A. BORODIN, A. I. RYAZANOV et C. ABROMEIT : Void bias factors due to the anisotropy of the point defect diffusion. *J. Nucl. Mater.*, 207:242, 1993.

- [48] R. BULLOUGH, M. R. HAYNS et C. H. WOO : The sink strength of dislocation loops and their growth in irradiated materials. *J. Nucl. Mater.*, 84:93, 1979.
- [49] C. H. WOO : The sink strength of a dislocation loop in the effective medium approximation. *J. Nucl. Mater.*, 98:279, 1981.
- [50] R. CADE : A perturbation method for solving torus problems in electrostatics. *IMA J. Appl. Math.*, 21(3):265, 1978.
- [51] W. A. COGHLAN et M. H. YOO : Radius dependence of the sink strength of a dislocation loop. In M. F. ASHBY, R. BULLOUGH, C. S. HARTLEY et J. P. HIRTH, éditeurs : *Dislocation Modelling of Physical Systems*, page 152. Pergamon, 1981.
- [52] Z. CHANG, P. OLSSON, D. TERYTYEV et N. SANDBERG : Dislocation bias factors in fcc copper derived from atomistic calculations. *J. Nucl. Mater.*, 441(1-3):357, Oct 2013.
- [53] Z. CHANG, N. SANDBERG, D. TERYTYEV, K. SAMUELSSON, G. BONNY et P. OLSSON : Assessment of the dislocation bias in fcc metals and extrapolation to austenitic steels. *J. Nucl. Mater.*, 465:13, Oct 2015.
- [54] C. H. WOO, W. S. LIU et M. S. WUSCHKE : A finite-difference calculation of point defect migration into a dislocation loop. Technical Report AECL-6441, Atomic Energy of Canada Limited, 1979.
- [55] R. BULLOUGH, D. W. WELLS, J. R. WILLIS et M. H. WOOD : The interaction energy between interstitial atoms and dislocations and its relevance to irradiation damage processes. In M. F. ASHBY, R. BULLOUGH, C. S. HARTLEY et J. P. HIRTH, éditeurs : *Dislocation Modelling of Physical Systems*, page 116. Pergamon, 1981.
- [56] C. N. TOMÉ, H. A. CECATTO et E. J. SAVINO : Point-defect diffusion in a strained crystal. *Phys. Rev. B*, 25:7428, 1982.
- [57] H. ROUCHETTE, L. THUINET, A. LEGRIS, A. AMBARD et C. DOMAIN : Numerical evaluation of dislocation loop sink strengths : A phase-field approach. *Nucl. Instrum. Meth. B*, 352:31, Jun 2015.
- [58] L. THUINET, H. ROUCHETTE et A. LEGRIS : 3D phase-field modelling of dislocation loop sink strengths. *J. Nucl. Mater.*, 483:62, Jan 2017.
- [59] H. ROUCHETTE, L. THUINET, A. LEGRIS, A. AMBARD et C. DOMAIN : Quantitative phase field model for dislocation sink strength calculations. *Comp. Mater. Sci.*, 88:50, 2014.
- [60] H. L. HEINISCH, B. N. SINGH et S. I. GOLUBOV : The effects of one-dimensional glide on the reaction kinetics of interstitial clusters. *J. Nucl. Mater.*, 283:737, December 2000.
- [61] A. VATTRÉ, T. JOURDAN, H. DING, M.-C. MARINICA et M. J. DEMKOWICZ : Non-random walk diffusion enhances the sink strength of semicoherent interfaces. *Nat. Commun.*, 7:10424, Jan 2016.
- [62] J. HOU, X.-S. KONG, X.-Y. LI, X. WU, C. S. LIU, J.-L. CHEN et G.-N. LUO : Modification on theory of sink strength : An Object Kinetic Monte Carlo study. *Comp. Mater. Sci.*, 123:148, Oct 2016.

- [63] T. AHLGREN et L. BUKONTE : Sink strength simulations using the Monte Carlo method : Applied to spherical traps. *J. Nucl. Mater.*, 496:66, 2017.
- [64] G. SUBRAMANIAN, D. PEREZ, B. P. UBERUAGA, C. N. TOMÉ et A. F. VOTER : Method to account for arbitrary strains in kinetic Monte Carlo simulations. *Phys. Rev. B*, 87:144107, 2013.
- [65] A. B. SIVAK, V. M. CHERNOV, V. A. ROMANOV et P. A. SIVAK : Kinetic Monte-Carlo simulation of self-point defect diffusion in dislocation elastic fields in bcc iron and vanadium. *J. Nucl. Mater.*, 417:1067, 2011.
- [66] A. B. SIVAK et P. A. SIVAK : Efficiency of dislocations as sinks of radiation defects in fcc copper crystal. *Crystallogr. Rep.*, 59(3):407, May 2014.
- [67] P. HOHENBERG et W. KOHN : Inhomogeneous electron gas. *Phys. Rev.*, 136:B864, Nov 1964.
- [68] W. KOHN et L. J. SHAM : Self-consistent equations including exchange and correlation effects. *Phys. Rev.*, 140:A1133, Nov 1965.
- [69] J. P. PERDEW, K. BURKE et M. ERNZERHOF : Generalized gradient approximation made simple. *Phys. Rev. Lett.*, 77(18):3865, october 1996.
- [70] P. E. BLÖCHL : Projector augmented-wave method. *Phys. Rev. B*, 50:17953, Dec 1994.
- [71] F. SOISSON et C.-C. FU : Cu-precipitation kinetics in α -Fe from atomistic simulations : Vacancy-trapping effects and Cu-cluster mobility. *Phys. Rev. B*, 76:214102, Dec 2007.
- [72] C. J. ORTIZ, M. J. CATURLA, C. C. FU et F. WILLAIME : Influence of carbon on the kinetics of He migration and clustering in α -Fe from first principles. *Phys. Rev. B*, 80:134109, Oct 2009.
- [73] C. C. FU, J. DALLA TORRE, F. WILLAIME, J. L. BOCQUET et A. BARBU : Multiscale modelling of defect kinetics in irradiated iron. *Nature Mater.*, 4:68, Jan 2005.
- [74] T. JOURDAN, C.-C. FU, L. JOLY, J. L. BOCQUET, M. J. CATURLA et F. WILLAIME : Direct simulation of resistivity recovery experiments in carbon-doped α -iron. *Phys. Scr.*, T145:014049, Dec 2011.
- [75] S. PELLEGRINO, J.P. CROCOMBETTE, A. DEBELLE, T. JOURDAN, P. TROCELLIER et L. THOMÉ : Multi-scale simulation of the experimental response of ion-irradiated zirconium carbide : Role of interstitial clustering. *Acta Mater.*, 102:79, september 2015.
- [76] G. KRESSE et J. HAFNER : Ab initio molecular dynamics for liquid metals. *Phys. Rev. B*, 47(1):558, january 1993.
- [77] G. KRESSE et J. HAFNER : Ab initio molecular-dynamics simulation of the liquid-metal – amorphous-semiconductor transition in germanium. *Phys. Rev. B*, 49(20):14251, may 1994.

- [78] G. KRESSE et J. FURTHMÜLLER : Efficiency of ab-initio total energy calculations for metals and semiconductors using a plane-wave basis set. *Comp. Mater. Sci.*, 6:15, 1996.
- [79] G. KRESSE et J. FURTHMÜLLER : Efficient iterative schemes for ab initio total-energy calculations using a plane-wave basis set. *Phys. Rev. B*, 54(16):11169, october 1996.
- [80] A. GLENSK, B. GRABOWSKI, T. HICKEL et J. NEUGEBAUER : Breakdown of the Arrhenius law in describing vacancy formation energies : The importance of local anharmonicity revealed by ab initio thermodynamics. *Phys. Rev. X*, 4:011018, Feb 2014.
- [81] C. FREYSOLDT, B. GRABOWSKI, T. HICKEL, J. NEUGEBAUER, G. KRESSE, A. JANOTTI et C. G. Van de WALLE : First-principles calculations for point defects in solids. *Rev. Mod. Phys.*, 86:253, Mar 2014.
- [82] G. HENKELMAN, B. P. UBERUAGA et H. JÓNSSON : A climbing image nudged elastic band method for finding saddle points and minimum energy paths. *J. Chem. Phys.*, 113(22):9901, Dec 2000.
- [83] C. VARVENNE, F. BRUNEVAL, M.-C. MARINICA et E. CLOUET : Point defect modeling in materials : Coupling ab initio and elasticity approaches. *Phys. Rev. B*, 88:134102, Oct 2013.
- [84] C. VARVENNE et E. CLOUET : Elastic dipoles of point defects from atomistic simulations. *Phys. Rev. B*, 96:224103, 2017.
- [85] G. J. ACKLAND : Theoretical study of the effect of point defects on the elastic constants of copper. *J. Nucl. Mater.*, 152:53, 1988.
- [86] M. P. PULS et C. H. WOO : Diaelastic polarizabilities due to vacancies and interstitials in metals. *J. Nucl. Mater.*, 139:48, 1986.
- [87] H. L. HEINISCH : Defect production in simulated cascades : Cascade quenching and short-term annealing. *J. Nucl. Mater.*, 117:46, 1983.
- [88] H. L. HEINISCH et B. N. SINGH : Stochastic annealing simulation of intracascade defect interactions. *J. Nucl. Mater.*, 251:77, 1997. Proceedings of the International Workshop on Defect Production, Accumulation and Materials Performance in an Irradiation Environment.
- [89] M. J. CATURLA, N. SONEDA, E. ALONSO, B. D. WIRTH, T. Díaz de la RUBIA et J. M. PERLADO : Comparative study of radiation damage accumulation in Cu and Fe. *J. Nucl. Mater.*, 276:13, 2000.
- [90] T. JOURDAN, J.-L. BOCQUET et F. SOISSON : Modeling homogeneous precipitation with an event-based Monte Carlo method : Application to the case of Fe–Cu. *Acta Mater.*, 58(9):3295 – 3302, 2010.
- [91] G. NANDIPATI, W. SETYAWAN, H. L. HEINISCH, K. J. ROCHE, R. J. KURTZ et B. D. WIRTH : Displacement cascades and defect annealing in tungsten, Part II : Object kinetic Monte Carlo simulation of tungsten cascade aging. *J. Nucl. Mater.*, 462:338, 2015.

- [92] A. B. BORTZ, M. H. KALOS et J. L. LEBOWITZ : A new algorithm for Monte Carlo simulation of Ising spin systems. *J. Comput. Phys.*, 17:10, 1975.
- [93] D. T. GILLESPIE : A general method for numerically simulating the stochastic time evolution of coupled chemical reactions. *J. Comput. Phys.*, 2:403, 1976.
- [94] F. SOISSON, C. S. BECQUART, N. CASTIN, C. DOMAIN, L. MALERBA et E. VINCENT : Atomistic Kinetic Monte Carlo studies of microchemical evolutions driven by diffusion processes under irradiation. *J. Nucl. Mater.*, 406:55, 2010.
- [95] F. SOISSON : Kinetic Monte Carlo simulations of radiation induced segregation and precipitation. *J. Nucl. Mater.*, 349(3):235, 2006.
- [96] C. DOMAIN, C. S. BECQUART et L. MALERBA : Simulation of radiation damage in fe alloys : an object kinetic Monte Carlo approach. *J. Nucl. Mater.*, 335(1):121, 2004.
- [97] E. MARTÍNEZ, O. SENNINGER, C.-C. FU et F. SOISSON : Decomposition kinetics of Fe-Cr solid solutions during thermal aging. *Phys. Rev. B*, 86:224109, Dec 2012.
- [98] N. SONEDA, S. ISHINO, A. TAKAHASHI et K. DOHI : Modeling the microstructural evolution in bcc-Fe during irradiation using kinetic Monte Carlo computer simulation. *J. Nucl. Mater.*, 323(2):169, 2003. Proceedings of the Second IEA Fusion Materials Agreement Workshop on Modeling and Experimental Validation.
- [99] A. B. SIVAK, P. A. SIVAK, V. A. ROMANOV et V. M. CHERNOV : Dislocation sinks efficiency for self-point defects in iron and vanadium crystals. *Inorg. Mater. Appl. Res.*, 6(2):105–113, Mar 2015.
- [100] A. B. SIVAK, P. A. SIVAK, V. A. ROMANOV et V. M. CHERNOV : Effect of external stresses on efficiency of dislocation sinks in bcc (Fe, V) and fcc (Cu) crystals. *Inorg. Mater. Appl. Res.*, 6(5):466–472, Sep 2015.
- [101] H. CHENG, L. GREENGARD et V. ROKHLIN : A fast adaptive multipole algorithm in three dimensions. *J. Comput. Phys.*, 155(2):468, 1999.
- [102] A. FINEL et D. RODNEY : Phase field methods and dislocations. *In MRS Fall Meeting Y4.9*, page 652. Boston, 2000.
- [103] S. Y. HU et L. Q. CHEN : Solute segregation and coherent nucleation and growth near a dislocation – a phase-field model integrating defect and phase microstructures. *Acta Mater.*, 49:463, 2001.
- [104] D. RODNEY, Y. LE BOUAR et A. FINEL : Phase field methods and dislocations. *Acta Mater.*, 51:17, 2003.
- [105] J. DALLA TORRE, J.-L. BOCQUET, N. V. DOAN, E. ADAM et A. BARBU : JERK, an event-based kinetic Monte Carlo model to predict microstructure evolution of materials under irradiation. *Philos. Mag.*, 85(4-7):549, Jan 2005.
- [106] N. M. GHONIEM et D. D. CHO : The simultaneous clustering of point defects during irradiation. *Phys. Stat. Sol. A*, 54(1):171, 1979.
- [107] N. M. GHONIEM et S. SHARAFAT : A numerical solution to the Fokker-Planck equation describing the evolution of the interstitial loop microstructure during irradiation. *J. Nucl. Mater.*, 92(1):121, 1980.

- [108] C. J. ORTIZ, P. PICHLER, T. FÜHNER, F. CRISTIANO, B. COLOMBEAU, N. E. B. COWERN et A. CLAVERIE : A physically based model for the spatial and temporal evolution of self-interstitial agglomerates in ion-implanted silicon. *J. Appl. Phys.*, 96(9):4866, 2004.
- [109] C. J. ORTIZ, M. J. CATURLA, C. C. FU et F. WILLAIME : He diffusion in irradiated α -Fe : An ab-initio-based rate theory model. *Phys. Rev. B*, 75:100102, Mar 2007.
- [110] D. XU et B. D. WIRTH : Modeling spatially dependent kinetics of helium desorption in bcc iron following He ion implantation. *J. Nucl. Mater.*, 403:184, 2010.
- [111] D. XU, B. D. WIRTH, M. LI et M. A. KIRK : Defect microstructural evolution in ion irradiated metallic nanofoils : Kinetic Monte Carlo simulation versus cluster dynamics modeling and in situ transmission electron microscopy experiments. *Appl. Phys. Lett.*, 101(10):101905–, septembre 2012.
- [112] T. JOURDAN, G. BENCTEUX et G. ADJANOR : Efficient simulation of kinetics of radiation induced defects : A cluster dynamics approach. *J. Nucl. Mater.*, 444:298, 2014.
- [113] N SONEDA et T. Diaz de la RUBIA : Defect production, annealing kinetics and damage evolution in α -Fe : An atomic-scale computer simulation. *Philos. Mag. A*, 78(5):995, 1998.
- [114] A. HARDOUIN-DUPARC, C. MOINGEON, N. SMETNIANSKY-DE-GRANDE et A. BARBU : Microstructure modelling of ferritic alloys under high flux 1 MeV electron irradiations. *J. Nucl. Mater.*, 302:143, 2002.
- [115] J. P. HIRTH et J. LOTHE : *Theory of Dislocations*. Wiley-Interscience, 1982.
- [116] W.G. WOLFER, L.K. MANSUR et J.A. SPRAGUE : Theory of swelling and irradiation creep. Rapport technique, Wisconsin Univ., Madison (USA). Dept. of Nuclear Engineering ; Oak Ridge National Lab., TN (USA) ; Naval Research Lab., Washington, DC (USA), 1977.
- [117] M. KIRITANI : Analysis of the clustering process of supersaturated lattice vacancies. *J. Phys. Soc. Japan*, 35(1):95–107, 1973.
- [118] S. I. GOLUBOV, A. M. OVCHARENKO, A. V. BARASHEV et B. N. SINGH : Grouping method for the approximate solution of a kinetic equation describing the evolution of point-defect clusters. *Philos. Mag. A*, 81:643, 2001.
- [119] T. JOURDAN, G. STOLTZ, F. LEGOLL et L. MONASSE : An accurate scheme to solve cluster dynamics equations using a Fokker–Planck approach. *Comput. Phys. Commun.*, 207:170, 2016.
- [120] A. A. KOHNERT et B. D. WIRTH : Grouping techniques for large-scale cluster dynamics simulations of reaction diffusion processes. *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.*, 25(1):015008, 2017.
- [121] M. KOIWA : On the validity of the grouping method –comments on “analysis of the clustering process of supersaturated lattice vacancies”–. *J. Phys. Soc. Japan*, 37(6):1532, 1974.

- [122] J. S. CHANG et G. COOPER : A practical difference scheme for Fokker-Planck equations. *J. Comput. Phys.*, 6(1):1, 1970.
- [123] J. MARIAN et V. V. BULATOV : Stochastic cluster dynamics method for simulations of multispecies irradiation damage accumulation. *J. Nucl. Mater.*, 415:84, 2011.
- [124] M. GHERARDI, T. JOURDAN, S. LE BOURDIEC et G. BENCTEUX : Hybrid deterministic/stochastic algorithm for large sets of rate equations. *Comput. Phys. Commun.*, 183:1966, 2012.
- [125] M. P. SURH, J. B. STURGEON et W. G. WOLFER : Master equation and Fokker-Planck methods for void nucleation and growth in irradiation swelling. *J. Nucl. Mater.*, 325:44, 2004.
- [126] P. TERRIER, M. ATHÈNES, T. JOURDAN, G. ADJANOR et G. STOLTZ : Cluster dynamics modelling of materials : A new hybrid deterministic/stochastic coupling approach. *J. Comput. Phys.*, 350:280, 2017.
- [127] D. BRIMBAL, L. FOURNIER et A. BARBU : Cluster dynamics modeling of the effect of high dose irradiation and helium on the microstructure of austenitic stainless steels. *J. Nucl. Mater.*, 468:124, 2016.
- [128] M. ZOUARI, L. FOURNIER, A. BARBU et Y. BRECHET : Cluster dynamics prediction of the microstructure evolution of 300-series austenitic stainless steel under irradiation : influence of helium. In J. T. BUSBY, G. ILEVARE et P. L. ANDRESEN, éditeurs : *15th International Conference on Environmental Degradation of Materials In Nuclear Power Systems - Water reactors*, page 1371, Chichester, W Sussex PO 19 8SQ, England, 2011. Jonh Wiley & Sons.
- [129] D. XU, B. D. WIRTH, M. LI et M. A. KIRK : Combining in situ transmission electron microscopy irradiation experiments with cluster dynamics modeling to study nanoscale defect agglomeration in structural materials. *Acta Mater.*, 60:4286, 2012.
- [130] A. DUNN et L. CAPOLUNGO : Simulating radiation damage accumulation in α -Fe : A spatially resolved stochastic cluster dynamics approach. *Comp. Mater. Sci.*, 102:314, 2015.
- [131] B. MICHAUT, T. JOURDAN, J. MALAPLATE, A. RENAULT-LABORNE, F. SEFTA et B DÉCAMPS : Cluster dynamics modeling and experimental investigation of the effect of injected interstitials. *J. Nucl. Mater.*, 496:166, 2017.
- [132] J. ROTTLER, D. J. SROLOVITZ et R. CAR : Point defect dynamics in bcc metals. *Phys. Rev. B*, 71:064109, Feb 2005.
- [133] R. E. STOLLER, S. I. GOLUBOV, C. DOMAIN et C. S. BECQUART : Mean field rate theory and object kinetic Monte Carlo : A comparison of kinetic models. *J. Nucl. Mater.*, 382(2):77, 2008.
- [134] T. JOURDAN et J.-P. CROCOMBETTE : On the transfer of cascades from primary damage codes to rate equation cluster dynamics and its relation to experiments. *Comp. Mater. Sci.*, 145:235, 2018.

- [135] J. DALLA TORRE, C. C. FU, F. WILLAIME, A. BARBU et J. L. BOCQUET : Resistivity recovery simulations of electron-irradiated iron : Kinetic Monte Carlo versus cluster dynamics. *J. Nucl. Mater.*, 352(1):42, 2006. Proceedings of the E-MRS 2005 Spring Meeting Symposium N on Nuclear Materials (including the 10th Inert Matrix Fuel Workshop).
- [136] F. BERTHIER, E. MARAS, I. BRAEMS et B. LEGRAND : Multiscale modelling of the ageing kinetics of a 2D deposit. In *Solid-Solid Phase Transformations in Inorganic Materials*, volume 172 de *Solid State Phenomena*, page 664. Trans Tech Publications, 6 2011.
- [137] T. JOURDAN et J.-P. CROCOMBETTE : Rate theory cluster dynamics simulations including spatial correlations within displacement cascades. *Phys. Rev. B*, 86:054113, Aug 2012.
- [138] A. BARBU et E. CLOUET : Cluster dynamics modeling of materials : Advantages and limitations. In *Multiscale kinetic modelling of materials*, volume 129 de *Solid State Phenomena*, page 51. Trans Tech Publications, 11 2007.
- [139] C. J. ORTIZ et M. J. CATURLA : Simulation of defect evolution in irradiated materials : Role of intracascade clustering and correlated recombination. *Phys. Rev. B*, 75:184101, May 2007.
- [140] C. J. ORTIZ et M. J. CATURLA : Cascade damage evolution : rate theory versus kinetic Monte Carlo simulations. *J. Comput. Aided Mater. Des.*, 14(1):171–181, Dec 2007.
- [141] S. I. GOLUBOV, B. N. SINGH et H. TRINKAUS : On recoil-energy-dependent defect accumulation in pure copper Part II. Theoretical treatment. *Philos. Mag. A*, 81:2533, 2001.
- [142] E. CLOUET, A. BARBU, L. LAÉ et G. MARTIN : Precipitation kinetics of Al₃Zr and Al₃Sc in aluminum alloys modeled with cluster dynamics. *Acta Mater.*, 53(8):2313, 2005.
- [143] D. I. R. NORRIS : The growth of voids in nickel in a high-voltage electron microscope. *Philos. Mag. A*, 23(181):135, 1971.
- [144] K. URBAN : Growth of defect clusters in thin nickel foils during electron irradiation. *Phys. Stat. Sol. A*, 4:761, 1971.
- [145] P. EHRHART : Atomic defects in metals · Al : Datasheet from Landolt-Börnstein - Group III Condensed Matter · Volume 25 : “Atomic Defects in Metals” in SpringerMaterials (http://dx.doi.org/10.1007/10011948_58), 1991.
- [146] D. CARPENTIER, T. JOURDAN, Y. LE BOUAR et M.-C. MARINICA : Effect of saddle point anisotropy of point defects on their absorption by dislocations and cavities. *Acta Mater.*, 136:323, Sept 2017.
- [147] W. G. WOLFER : Segregation of point defects by internal stress fields. In M. T. ROBINSON et F. W. YOUNG, Jr., éditeurs : *Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals*, volume II, page 812, 1975.

- [148] A. I. RYAZANOV et D. G. SHERSTENNIKOV : Void bias factor in materials with weak cubic anisotropy. *J. Nucl. Mater.*, 186:33, 1991.
- [149] J. L. TALLON et A. WOLFENDEN : Temperature dependence of the elastic constants of aluminum. *J. Phys. Chem. Solids*, 40:831, 1979.
- [150] H. FLYVBJERG et H. G. PETERSEN : Error estimates on averages of correlated data. *J. Chem. Phys.*, 91(1):461, Jul 1989.
- [151] W. SCHILLING : Self-interstitial atoms in metals. *J. Nucl. Mater.*, 69 & 70:465, 1978.
- [152] P. T. HEALD et M. V. SPEIGHT : Point defect behaviour in irradiated materials. *Acta Metall.*, 23:1389, November 1975.
- [153] P. T. HEALD : The preferential trapping of interstitials at dislocations. *Philos. Mag.*, 31:551, 1975.
- [154] C. JIANG, N. SWAMINATHAN, J. DENG, D. MORGAN et I. SZLUFARSKA : Effect of grain boundary stresses on sink strength. *Mater. Res. Lett.*, 2:100, 2014.
- [155] R. BULLOUGH et R. C. NEWMAN : The kinetics of migration of point defects to dislocations. *Rep. Prog. Phys.*, 33(1):101, 1970.
- [156] W. G. WOLFER : The dislocation bias. *J. Comput. Aided Mater. Des.*, 14(3):403, Aug 2007.
- [157] W. P. KUYKENDALL et W. CAI : Conditional convergence in two-dimensional dislocation dynamics. *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.*, 21(5):055003, May 2013.
- [158] H. R. BRAGER et J. L. STRAALSUND : Defect development in neutron irradiated type 312 stainless steel. *J. Nucl. Mater.*, 46:134, 1973.
- [159] H. ROUCHETTE : *Sink efficiency calculation of dislocations in irradiated materials by phase-field modelling*. Thèse de doctorat, Université de Lille 1, 2015.
- [160] I.-W. CHEN : Anisotropic diffusion of point defects to edge dislocations. *J. Nucl. Mater.*, 125:52, 1984.
- [161] V. A. BORODIN et A. I. RYAZANOV : The effect of diffusion anisotropy on dislocation bias and irradiation creep in cubic lattice materials. *J. Nucl. Mater.*, 210:258, 1994.
- [162] C. H. WOO : Irradiation creep due to elastodiffusion. *J. Nucl. Mater.*, 120:55, 1984.
- [163] J. AHRENS, G. BERK et C. LAW : Paraview : An end-user tool for large-data visualization. In Charles D. HANSEN et Chris R. JOHNSON, éditeurs : *Visualization Handbook*, page 717. Butterworth-Heinemann, Burlington, 2005.
- [164] C. H. WOO : Intrinsic bias differential between vacancy loops and interstitial loops. *J. Nucl. Mater.*, 107:20, 1982.
- [165] F. KROUPA : Circular edge dislocation loop. *Czech. J. Phys. B*, 10:284, 1960.
- [166] T. A. KHRAISHI, J. P. HIRTH, H. M. ZBIB et M. A. KHALEEL : The displacement and strain–stress fields of a general circular and Volterra dislocation loop. *Int. J. Eng. Sci.*, 38:251, 2000.

- [167] Z. YANG, N. SAKAGUCHI, S. WATANABE et M. KAWAI : Dislocation loop formation and growth under in situ laser and/or electron irradiation. *Scientific Reports*, 1:1, Dec 2011.
- [168] C. B. BARBER, D. P. DOBKIN et H. HUHDANPAA : The quickhull algorithm for convex hulls. *ACM Trans. Math. Softw.*, 22(4):469, dec 1996.
- [169] S. KUMAR, S. K. KURTZ, J. R. BANAVARN et M. G. SHARMA : Properties of a three-dimensional Poisson-Voronoi tessellation : A Monte Carlo study. *J. Stat. Phys.*, 67(3/4):523, 1992.
- [170] E. A. LAZAR, J. K. MASON, MacPherson R. D. et J. D. SROLOVITZ : Statistical topology of three-dimensional Poisson-Voronoi cells and cell boundary networks. *Phys. Rev. E*, 88:063309, 2013.

Liste des abréviations

AKMC	Monte Carlo cinétique atomique
CC	Cubique centré
CFC	Cubique faces centrées
CP	Champ de phase
DA	Dynamique d'Amas
DAD	<i>Diffusion Anisotropy Difference</i>
DF	Différences finies
DFT	Théorie de la fonctionnelle de la densité
dpa	Déplacement par atome
EF	Éléments finis
EKMC	Monte Carlo cinétique sur évènements
FMM	Méthode multipolaire rapide (<i>Fast Multipole Method</i>)
FMM	Transformation de Fourier rapide (<i>Fast Fourier Transform</i>)
FP	Fokker-Planck
GGA	Approximation du Gradient Généralisé
HC	Hexagonal compact
KMC	Monte Carlo cinétique
LDA	Approximation de la Densité Locale
NEB	<i>Nudged elastic band</i>
OKMC	Monte Carlo cinétique sur objets
PAW	<i>Projector Augmented Wave</i>

LISTE DES ABRÉVIATIONS

PBE Perdew-Burke-Ernzerhof

SAS *Shape anisotropy of the SIAs*

SIPA *Stress-induced preferred absorption*

SIPA-AD *Stress-induced preferred absorption due to anisotropic diffusion*

SSA Algorithme de simulation stochastique (*stochastic simulation algorithm*)

Titre : Simulation de la cinétique d'absorption des défauts ponctuels par les dislocations et amas de défauts

Mots clés : Monte Carlo, Irradiation, Cinétique, Dynamique d'amas, Dislocations

Résumé : La dynamique d'amas (DA) est une méthode de simulation en champ moyen permettant la prédiction de l'évolution des matériaux sous irradiation. Dans cette thèse, on s'intéresse aux *forces de puits*, qui sont les paramètres utilisés en DA pour représenter la capacité des puits (dislocations, cavités...) à absorber les défauts ponctuels (lacunes, interstitiels). Pour calculer les forces de puits, on réalise des simulations Monte Carlo cinétique sur objets (OKMC) dans lesquelles l'énergie des défauts ponctuels au point stable et au point col est décrite à l'aide de dipôles élastiques. Ces quantités sont préalablement calculées pour un cristal d'aluminium en utilisant la théorie de la fonctionnelle de la densité. Une première partie de ce travail vise à évaluer les forces des principaux puits présents dans les microstructures sous irradiation (cavité, dislocation droite et boucle de dislocation) dans des configurations simples. L'étude met en évidence l'importance des interactions élastiques, et permet d'identifier l'anisotropie des dipôles élastiques au point col comme un paramètre très important qui modifie à la fois les trajectoires des défauts ponctuels et les valeurs de forces de puits. On s'intéresse dans une deuxième partie à l'importance de la position relative des puits sur leur capacité à absorber les défauts ponctuels. Des microstructures contenant un grand nombre de boucles de dislocation sont générées par des simulations OKMC et l'absorption des défauts ponctuels par ces microstructures est mesurée. Il est montré que le voisinage d'un puits modifie sensiblement sa capacité à absorber les défauts ponctuels et ce comportement est rationalisé en utilisant le volume de Voronoï associé à chaque puits. Cette étude conduit à proposer une nouvelle expression de force de puits, ainsi qu'un nouveau formalisme de DA dans lequel les amas sont caractérisés par leur taille et par le volume de leur cellule de Voronoï. Il est montré que ce formalisme permet d'améliorer fortement la prédiction de l'évolution des distributions de tailles d'amas lors d'une irradiation.

Title : Simulation of absorption kinetics of point defects by dislocations and defect clusters

Keywords : Monte Carlo, Irradiation, Kinetics, Cluster dynamics, Dislocations

Abstract: Cluster Dynamics (CD) is a mean field simulation method which makes it possible to predict the materials evolution under irradiation. In this work, we focus on sink strengths, which are the parameters used in CD to represent the capacity of sinks (dislocations, cavities...) to absorb point defects (vacancies, self-interstitials). To calculate the sink strengths, object kinetic Monte Carlo (OKMC) simulations are performed. The energy of point defects at stable and saddle points is described through their elastic dipoles. These elements are computed in an aluminum crystal using density functional theory. In a first part, the sink strengths of the main objects found in irradiated microstructures (dislocations, cavities and dislocation loops) are calculated on simple configurations. This study reveals the importance of elastic interactions, and enables us to identify the saddle point anisotropy of point defects as an important parameter, as it modifies both the point defects trajectories and the sink strength values. Then, we focus on the role of the relative position of sinks in their capacity to absorb point defects. Microstructures containing a large number of dislocation loops are generated by OKMC simulations and the absorption of point defects by those microstructures is measured. It is shown that the neighborhood of a sink modifies noticeably its capacity to absorb the point defects and this behavior is rationalized through the Voronoi volume associated with each sink. This study leads to the proposal of a new sink strength expression, and of a new formalism for CD in which clusters are described by their size and their Voronoi volume. The results show that this formalism makes it possible to strongly improve the prediction of the evolution of cluster size distributions during irradiation.

