

*Dedicated to my **Great parents**,
Maryam, Issa and Youssef.
To all my loved ones.*

Remerciement

Cette thèse a été réalisée au laboratoire **LPEDD** (Laboratoire de Production Energétique et Développement Durable), à l'Ecole Supérieure de Technologie de Fès.

Je tiens tout d'abord à remercier mon directeur de thèse, **Driss DAFIR**, pour avoir dirigé mes travaux, encadré ma thèse, et pour avoir toujours été disponible pour discuter mes résultats, ainsi que pour ses nombreux conseils scientifiques.

Je remercie chaleureusement **AMEGOUZ Driss**, **BOULGHALLAT Mustapha**, **JOUAITI Ahmed**, **SKALI Mohammed** et **BOUTAHARI Saïd**, de m'avoir fait l'honneur de participer à mon jury de thèse, examiner mon rapport et d'assister à ma soutenance.

Je tiens à remercier Professeur Irmantas Gedzevičius pour m'avoir donné l'opportunité de la mobilité et pour son aide, ainsi que Professeur Justinas GARGASAS, pour leurs discussions scientifiques enrichissantes, pour leur accueil dans leur laboratoire à l'Université technique Gediminas de Vilnius, en Lituanie, et surtout pour leur gentillesse.

Je remercie mes collègues, doctorants, dont beaucoup ont devenus de vrais amis : Youssef Zahir, Soukaina, Meryem, Abdellah, Oussama. Merci pour tous les bons moments passés au laboratoire et en dehors, je me suis toujours sentie très entourée et soutenue en votre compagnie.

Finalement, un immense merci à ma petite famille, ma mère, mon père, Maryam, Issa et Yousef, pour m'avoir supportée et encouragée quotidiennement tout au long de ces années de thèse, tout comme lors des années qui précédaient et dans celles, j'en suis sûre, qui vont suivre. Merci de m'avoir toujours poussée à croire que tout finirait par s'arranger, même dans les périodes de doutes.

Je remercie aussi mes ami(e)s, Hanae, Youssra, Mustapha, Aziz, Zouhir, Wlad, qui sont maintenant capables d'expliquer mon sujet de thèse, avec plus ou moins de précisions.

Sommaire	
Liste des Figures.....	7
Liste des Tableaux	9
Introduction générale	10
Structure de la thèse	13
Chapitre I : LES ALLIAGES D'ALUMINIUM.....	15
Introduction.....	16
I.1.1. Généralités	16
I.1.2. Propriétés d'Aluminium.....	17
a. Propriétés physiques	17
b. Propriétés mécaniques.....	18
c. Désignation numérique des alliages d'Al	18
d. Signification des désignations.....	18
I.1.3. Influence des éléments d'addition.....	20
a. Magnésium (Mg)	20
b. Silicium (Si)	21
I.1.4. Les séries d'alliages d'Aluminium.....	21
a. Série Al/Si 4xxx : propriétés et comportement	21
b. Série Al-Mg 5xxx : propriétés et comportements	23
c. Série Al-Mg-Si 6xxx : propriétés et comportements	24
I.1.5. Traitements thermiques	25
a. Durcissement structural.....	25
I.1.6. Techniques de caractérisation.....	27
a. Essai de traction et compression	27
b. Essais de dureté et micro dureté.....	28
Conclusion	29
Références Ch. I.....	30
Chapitre II : METHODES DE SIMULATION : DYNAMIQUE MOLECULAIRE	34
Introduction.....	35
II.1. Modélisation moléculaire	36
II.1.1 Approche de la dynamique moléculaire.....	36
II.2. Méthode de Dynamique Moleculaire	36
II.2.1. Principe générale.....	36
II.2.3. Équation du mouvement	37
II.2.4. Algorithmes d'intégration des équations du mouvement.....	38
a. Algorithme de Verlet	38
b. Conditions initiales et conditions aux limites périodiques.....	40
II.2.5. Ensembles thermodynamiques	41

II.2.6.	Choix du pas du temps	42
II.2.7.	Potentiels d'interaction.....	42
a-	Potentiel Lennard-Jones.....	43
b-	Potentiel Embedded Atom Method (EAM)	44
c-	Potentiel Modified Embedded Atom Method (MEAM).....	45
II.2.8.	Minimisation de la structure initiale	45
II.2.9.	Déroulement d'une simulation de DM.....	46
	Références Ch. II.....	49
	Chapitre III : OUTILS DE MODELISATION.....	52
	Introduction.....	53
III.1.	Computer packages	54
III.1.1.	Input and output files	54
a.	LAMMPS input script.....	54
b.	Running a simulation	63
c.	LAMMPS output script.....	63
d.	Visualization Tools for Molecular Dynamics Simulation	64
	Conclusion.....	66
	References Ch. III.....	67
	Chapitre IV “MODELING ALUMINUM USING MOLECULAR DYNAMICS SIMULATION”	68
	Abstract.....	69
IV.1.	Materials & methods	72
IV.1.1.	Aluminum	72
IV.1.2.	Molecular dynamics.....	73
IV.1.3.	Lennard-Jones Potential.....	73
IV.1.4.	EAM potential	74
IV.1.5.	Characters	74
a.	Bulk modulus	74
b.	Radial Distribution Function (RDF)	75
IV.1.6.	Computer Packages	75
a.	Background LAMMPS	75
b.	Visualization of the system	76
IV.2.	RESULTS AND DISCUSSION	76
IV.2.1.	Structure	76
IV.2.2.	Stress-strain behavior	77
a.	Bulk modulus	78
b.	Radial Distribution Function (RDF)	79
	Summary.....	81

Conclusion	81
References Ch. IV	82
Chapitre V “COMPRESSION BEHAVIOR OF AL-MG PHASES, MOLECULAR DYNAMICS SIMULATION”	84
Abstract	87
Introduction	88
V.1. Materials and methods	94
V.1.1. Aluminum-Magnesium (Al-Mg) System (5xxx series)	94
V.1.2. Interatomic potentials : EAM potential	96
V.1.3. Determination of potential parameters for the Al-Mg binary system	97
V.2. Molecular dynamics simulation procedure	98
V.3. RESULTS AND DISCUSSION	100
V.3.1. Microstructural evolution of Al-Mg phases	100
V.3.2. Radial Distribution Function (RDF)	101
V.3.3. Stress-strain behavior: yield strength Plastic behavior	105
a. Uni axial Compression analysis	105
Summary	109
Conclusion	110
References Ch. V	111
Chapitre VI ‘ATOMISTIC SIMULATION STUDY OF MECHANICAL DEFORMATION IN TERNARY ALUMINUM PHASES’	115
Résumé	116
Abstract	117
Introduction	118
VI.1. Materials and methods	122
VI.1.1. Ternary Al-Mg-Si system (6XXX series)	122
VI.1.2. INTERACTION POTENTIALS : MEAM potentials	124
VI.2. MOLECULAR DYNAMICS SIMULATION PROCEDURE	125
VI.3. RESULTS & DISCUSSION	127
a. Microstructural evolution of Al-Mg-Si phases	127
b. Radial Distribution Function (RDF)	129
c. Uni axial Compression analysis	131
Summary	135
Conclusion	136
References Ch. VI	137
Conclusions générale	140
Productions scientifique	143

Liste des Figures

Fig. I. 1 : Différents types d'alliage d'Al utilisés dans la construction d'un avion [4].	17
Fig. I. 2: Diagramme de phase du système Al-Si [29, 30].	22
Fig. I. 3: Diagramme des phases du système Al-Mg [37, 38].	23
Fig. I. 4: Diagramme d'équilibre ternaire Al-Mg-Si [46].	25
Fig. II. 1: Principe de l'algorithme de Verlet.	38
Fig. II. 2: Schéma représentant des Conditions aux Limites Périodiques en dynamique moléculaire d'une boîte cubique.	41
Fig. II. 3: Organigramme de la hiérarchie d'une simulation de dynamique moléculaire.	47
Fig. III. 1: Example of a read-data file to simulate an Al/Mg alloys.	57
Fig. III. 2: EAM potential file for Al/Mg alloy.	58
Fig. III. 3: AlMgSi.meam parameter file for Al/Mg/Si alloys.	59
Fig. III. 4: MEAM library.meam file for Al/Mg/Si alloys.	59
Fig. III. 5: Example of Dump file.	63
Fig. III. 6: Example of log.lammps file after running a simulation.	64
Fig. III. 7: Visualization Electronic and Structural Analysis-VESTA- program window screenshot.	64
Fig. III. 8: Open Visualization Tool -Ovito- program window screenshot.	65
Fig. III. 9: Workflow for running atomistic simulations.	65
Fig. IV. 1: Cell structures model of pure Aluminum as illustrated using VESTA [19].	72
Fig. IV. 2: Schematic describe the bulk modulus.	75
Fig. IV. 3: Atomic structure of pure Aluminum: (a) represents the structure before the deformation, (b) after the deformation.	77
Fig. IV. 4: Stress-strain graph established according to the measurements made during the deformation	78
Fig. IV. 5: Radial distribution function of pure aluminum in function of the distance between two atoms calculated in molecular dynamics by EAM potential (red) and Leonard-Jones (black).	80
Fig. V. 1: The Al-Mg binary phase diagram [22].	94
Fig. V. 2: Cell structures models of Al/Mg phases as illustrated using Vesta [20].	95
Fig. V.3: Representation of Periodic Boundary Conditions (PBC) in 3D captured in VESTA [20].	99
Fig. V. 4: 3-D reconstruction showing Nano scaled Al/Mg binary phase simulated.	101
Fig. V. 5: 3-D Atomic structure of Al/Mg phases after the deformation. (Mg atoms are plotted in mallow and Al atoms in blue).	101
Fig. V. 6: Schematic illustration of RDF and interatomic distances r . The distribution peaks at distances separating pairs of atoms; peak areas are proportional to the number of atoms at those distances [47].	102
Fig. V. 7: The total Radial Distribution Function (RDF) of Al-Mg phases for different compositions before and after the compression deformation.	103
Fig. V. 8: Change in interatomic distance with increasing Mg concentration before and after compression.	104
Fig. V. 9: Stress-strain curves for Al-Mg phases under uniaxial compressive strain applied along the x direction for four different alloys, measured at same values of strain. Red: β -Al ₃ Mg ₂ , blue: ϵ -Al ₃₀ Mg ₂₃ , black: Al ₁ Mg ₁ and green: γ -Al ₁₂ Mg ₁₇ .	106
Fig. V. 10: Stress-strain curves for Al-Mg phases under uniaxial compressive strain applied along the y and z directions, measured at same values of strain.	106
Fig. V. 11: Effect of Mg concentration on: (a) Young's modulus and (b) elasticity limit.	108
Fig. VI. 1: The Al-Mg-Si ternary phase diagram [10].	122
Fig. VI. 2: Sequence of precipitation found for Al-Mg-Si alloys.	122
Fig. VI. 3: Structural unit cell models of metastable precipitates in Al-Mg-Si alloys drawn to the same relative scale, as illustrated using VESTA [9]. (a) β -Al ₃ Mg ₂ Si ₆ phase, (b) U2-Al ₄ Mg ₄ Si ₄ phase, (c) GP-AlMg ₄ Si ₆ phase.	123
Fig. VI. 4: Periodic boundary conditions in 3D captured in VESTA [9]. (Mg atoms are plotted in purple, Al in blue & Si atoms in yellow).	126
Fig. VI. 5: 3-D reconstruction showing Nano scaled structure of β -Al ₃ Mg ₂ Si ₆ ternary phase simulated before (a) and after (b) deformation.	127
Fig. VI. 6 : 3-D reconstruction showing Nano scaled structure of GP-AlMg ₄ Si ₆ ternary phase simulated before (a) and after (b) deformation.	128

Fig. VI. 7: 3-D reconstruction showing Nano scaled structure of U2-Al ₄ Mg ₄ Si ₄ ternary phase simulated before and after deformation.	128
Fig. VI. 8: The total Radial Distribution Function (RDF) for Al-Mg-Si phases before and after compression deformation. (a) β -Al ₃ Mg ₂ Si ₆ phase, (b) U2-Al ₄ Mg ₄ Si ₄ phase, (c) GP-AlMg ₄ Si ₆ phase.	129
Fig. VI. 9: Change in the total interatomic distance before and after compression for each phase.	131
Fig. VI. 10: Stress-strain curves for Al-Mg-Si phases under uniaxial compressive strain along the y and z directions, measured at the same values of strain.	132
Fig. VI. 11: Stress-strain curves for Al-Mg-Si phases under uniaxial compressive strain applied along the x direction for three different phases, measured at same values of strain. Red: β -Al ₃ Mg ₂ Si ₆ , Green: GP-AlMg ₄ Si ₆ , and blue: U2-Al ₄ Mg ₄ Si ₄	132
Fig. VI. 12: Elasticity limit & Young's modulus for each ternary phase.	133

Liste des Tableaux

Tableau I. 1: Propriété physiques de l'Aluminium pur [6,7].....	18
Tableau I. 2 : Propriétés mécaniques de l'Aluminium pur [8].	18
Tableau I. 3: Désignation des séries principales des alliages d'Aluminium [11, 12].....	19
Tableau I. 4: Données cristallographique des phases du système binaire Al-Si.....	22
Tableau I. 5: Données cristallographique des phases des alliages Al-Mg.....	24
Tableau I. 6: Données cristallographique des phases des alliages Al-Mg-Si.	25
Table III. 1: Units « métal » in the LAMMPS code.	66
Table IV. 1: Identity card of pure Aluminum [4].	72
Table IV. 2: Percentages of each structure after deformation.	77
Table IV. 3: The bulk modulus and the pressure of rupture for pure aluminum.	79
Table IV. 4: Distances interatomic obtained from the FDRs of the system Al-Al.	80
Table V. 1: Weight percentage and chemical composition of each structure of simulated Al-Mg phase (in wt.%).	95
Table V. 2: Crystal structure data for Al/Mg intermetallic compounds.	95
Table V. 3: Set of the EAM potential parameters for single elements Al and Mg.....	97
Table V. 4: Simulated and experimental interatomic distances r for each structure.	104
Table V. 5: Elasticity limit and Young's modulus of the Al-Mg phases measured in this work compared to published values for Al-Mg compiled from the literature.	107
Table V. 6: Ultimate strength for Al/Mg phases after deformation applied.....	108
Table VI. 1: Weight percentage and chemical composition of each structure of simulated Al-Mg-Si phase (in wt.%).	123
Table VI. 2: Crystal structure data for Al-Mg-Si intermetallic compounds.	123
Table VI. 3: MEAM potential parameters for single elements Al, Mg and Si.....	124
Table VI. 4: Simulated interatomic distances r for each structure before and after compression.	130
Table VI. 5: Elasticity limit and Young's modulus of the Al-Mg-Si phases.	133
Table VI. 6: Ultimate strength for Al/Mg/Si phases after compression.	134

Introduction générale

Ces dernières années, un usage considérable de grandes simulations numériques pour étudier divers aspects de la dynamique moléculaire dans les solides, les liquides et les gaz. L'arrangement atomique ou la structure cristalline d'un matériau est important pour déterminer le comportement et les propriétés d'un matériau solide.

Les matériaux et les métaux en particulier prennent une place importante dans tout développement industriel ou progrès technologique. Vu les exigences industriels, plusieurs programmes de recherches sont en cours pour développer d'autres matériaux plus performants et moins coûteux tels que les composites, les céramiques, les polymères... etc., mais les alliages métalliques restent toujours très demandés, parce que ses caractéristiques s'améliorent au fur et à mesure grâce aux travaux de recherche.

L'Aluminium est un élément clé dans de nombreux aspects de notre vie. Il est le deuxième métal largement utilisé en raison de ses propriétés chimiques, physiques et mécaniques souhaitables et il représente une catégorie importante de matériaux technologiques. Sa combinaison unique de propriétés le rend un élément essentiel de la vie moderne et idéal pour une gamme presque infinie d'applications. Ces propriétés ont également conduit à l'association de l'Aluminium et de ses alliages avec le transport, en particulier avec les avions et les véhicules spatiaux, la construction et le bâtiment, les conteneurs et les lignes de transmission électrique. Les alliages à base d'Aluminium ont été l'objet de plusieurs travaux de recherches scientifiques. Ils peuvent généralement être classés comme alliages de corroyage et alliages de fonderie. Les alliages de fonderie d'Aluminium constituent un groupe de matériaux moulés qui, en termes de tonnage, se classe au deuxième rang après les pièces moulées en métaux ferreux. Alors que, l'ajout d'éléments d'addition avec des traitements thermiques adéquats provoquent la précipitation d'un certain nombre de phases dans la matrice. Les propriétés de l'alliage sont améliorées par comparaison à l'aluminium pur. Notons qu'il existe plusieurs familles d'alliages d'aluminium corroyés qui diffèrent par leurs principaux éléments d'addition ; Al-Cu (série 2xxx), Al-Mn (série 3xxx), Al-Si (série 4xxx), Al-Mg (série 5xxx), Al-Mg-Si (série 6xxx) et les alliages Al-Mg-Zn (série 7xxx).

Le défi majeur de la métallurgie et de la physique des matériaux modernes est l'amélioration des propriétés des matériaux. L'augmentation des caractéristiques physico-chimiques des alliages d'aluminium reste un défi pour les nouvelles générations de structures à faible poids.

La création de nouvelles structures légères permet de préserver les ressources environnementales, comme dans l'industrie aéronautique où le gain de poids a un impact direct sur la consommation de carburant. Les voies traditionnelles pour le renforcement des alliages d'Aluminium sont le durcissement par solution solide, le durcissement par précipitation et le durcissement par déformation. L'ajout d'éléments d'addition favorise la précipitation des nouvelles phases durcissantes à l'état solide qui jouent un rôle très important dans l'amélioration de ses propriétés mécaniques ; par conséquent, la description générale et la compréhension de la cinétique des transformations de phases dans les alliages d'Aluminium demeurent une nécessité scientifique.

Le comportement mécanique d'un alliage donné, c'est-à-dire la résistance, la ductilité et la qualité de l'alliage, sont généralement influencé par la composition chimique de l'alliage et les conditions de traitement thermique qui ont pu être appliquées, par conséquent, la compréhension des divers aspects de transformations de phases est indispensable.

Dans notre étude, la méthode de la Dynamique Moléculaire (DM) est appliquée pour calculer les propriétés mécaniques des alliages d'Aluminium. Dans ce contexte, les simulations atomistiques sont un outil de choix pour étudier les propriétés structurales, dynamiques et physiques des alliages d'Aluminium. La Dynamique Moléculaire permet de simuler, à partir des lois de la mécanique classique, les trajectoires des atomes et donne l'évolution d'un système au cours du temps. Une résolution numérique des équations classiques du mouvement est utilisée pour calculer l'énergie du système le long de son parcours sur la surface de potentiel du système.

Le succès des simulations atomistiques est lié à la description des interactions interatomiques. Ainsi, les interactions mutuelles entre les atomes dans un système d'atome peuvent être décrites par une fonction d'énergie potentielle "Potentiel". Parallèlement, un certain nombre de méthodes de description des liaisons interatomiques entre les atomes, prenant en compte le caractère à N corps de la liaison chimique dans les systèmes métalliques, ont été développées depuis une vingtaine d'années, comme l'approche de type "atome entouré" (EAM: Embedded Atom Method), (MEAM : Modified Embedded Atom Method) et Lennard-Jones utilisées dans cet étude.

Ensuite, à partir de ces interactions, les simulations des structures atomiques du système d'alliages d'Aluminium sous différentes contraintes seront réalisées à l'aide de la dynamique

moléculaire. Cette méthode permet d'accéder à la trajectoire du système, c'est-à-dire l'évolution des positions et des vitesses des atomes au cours du temps, à partir desquelles il est possible d'extraire les propriétés souhaitées, qui sont l'objectif essentiel de ce travail.

Dans la présente thèse de doctorat, «**Simulation de l'évolution microstructurale des alliages d'Aluminium par la méthode de la dynamique moléculaire**», nous nous sommes intéressés à l'étude, aux états bruts sous différents déformation, de l'effet du Magnésium (Mg) et Silicium (Si) sur la microstructure, les transformations de phases et les propriétés mécaniques des alliages binaires Al-Mg et ternaires Al-Mg-Si qui font partie à la série 5xxx et 6xxx sous des déformations plastique. Afin de pouvoir relier la composition et l'évolution structurale aux propriétés mécaniques de ces alliages. Par conséquent, nous étudions les courbes de contrainte-déformation et les structures déformées à différentes compositions en utilisant comme modélisation la méthode de dynamique moléculaire, afin d'étudier les effets de la composition sur ses propriétés mécaniques de compression et ses mécanismes de rupture, en utilisant le logiciel LAMMPS (Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator). C'est un code MD prend généralement un fichier de coordonnées atomiques d'entrée (input files) et calcule les coordonnées de ces atomes en fonction des potentiels, des conditions aux limites et des forces appliquées. On va présenter ci-dessous les caractéristiques spécifiques du code MD que nous avons utilisé, puis préciser ce qui doit être fait pour écrire un code adapté à nos problèmes de déformation. Pour mener à bien cette étude et pour la visualisation des résultats de nos simulations on a utilisé VESTA et Ovito.

Structure de la thèse

Cette thèse de doctorat a été rédigée sous forme d'un ensemble de publications scientifiques qui ont été publiées ou soumises au moment de la soumission de la thèse.

En plus d'une introduction générale, où on présente l'objectif de notre travail et d'une conclusion, où on résume l'essentiel des résultats obtenus, ce travail de thèse comprend deux grandes parties : la première partie est réservée à une étude bibliographique sur les alliages d'Aluminium, la dynamique moléculaire, et les outils de modélisation, tandis que la deuxième partie est réservée à la simulation de ces matériaux et à l'interprétation des résultats, elle s'articule donc en six chapitres.

Chapitre I : LES ALLIAGES D'ALUMINIUM

Dans ce chapitre, nous présentons les concepts nécessaires à la compréhension de nos résultats. C'est un aperçu général sur les alliages à base d'Aluminium et leurs différentes propriétés. On se focalise sur les séries 4xxx, 5xxx et 6xxx, qui ont le magnésium et le silicium comme principaux éléments d'addition, leurs domaines d'applications, les différents éléments d'addition avec une présentation du domaine de phases d'équilibres pour chaque série. Il est également consacré à l'influence des différents paramètres sur la précipitation dans ces alliages et surtout une présentation des phases métastables des alliages étudiés.

Chapitre II : METHODES DE SIMULATION : DYNAMIQUE MOLECULAIRE

Nous présentons une introduction aux techniques de simulation atomistique et de la dynamique moléculaire (équations du mouvement, potentiels interatomiques, etc.), ainsi que le concept des conditions aux limites périodiques. L'algorithme de Verlet est discuté ainsi que le concept de la dynamique moléculaire à température constante (NVT) et à énergie constante (NVE). Une variété de potentiels empiriques sont également discutés, y compris le potentiel de pair Lennard-Jones ainsi que les potentiels de l'atome entouré (Embedded Atom Method) EAM et MEAM (Modified Embedded Atom Method), utilisés pour simuler des métaux tels que les alliages d'Aluminium.

Chapitre III : OUTILS DE MODELISATION ET VISUALISATION

Nous passons en revue les différentes techniques que nous avons utilisées pour caractériser les propriétés structurales, dynamiques et physiques des alliages étudiés.

Dans ce chapitre, nous tentons de décrire les outils de la simulation informatique, logiciels programmation et ses langages. Son but est de décrire d'une manière délicate les scripts d'entrée

et de sortie du logiciel LAMMPS (Large Scale Atomic Molecular Massively Parallel Simulator) qui a pour but d'expliquer en quelques pages les commandes pour des simulations de dynamique moléculaire (MD), ainsi que les divers outils de visualisation qui sont actuellement utilisés pour capturer les résultats de la simulation.

Chapitre IV: “MODELING ALUMINUM USING MOLECULAR DYNAMICS SIMULATION”

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats d'une simulation par dynamique moléculaire de l'Aluminium pur, par lequel nous cherchons à déterminer les propriétés mécaniques et microstructural de l'Aluminium pur, par des simulations à l'échelle atomique, on comparant les résultats de deux types de potentiels, le potentiel EAM et le potentiel Leonard Jones, pour voir le plus convenable pour prédire les propriétés de l'Aluminium pur et ses alliages pour nos prochaines simulations.

Chapitre V: “COMPRESSION BEHAVIOR OF Al-Mg PHASES, MOLECULAR DYNAMICS SIMULATION”

Dans ce chapitre, nous présentons les modifications existantes lors de l'addition du Magnésium (Mg) à l'aluminium pur, c'est-à-dire l'influence du Mg sur la cinétique de transformation de phase, l'effet du Mg sur les propriétés mécaniques et la microstructure des phases binaires étudiés, la pré-déformation, déformation, etc...

Chapitre VI “ATOMISTIC SIMULATION STUDY OF MECHANICAL DEFORMATION IN TERNARY ALUMINUM PHASES”

Ce chapitre décrit les équilibres de phase dans des phases ternaires d'Aluminium en vue de mieux connaître le rôle du Magnésium (Mg) et du Silicium (Si) sur les propriétés mécaniques de l'Aluminium.

Ces résultats, complétés par des essais de compression, ont permis de décrire ses alliages ternaires au niveau microstructurale, l'effet qui portera l'ajout du Mg et du Si sur les propriétés mécaniques lors d'une déformation élastique des phases étudiés.

Enfin, une **conclusion générale** reprend une synthèse des principaux résultats et apports de la thèse.

Chapitre I : LES ALLIAGES D'ALUMINIUM

Dans ce chapitre, nous présentons une revue bibliographique exposant une généralité sur les alliages d'Aluminium, et plus précisément, les alliages de la série 4xxx, 5xxx et 6xxx, dont le Magnésium (Mg) et le Silicium (Si) sont les principaux éléments d'addition.

Le but est de décrire d'une manière fine la métallurgie de ces alliages, leur composition, la précipitation des phases..., qui ayant un impact direct sur les propriétés physique des alliages d'Aluminium.

Introduction

Ce chapitre présente quelques notions générales sur les alliages d'Al, les propriétés mécaniques, les traitements thermiques et leurs domaines d'application. L'Aluminium est un élément du troisième groupe de classification de Mendeleïev, est présent en grande quantité dans la croûte terrestre, avec une masse de minerai représentant 8%, après l'oxygène (46.71%) et le Silicium (27.69%), et devant le fer (5.05%).

L'Aluminium pur possède des propriétés mécaniques très réduites et insuffisants pour son utilisation dans un bon nombre d'applications structurales, il est léger, ductile et il résiste à la corrosion. Il présente aussi une très bonne conductivité thermique et électrique [1]. L'Aluminium industriel contient généralement 0.5% d'impuretés (principalement Fer (Fe) et Silicium (Si)) [2]. Ces impuretés ont différents effets sur les propriétés électriques et mécaniques. Pour obtenir des matériaux ayant des caractéristiques précises, habituellement les métaux obtenus par alliage ont des meilleures propriétés mécaniques et ils résistent mieux aux contraintes extérieures. Les matériaux en général et les métaux en particulier prennent une place importante dans tout développement industriel ou progrès technologique. Vu les exigences de l'industrie moderne, nombreux programmes de recherches sont en route pour le développement d'autres matériaux plus performants et moins coûteux tels que les composites, les céramiques, les polymères, etc...

Les propriétés d'aluminium également peuvent être améliorées en ajoutant des éléments d'additions tels que le Mg, Si, Mn, Cu,.... Ces types d'alliages jouent un rôle très important dans l'industrie et leur utilisation dépend de leur disponibilité, leur coût, leur facilité de mise en forme et de leur compatibilité avec l'environnement (propriétés mécaniques, physiques et chimiques).

I.1. L'Aluminium et ses alliages

I.1.1. Généralités

Bien que, en tonnage, la production d'Aluminium ne représente qu'un peu plus de 2% de celles des aciers, ce métal arrive en seconde position en ce qui concerne la production et l'utilisation des matériaux métalliques. Il offre une excellente conductivité électrique pour un poids inférieur à celui du cuivre. C'est pour cela qu'on le retrouve de plus en plus pour les lignes à haute tension [3].

Les alliages d'Aluminium sont utilisés pour de multiples applications aussi bien dans le domaine de l'aéronautique que dans celui de l'industrie automobile.

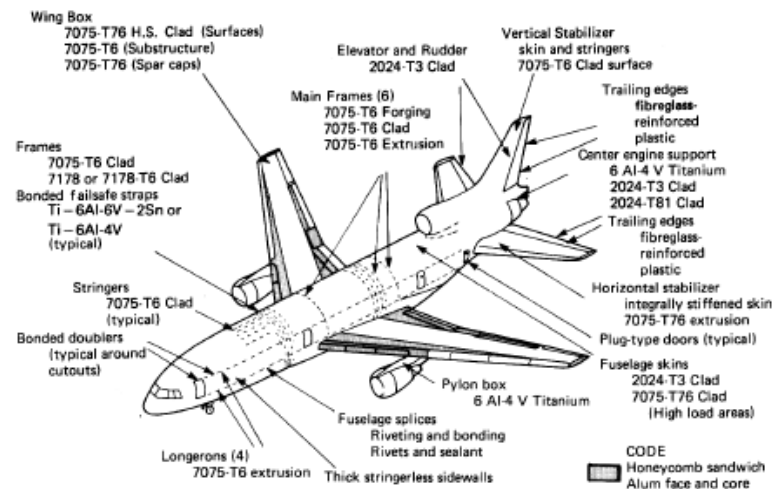


Fig. I. 1 : Différents types d'alliage d'Al utilisés dans la construction d'un avion [4].

L'Aluminium présente de nombreux avantages qui en font un matériau de choix pour une variété d'applications. Les principaux atouts de l'aluminium sont sa légèreté, sa conductivité thermique, sa conductivité électrique, sa tenue à la corrosion, son aptitude aux traitements de surface ainsi que sa facilité de mise en œuvre [2].

I.1.2. Propriétés d'Aluminium

a. Propriétés physiques

En 2018, la production mondiale d'Aluminium a atteint 2,05 tonnes par seconde soit 64,336 millions de tonnes par an (compteur) selon 'The International Aluminium Institute' <http://www.world-aluminium.org/statistics/>, faisant de l'Aluminium l'alliage métallique le plus utilisé dans le monde après l'acier. De plus, la variété d'alliages d'aluminium et de traitements thermiques permet la fabrication de matériaux correspondant précisément aux attentes de chaque domaine d'application (matériaux de constructions, transports, câbles, emballage...).

L'Aluminium est un métal blanc argenté très malléable, de masse volumique $2,7 \text{ g/cm}^3$, possède une température de fusion et d'ébullition de l'ordre de 660°C et 2056°C , respectivement. Il exhibe une structure cubique à faces centrées (CFC) dont le paramètre de maille, à 21°C , est $4,04912 \text{ \AA}$. Cette structure est la seule forme stable dans l'état solide [5].

Tableau I.1 présente les principales caractéristiques physiques de l'Aluminium pur.

Tableau I. 1: Propriété physiques de l'Aluminium pur [6,7].

Propriétés	Unités	Valeur
Symbole	-	Al
Numéro atomique	-	13
Structure	-	FCC
Masse atomique	g/mole	26,28
Masse volumique	Kg.m ⁻³	2698
Paramètre de maille	Å	4,04912
Point de fusion	°C	660
Point d'ébullition	°C	2056
Résistivité électrique K		0,6 10 ⁻³
Conductivité thermique	W.m ⁻¹ .K ⁻¹	237

b. Propriétés mécaniques

L'Aluminium pur, à l'état recuit, possède des propriétés mécaniques faibles (résistance mécanique, limite d'élasticité, l'allongement et le module de Young), on peut toutefois améliorer considérablement ces propriétés par traitements thermiques et addition d'éléments d'alliages.

Tableau I. 2 : Propriétés mécaniques de l'Aluminium pur [8].

Propriétés	Valeur	Unités
Module de Young	68	GPa
Coefficient de poisson	0,345	-

c. Désignation numérique des alliages d'Al

L'Aluminium n'est généralement pas utilisé pur, des éléments d'alliages y sont ajoutés en petite quantité (de 1 à 7 %) pour lui donner les propriétés désirées [9] : propriétés mécaniques, aptitude à la mise en forme, tenue à la corrosion, soudabilité, etc...

La nomenclature généralement utilisée pour désigner les alliages d'Aluminium a été mise en place par 'Aluminum Association' en 1954, utilisant une série de quatre chiffres pour désigner un alliage [10].

d. Signification des désignations

- Le premier chiffre indique l'élément d'alliage principal.
- Le deuxième chiffre indique une variante de l'alliage d'origine. Souvent, il s'agit d'une gamme plus petite dans un ou plusieurs éléments de l'alliage.

- Les troisième et quatrième sont des numéros d'ordre et serve à identifier l'alliage.

Le tableau ci-dessous présente les différentes familles d'alliage d'Aluminium ainsi que leurs principaux éléments d'addition et les phases principaux présentes pour chaque série.

Tableau I. 3: Désignation des séries principales des alliages d'Aluminium [11, 12].

Série	Désignation	Principaux éléments d'alliage	Phases principales
Série 1000	1xxx	99% d'Al au minimum	
Série 2000	2xxx	Cu	Al ₂ Cu-Al ₂ CuMg
Série 3000	3xxx	Mn (manganèse)	Al ₆ Mn
Série 4000	4xxx	Silicium (Si)	-
Série 5000	5xxx	Magnésium (Mg)	Al ₃ Mg ₂ -Al ₁₇ Mg ₁₂ -Al ₃₀ Mg ₂₃
Série 6000	6xxx	Magnésium (Mg), Silicium (Si)	Mg ₂ Si
Série 7000	7xxx	Zinc (Zn)	MgZn ₂
Série 8000	8xxx	Lithium (Li)	-

Il existe environ 310 types alliages d'Aluminium [13], les alliages d'Aluminium les plus répandus sont Al-Cu, Al-Mg, Al-Si, Al-Cu-Mg-Si, ainsi que Al-Mg-Si.

Plusieurs ouvrages détaillent l'effet de chaque élément d'addition sur les propriétés des alliages d'Al ainsi que les traitements thermiques les mieux adaptés pour chacun d'entre eux et leurs domaines d'applications respectifs [9, 14].

Suivant l'aptitude au durcissement par traitement thermique, les alliages d'aluminium sont classés en deux types : Alliages sans durcissement structural (non trempant) et alliages avec durcissement structural (trempant). Les alliages sans durcissement structural sont les alliages à base de Mn et Mg tels que ; (1xxx) l'Aluminium pur, le groupe d'Al-Mn (3xxx), le groupe d'Al-Si (4xxx) et le groupe d'Al-Mg (5xxx) [15]. Les alliages qui répondent au durcissement structural par précipitation sont les alliages de la série 2xxx l'Al-Cu-(Mg), la série 6xxx Al-(Cu)-Mg-Si et la série 7xxx Al-(Cu)-Mg-Zn [16].

En général, les traitements thermiques en métallurgie sont : la trempe, le revenu (vieillissement), le recuit (maturation) : ce sont des opérations de chauffage suivi d'un refroidissement qui ont pour but de modifier la nature et la répartition des constituants d'un matériau [17]. On peut diviser les traitements thermiques appliqués aux alliages d'Aluminium en trois types : traitements d'homogénéisations, traitements de durcissement structural et traitements d'adoucissement [15].

I.1.3. Influence des éléments d'addition

La résistance mécanique de l'Al pur est relativement faible et interdit son emploi pour certaines applications. Cette résistance mécanique peut être notablement augmentée par l'addition d'autres métaux qui peuvent être alliés avec l'Aluminium, formant ainsi des alliages.

Cette différence entre les alliages est due à l'élément d'addition principal, quelle que soit sa teneur. L'addition d'autres éléments secondaires va aussi influencer les caractéristiques de l'alliage. Il y a enfin des éléments présents dans l'alliage sans qu'ils aient été ajoutés volontairement ; ce sont les impuretés dont les plus importantes sont le fer et le silicium, et dont il faut contrôler précisément la teneur pour certaines utilisations car leur influence peut être défavorable. Tous les éléments jouent, par leur nature et leur teneur, sur plusieurs propriétés de l'alliage comme :

- Les caractéristiques mécaniques (charge de rupture R_m , limite élastique σ_e , la dureté etc...),
- La masse volumique,
- Les conductivités électrique et thermique,
- La résistance à la corrosion,
- L'aptitude à la déformation,

Pour diverses raisons (coût, disponibilité et difficultés de mise en œuvre) la métallurgie actuelle n'utilise que cinq d'entre eux. Le cuivre (Cu), le manganèse (Mn), le magnésium (Mg), le silicium (Si) et le zinc (Zn) [18-19]. Ces éléments sont à la base des 7 familles d'alliages que l'on trouve actuellement. L'influence d'un élément sur un alliage varie bien évidemment en fonction de sa nature et de sa quantité. Dans ce travail on s'intéresse à deux éléments d'addition : le Magnésium (Mg) et le Silicium (Si).

a. Magnésium (Mg)

Le Magnésium (Mg), lorsqu'il est combiné avec l'Aluminium augmente la dureté, la résistance et améliore également les propriétés mécaniques des alliages lors des traitements thermiques en favorisant la formation des phases, Al_2Mg , Al_3Mg_2 , Mg_2Si .

Finalement, selon Morgan [20] l'ajout du Magnésium peut augmenter la micro dureté de la matrice d'Aluminium, et la résistance à la déformation [21].

b. Silicium (Si)

Le silicium a la particularité d'augmenter les caractéristiques mécaniques, la fluidité, et les caractéristiques de l'écoulement du métal liquide proportionnellement à sa teneur. L'effet le plus remarquable du silicium dans les alliages d'aluminium, c'est l'amélioration des caractéristiques de mise en forme (moulage) [22]. La composition la plus utilisée dans les alliages d'aluminium de fonderie est d'ailleurs celle de la famille Al-Si.

I.1.4. Les séries d'alliages d'Aluminium

Les progrès permanents de la métallurgie de l'Aluminium ont abouti à proposer une gamme étendue de nuances, bien adaptée aux utilisations envisagées [9]. Tellement nombreux, les alliages d'aluminium sont regroupés conformément à une nomenclature rigoureuse et complexe.

On est principalement intéressé aux séries 4000, 5000 et 6000 dont le Si, le Mg et le Si, Mg, respectivement, sont les principaux éléments d'addition [23].

a. Série Al/Si 4xxx : propriétés et comportement

- Système Aluminium-Silicium

La série Aluminium-Silicium (Al-Si) a un large éventail d'applications dans l'industrie automobile, aérospatiale et dans les industries mécaniques car elle présente un rapport résistance/poids élevé, une grande résistance à l'usure, une faible densité, ainsi que leur capacité à être coulées dans des formes complexes [24]. Le silicium améliore significativement la coulabilité (fluidité, alimentation des métaux) [32], la résistance à la corrosion et à l'usure [28] et contribue à réduire la densité et le coefficient de dilatation thermique des alliages d'Aluminium [27].

Les alliages Al-Si sont désignés alliages de la série 4xxx selon le système de désignation des alliages corroyés de l'Aluminum Association. Le Silicium est l'élément d'alliage principal et le plus important dans ses alliages. La teneur en Si influence les propriétés de traction, tandis que son rôle devient plus important en l'absence d'éléments d'alliage (par ex. Cu, Mg et Fe) [25]. L'augmentation de la teneur en Si de 7 % à 12 % en poids dans un élément faiblement allié Al-Si en alliage coulé, conduit à une amélioration de la limite d'élasticité et de la résistance à la traction pouvant atteindre 22 et 25 MPa à 250 °C respectivement [26].

- *Diagramme d'équilibre des phases du système binaire Al/Si*

Le système Al-Si forme un eutectique simple avec une solubilité à l'état solide limitée des deux éléments l'un dans l'autre. Le point eutectique est situé à une concentration de 11,7 % poids Si et à une température de 577 °C. Comme le montre le diagramme de phase du système Al-Si (Fig. I. 2). À ce point E, la phase liquide est en équilibre avec deux phases solides.

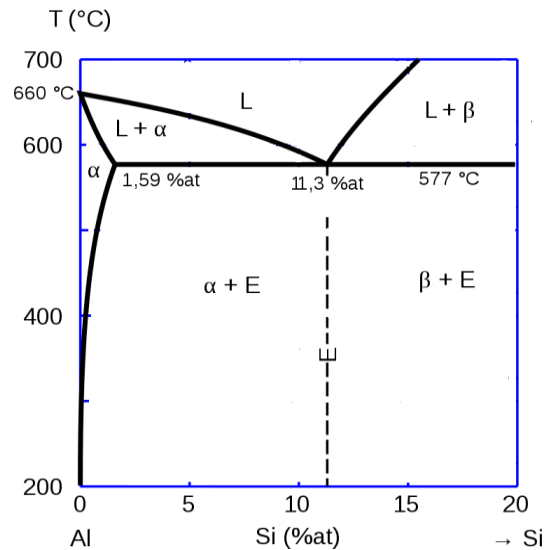


Fig. I. 2: Diagramme de phase du système Al-Si [29, 30].

La teneur en silicium (Si) dans les alliages Al-Si peut varier de 2 à 25 % en poids. Leurs propriétés mécaniques dépendent principalement de la morphologie et de la distribution des phases primaires et eutectiques Al-Si. Un certain nombre de phases intermétalliques ont été identifiées dans ces alliages. Les phases les plus importantes sont α -Al₁₅(Fe, Mn)₃Si₂ et β -Al₅FeSi. La fig. I. 2, montre les phases dans les alliages Al-Si en fonction de la concentration en Si.

- *Données cristallographique des phases du système binaire Al-Si*

Les alliages populaires à base d'Al-Si et leurs phases sont des alliages à base d'Al et Si. Leurs caractéristiques cristallographiques sont présentées dans le tableau ci-dessus.

Tableau I. 4: Données cristallographique des phases du système binaire Al-Si.

Phases	Système cristallin	Paramètre de maille(Å)			Références
		a	b	c	
α -Al	CFC	0,4049			[31]
α -Al ₁₅ (Fe,Mn) ₃ Si ₂	Hexagonal	12,56	12,56	12,56	[32]
β -Al ₅ FeSi	Monoclinique	5,792	1,2273	4,313	[33]
Si	CFC	5,43035			[34]

b. Série Al-Mg 5xxx : propriétés et comportements

- Système Aluminium-Magnésium

Le système binaire Aluminium-Magnésium (Al-Mg) est un système à solution solide type Al-Mg [35], avec Mg principal élément d'addition, ce sont désignés alliages 5xxx selon l'Aluminum Association, et qui font partie de la catégorie des alliages d'Al à durcissement structural. Ses propriétés physiques se différencient par la quantité des éléments d'alliage et principalement par la teneur en Magnésium ajoutée [9,27,36]. En outre, avec l'augmentation de la teneur en Mg dans les alliages d'Al-Mg, la limite d'élasticité et la résistance à la traction peuvent augmenter considérablement.

- Diagramme d'équilibre des phases du système Al-Mg

Dans la Fig. I. 3, nous présentons le diagramme de phase du système binaire Al-Mg. Ce diagramme est particulièrement simple puisque le système Al-Mg est connu pour ne pas former de composés stables.

Une description du diagramme de phase Al-Mg, comme illustré à la Fig. I. 3. Il y a cinq phases solides d'équilibre, la solution solide CFC (α -Al) riche en Al, la solution solide HCP (α -Mg) riche en Mg, ϵ , β et γ désignent des composés du système binaire Al-Mg ; tandis que le composé β de la stœchiométrie approximative Al_3Mg_2 , le composé γ du composé $Al_{12}Mg_{17}$ et le composé ϵ de la stœchiométrie $Al_{30}Mg_{23}$.

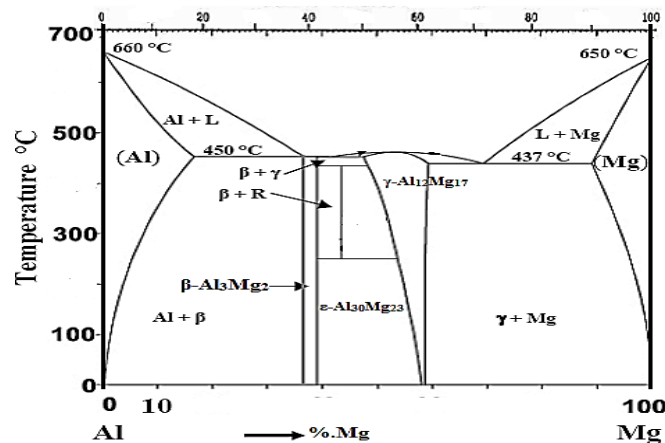


Fig. I. 3: Diagramme des phases du système Al-Mg [37, 38].

- Données cristallographique des phases du système Al-Mg

Les détails de chaque phase constituant dans le système d'alliages Al-Mg sont représentées dans le tableau suivant.

Tableau I. 5: Données cristallographique des phases des alliages Al-Mg.

Phases	Système cristallin	Paramètre de maille (nm)			Références
		a	b	c	
α -Al	CFC	0,4049			[31]
β -Al ₃ Mg ₂	CFC	2,8300	2,8300	2,8300	[39-41]
ϵ -Al ₃₀ Mg ₂₃	CFC	1,2825	1,2825	2,1748	[39-41]
γ -Al ₁₂ Mg ₁₇	CS	1,0544	1,0544	1,0544	[39-41]
Mg	Hcp	3,2094		5,2112	[42]

Il convient de souligner que le Mg [43], et le Si [43-44], peuvent avoir un impact positif sur les propriétés mécaniques des alliages d'Aluminium.

En outre, l'addition du Si et du Mg dans la matrice α -Al peut améliorer considérablement les propriétés physiques des alliages Al-Si-Cu-Mg [45].

c. Série Al-Mg-Si 6xxx : propriétés et comportements

- *Système Aluminium-Magnésium-Silicium*

Le système ternaire Aluminium-Silicium-Magnésium (Al-Mg-Si) est un système à solution solide type Al-Mg₂Si, série 6xxx qui fait partie de la catégorie des alliages corroyés à durcissement structural et qui se différencient principalement par leur teneur en Mg et Si.

Cette famille d'alliage à une grande importance industrielle, dans l'industrie d'automobiles et les applications aérospatiales [15], du fait de leur bon compromis densité-propriétés mécaniques. Ce qui explique en partie la large utilisation de ce matériau dans diverses industries.

Les éléments d'addition majoritaires de cette série sont le Magnésium et le Silicium et parfois un peu de cuivre, de chrome ou de manganèse, qui précipitent lors du traitement thermique de revenu en phases nanométriques responsables du durcissement de l'alliage.

- *Diagramme d'équilibre des phases du système Al-Mg-Si*

Le diagramme d'équilibre de la fig. I. 4 est le diagramme ternaire Al-Mg-Si pour un rapport atomique Mg/Si= 2.

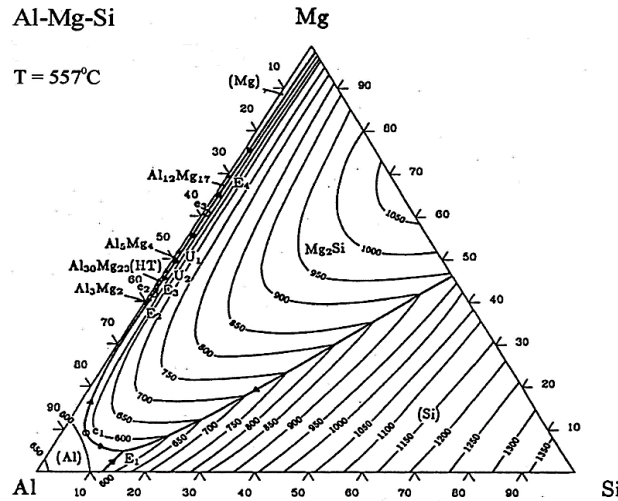


Fig. I. 4: Diagramme d'équilibre ternaire Al-Mg-Si [46].

- *Données cristallographique des phases du système Al-Mg-Si*

Tableau I.6 présente un aperçu sur des modèles des phases existant aux alliages Al-Mg-Si suivant le diagramme de phase présenté en dessous.

Tableau I. 6: Données cristallographique des phases des alliages Al-Mg-Si.

Phases	Composition	Structure	Lattice parameter (nm)			references
			a	B	c	
GP	$AlMg_4Si_6$	Monoclinique	1,48	0,405	0,648	[47, 48]
U2	$Al_4Mg_4Si_4$	Orthorhombique	0,675	0,405	0,794	[49,50]
β	$Al_3Mg_2Si_6$	CFC	0,639			[51]

I.1.5. Traitements thermiques

Les traitements thermiques n'ont pas comme seul but d'agir sur le niveau de résistance mécanique, ils sont susceptibles d'influencer un grand nombre d'autres propriétés parfois très importantes pour les utilisateurs. Dans la métallurgie des alliages d'Aluminium, la tendance est de définir des traitements thermiques vraiment spécifiques en vue d'améliorer une propriété donnée d'un alliage bien déterminé.

a. Durcissement structural

La résistance et la dureté de certains alliages d'Al peuvent être améliorées par une série de traitements thermiques. Cette série de traitements constitue un processus nommé durcissement structural [17].

Le durcissement structural se réalise à l'aide de trois traitements thermiques :

- La mise en solution.
- La trempe.
- Le revenu (vieillissement).

- *La mise en solution*

La mise en solution consiste à chauffer l'alliage à une température suffisamment élevée (température de fusion) afin de dissoudre, c'est-à-dire mettre en solution solide, les éléments d'addition présents dans l'alliage en phases dispersées. Cette étape permet de dissoudre toutes les phases ayant pu précipiter antérieurement dans l'alliage, ce qui contribue aussi à diminuer la dureté [52].

- *La trempe*

Après sa mise en solution, l'alliage doit être refroidi suffisamment rapidement pour maintenir à la température ambiante la solution solide. Aussitôt après la trempe, l'alliage est dit dans un état de trempe fraîche, il présente alors une résistance mécanique relativement faible mais une bonne plasticité.

L'objectif de la trempe est de préserver la solution solide formée à la température de traitement thermique de solution, par refroidissement rapide à des basses températures, généralement à la proximité de la température ambiante [17].

- *Maturation-revenu*

Après trempe, l'alliage durcit plus ou moins rapidement suivant sa composition par simple séjour à la température ambiante au bout d'un certain temps dépendant de la composition de l'alliage, en général quelques jours pour les alliages de la série 2xxx, une à quelques semaines pour les alliages de la série 6xxx, quelques mois pour les alliages de la série 7xxx, c'est la maturation ou vieillissement naturel.

C'est le traitement de revenu ou vieillissement naturel qui confère une microstructure différente de celle de la trempe et conduit à des caractéristiques supérieures, en particulier pour la limite d'élasticité.

Le durcissement structural a une importance primordiale dans la métallurgie des alliages d'Al car c'est le processus par excellence qui permet d'obtenir des niveaux élevés de résistance mécanique.

I.1.6. Techniques de caractérisation

Les essais mécaniques sont l'étape indispensable pour accéder aux grandeurs caractéristiques des matériaux, du module d'Young à la limite d'élasticité, en passant par la ténacité ou la résistance à la fatigue [52], et ce dans des conditions variables, par exemple de température ou de vitesse de sollicitation. Donc, pour tester ses caractéristiques et évaluer les performances des matériaux, ductilité, dureté, souplesse, ténacité, etc... [53]. Différents essais tels que l'essai de traction et de compression [54] sur les alliages d'Al ont été réalisés au cours de cette thèse. En outre, les résultats obtenus à l'issue de ces essais sont présentés, analysés et examinés plus en détails aux chapitres **IV**, **V** et **VI**.

a. Essai de traction et compression

Pour déterminer le comportement mécanique et mesurer le degré de résistance à la rupture d'un matériau, on applique des essais mécaniques. Cet essai destructif, pratiqué à température ambiante 20°C, consiste à soumettre une éprouvette à un effort de traction, progressivement croissant, généralement jusqu'à la rupture de l'éprouvette. Ce qui permet de déterminer de nombreuses grandeurs normalisées, comme la résistance à la rupture, la contrainte maximale, la limite d'élasticité, etc... [54].

A chaque incrément d'effort, la contrainte normale et la déformation de la barre sont portées sur une courbe. Cette opération est effectuée régulièrement jusqu'à la rupture du matériau. On obtient ainsi la courbe contrainte-déformation, qu'elle a généralement deux parties, partie élastique et partie plastique.

Les caractéristiques mécaniques qui peuvent être tirées de l'essai, traction et compression, sont :

- Limite élastique : σ_e
- Module d'élasticité ou module de Young : E .
- Résistance à la rupture : σ_r ou R_r .
- Contrainte maximale : σ_m ou R_m .

b. Essais de dureté et micro dureté

Les essais d'indentation évaluent la "dureté H " (Hardness en anglais), du matériau en mesurant la pression de contact pendant l'enfoncement d'un indenteur (pyramidal pour Vickers, conique ou sphérique pour Brinell). Elle est le rapport de la force appliquée (en Kgf) sur la surface de contact (en mm^2), c'est-à-dire la pression moyenne dans le contact [54].

Le principe est toujours identique : un pénétrateur indéformable laisse une empreinte dans le matériau à tester. On mesure les dimensions de l'empreinte et on en déduit la dureté.

Plusieurs types d'essais sont couramment utilisés, que soit pour la macro dureté ou micro dureté, qui s'effectue sous une charge de quelques grammes à quelques centaines de grammes, leurs principe est le même, ils ne diffèrent que par la forme de pénétrateur utilisé : essai Brinell, essai Rockwell, essai Shore et l'essai Vickers. Leur résultat donne un aperçu synthétique sur les propriétés mécaniques du matériau testé.

Conclusion

La caractérisation des alliages d'Aluminium a fait l'objet d'un grand nombre d'investigations et de publications. Dans ce chapitre nous avons présenté des généralités sur les alliages d'Aluminium. Nous nous intéressons plus particulièrement aux séries 4xxx, 5xxx et 6xxx dont le Magnésium (Mg) et le Silicium (Si) sont les principaux éléments d'addition. Nous avons décrit les propriétés structurales, dynamiques, mécaniques, les principales phases présentes dans chaque alliage et leurs diagrammes de phases.

Ensuite nous avons mis en avant l'apport des étapes du traitement thermique appliqué pour l'étude du comportement de ses alliages. De plus, les techniques de caractérisation mécaniques.

Compte tenu des avantages des alliages d'Aluminium, il est nécessaire de mieux comprendre la relation entre les mécanismes de durcissement et la microstructure, pour trouver un bon compromis entre la composition et les caractéristiques mécaniques, afin d'exploiter au mieux leurs potentiels.

Donc, dans la suite de ce document on fait appel à la simulation par dynamique moléculaire, qui vient en aide afin d'améliorer la compréhension des phénomènes physiques et chimiques mis en jeu lors des expériences.

Références Ch. I

- [1] C. Vargel, Propriétés générales de l'aluminium et de ses alliages, in Techniques de l'ingénieur, vol. M4661, 2005.
- [2] L. F. Mondolfo, Aluminum Alloys Structures and Properties, Butterworth, London, vol. 12, 1976, p. 1-3.
- [3] David R. Lide, CRC Handbook of Chemistry and Physics, CRC Press, 2009, 90e édition, p. 2804.
- [4] B. Dubost et P. Sainfort : Durcissement par précipitation des alliages d'aluminium corroyés. Dans les Techniques de l'Ingénieur. Editions T.I, 1991.
- [5] C. Vargel, le comportement de l'aluminium et de ses alliages, Dunod Paris, 1979.
- [6] J. Randolph Kissell, L. Robert Ferry, Aluminum structures a guide to their specifications and design second edition, John wiley & sons, New York, 1996, 18.
- [7] Metals handbook, Materials characterization, ASM International, vol. 10: 1310, 1986, p. 346.
- [8] D. Adenis, Précipitation dans les alliages légers industriels, Revue de l'aluminium 373, Avril 1969, pp.331-436.
- [9] J. E. Hatch, Aluminum: Properties and Physical Metallurgy, Ohio: Metals Park, 1984, pp.319.
- [10] The aluminum association, 1525 Wilson Boulevard, Arlington, VA 2220. Revised: April 2006.
- [11] L. F. Mondolfo, Aluminum Alloys, Structures and Properties, Butterworth, London, vol. 12, 1976, p. 14-18.
- [12] W. F. Miao, D. E. Laughlin, Effect of Cu content and presaging on precipitation characteristics in aluminum alloy 6022, Metall. Mater. Trans, A 31 (2), 2000, p. 361-371.
- [13] M. E. Redjaimia, 3^{ème} année génie mécanique CL, Université Mohamed Khider Biskra, 2008.
- [14] E. Romhanji, M. Popović, & S. Stanojević, Precipitation Processes in Al-Mg-(Mn,Cu) Type Alloy Sheets Evaluated Through Electrical Resistivity Variations, Journal of Nondestructive Evaluation, 2010, 29 (1): p. 43-48.
- [15] R. Develay, Propriétés de l'aluminium et des alliages d'aluminium corroyés. Techniques de l'Ingénieur, traité Matériaux métalliques, vol. M440, 1992, p. 2.

- [16] Nikolay A. Belov, Dmitry G. Eskin, Andrey A. Aksenov, Multicomponent Phase Diagrams: Applications for Commercial Aluminum Alloys, 1 juil. 2005, p.424.
- [17] R. Develay, technique l'ingénieur, Traité de métallurgie, Paris, vol. 240, 1994, p. 23.
- [18] N. Hackerman, E.S. Snaveley, Houston : NACE International, 1984, pp. 127–146
- [19] A.K. Gupta, D.J. Lloyd & S.A. Court, Precipitation hardening processes in an Al-0.4%Mg-1.3%Si-0.25%Fe Aluminum alloy, Materials Science and Engineering, A301, 2001, p. 140-146.
- [20] E.G. Morgan, Physical effects of variations in the composition of aluminum alloy LM24 to BS1490, Foundry Trade Journal, June 1982, p. 887-890.
- [21] H. CHABBA, D. DAFIR, Compression Behavior of Al-Mg Phases, Molecular Dynamics Simulation, International Journal of Engineering Research in Africa, 2020; 46:15-31.
- [22] J. Barralis, & M. Gérard, Précis De Métallurgie Élaboration, Structures-propriétés et Normalisation. 5e Édition ed. Paris: Afnor Nathan, 1990. Print. Collection Précis, p. 70-104, 125-127.
- [23] C. Vargel, Corrosion de l'aluminium, Paris : Dunod, (1999), p. 501. ISBN 2-100-04191-6.
- [24] I.J. Polmear, Metals Handbook, ASM, Metal Park, OH, vol. 2, 1979,p. 164.
- [25] F. Stadler, H. Antrekowitsch, W. Fragner, H. Kaufmann, & P. Uggowitzer, Effect of main alloying elements on strength of Al–Si foundry alloys at elevated temperatures, International Journal of Cast Metals Research, 25(4), 2012, p. 215-224.
- [26] F. Stadler et al., The Effect of Ni on the High-Temperature Strength of Al-Si Cast Alloys, Materials Science Forum, Vol. 690, 2011, pp. 274-277.
- [27] J. G. Kaufman and E. L. Rooy, Aluminum Alloy Castings: Properties, Processes, and Applications, United States of American,2004, ASM International, Materials Park.
- [28] Y. Haizhi, An Overview of the Development of Al-Si-Alloy Based Material for Engine Applications, Journal of Materials Engineering and Performance, Vol.12, 2003, pp.288-297.
- [29] S. Shankar, Y. Riddle, & M. Makhlof, Eutectic solidification of aluminum-silicon alloys, Metallurgical and Materials Transactions A, 2004,35 (9), pp.3038-3043.
- [30] J. L. Murray, & A. J. McAlister, The Al-Si (Aluminum-Silicon) system. Bulletin of Alloy Phase Diagrams, 1984, 5(1), 74–84.
- [31] JCPDS-ICDD (1997), Card No. 04-0787.

- [32] M. Cooper, The crystal structure of the ternary alloy α (AlFeSi). *Acta Crystallographica*, 1967, 23(6), 1106–1107.
- [33] T. Gao, K. Hu, L. Wang, B. Zhang, & X. Liu, Morphological evolution and strengthening behavior of α -Al(Fe,Mn)Si in Al-6Si-2Fe-xMn alloys, *J. Results in Physics*, Vol. 7, 2017, p. 1051-1054.
- [34] Małgorzata Warmuzek, *Aluminum-Silicon Casting Alloys: Atlas of Microfractographs*, First printing, ISBN: 0-87170-794-2, United States of America, May 2004, p. 2.
- [35] J. Jie, C. Zou, H. Wang, & Z. Wei, Microstructure evolution of Al–Mg alloy during solidification under high pressure, *J. Materials Letters*, April 2010, 64(7):869-871.
- [36] D. A. Porter & K. E. Easterling, *Phase transformations in metals and alloys*, London; New York, Chapman & Hall, 1992.
- [37] J.L. Murray, The Al-Mg (Aluminium-magnesium) System. *Bulletin of Alloy Phase Diagrams*, 3:61, 1982.
- [38] Y. Zhong, M. Yang, and Z.-K. Liu, “Contribution of first principles energetics to Al-Mg thermodynamic modeling,” *Calphad*, vol. 29, no. 4, pp. 303–311, 2005.
- [39] P. Villars, K. Cenzual, *Pearson's Crystal Data: Crystal Structure Database for Inorganic Compounds (on DVD)*, Release 2019/20, ASM International®, Materials Park, Ohio, USA.
- [40] K. Taketoshi, Structural Analyses of the β and γ Alloys of Al-Mg. *Japanese Journal of Applied Physics*, 1971, 10(10), 1311-1328.
- [41] S. Samson, The crystal structure of the phase β -Mg₂Al₃. *Acta Crystallographica*, 1965, 19(3), 401–413.
- [42] JCPDS-ICDD (1997), Card No. 34-1035
- [43] G. A. Edwards, G. K. Sigworth, C. H. Cáceres, D. H. StJohn, & J. Barresi, Microporosity formation in Al-Si-Cu-Mg casting alloys, *Transactions of the American foundrymen's Society*, 1997, Vol.105, p.809-818.
- [44] R. I. Mackay & J. H. Sokolowski, Effect of Si and Cu concentrations and solidification rate on soundness in casting structure in Al–Si–Cu alloys, *International Journal of Cast Metals Research*, 2010 23 (1), p.7-22.
- [45] Kang, H.G., Kida, M., Miyahara, H., & Ogi, K., Age-Hardening Characteristics of Al-Si-Cu-Base Cast Alloys, *AFS Transactions*, 1999, vol. 107, p. 507–515.
- [46] Phillips, H.W.L., *Annotated Equilibrium Diagrams of Some Al Alloy Systems*, Monograph, Inst. of Met., London, 1959; 25(18): p. 57-65.

- [47] Hasting H. S., Frøseth A. G., Andersen S. J., Vissers R., Walmsley J. C., Marioara C. D., Danoix F., Lefebvre W., Holmestad R., Composition of β'' precipitates in Al–Mg–Si alloys by atom probe tomography and first principles calculations. *J. Appl. Phys.* 2009, 106 (12): 123527.
- [48] Chen, J. H., Costan, E., van Huis, M. A., Xu, Q., & Zandbergen, H. W. Atomic Pillar-Based Nanoprecipitates Strengthen AlMgSi Alloys. *Science*, 2006; 312(5772): 416–419.
- [49] Frøseth A. G., Høier R., Derlet P. M., Andersen S. J., & Marioara C. D. Bonding in MgSi and Al-Mg-Si compounds relevant to Al-Mg-Si alloys. *Physical Review B*, (2003). 67(22): 224106.
- [50] Andersen S.J., Marioara C.D., Frøseth A., Vissers R., Zandbergen H.W., Crystal structure of the orthorhombic U2-Al4Mg4Si4 precipitate in the Al-Mg-Si alloy system and its relation to the β' and β'' phases, *Mater. Sci. Eng.* 2005; A390: 127-138.
- [51] Andersen S. J., Zandbergen H. W., Jansen J., TrÆholt C., Tundal U., & Reiso O. The crystal structure of the β'' phase in Al-Mg-Si alloys. *Acta Materialia*, 1998,46(9): 3283–3298.
- [52] H. Kuhn and D. Medlin, *Mechanical testing and evaluation*, ASM Handbook. volume 8, 2000, p. 998.
- [53] A. Cornet and F. Hlawka. *Propriétés et comportement des matériaux*. Ellipses, Paris, 2eme edition, 2010, p. 320.
- [54] D. Francois, *Essais mécaniques et lois de comportement*. Hermès science, mars 2001.

Chapitre II : METHODES DE SIMULATION : DYNAMIQUE MOLECULAIRE

Ce chapitre a pour but de présenter une des techniques de simulation à l'échelle atomique appelée Dynamique Moléculaire (DM). Cette méthode de simulation mise au point dans les années 1950, est de plus en plus utilisée, pour les protéines, des biomolécules, l'eau, et notamment dans le domaine des matériaux. Une brève présentation de la technique de Dynamique Moléculaire, l'idée basique de cette technique, de ses points clefs et son importance dans la compréhension du comportement des matériaux, seront présentée dans la suite de ce chapitre.

Introduction

La modélisation moléculaire (MD) regroupe l'ensemble des méthodes numériques permettant de simuler un système à un niveau microscopique, dans lequel les atomes et les molécules sont autorisés à interagir pour une période de temps par des approximations de la physique. Cette méthode permet d'accéder à des informations structurales et/ou dynamiques du système étudié, c'est-à-dire l'évolution des positions, vitesses, et des orientations des atomes ou molécules individuelles dans des modèles de solides, liquides et gaz, au cours du temps, qui permet d'extraire les propriétés souhaitées et comprendre ou prédire des résultats expérimentaux.

Les trajectoires des particules en interaction sont déterminées en résolvant numériquement les équations de mouvement de Newton pour un système de N atomes, en utilisant un algorithme d'intégration, pour un pas de temps qui doit être convenable pour le système étudié pour éviter les erreurs de discrétisation, où les forces entre les particules et l'énergie potentielle sont définies par le champ de force de la mécanique moléculaire [1].

La simulation MD est fréquemment utilisée dans l'étude des protéines et des matériaux biomoléculaires ainsi que dans la science des matériaux, elle a été introduite en 1957 et dans la première étude par dynamique moléculaire, les interactions de 500 sphères dures ont été étudiées [2], plus, le mouvement des atomes individuels de 864 particules a été étudié dans l'argon liquide [3].

Nous présentons dans un premier temps plus en détail la méthode de dynamique moléculaire qui permet de mieux comprendre la dynamique à l'échelle atomique, le lien avec la thermodynamique et la prédiction des propriétés, et dans un second temps, nous introduisons les potentiels d'interactions et l'algorithme d'intégration de l'équation de Newton.

D'autre part, ce chapitre est consacré à l'exposition du formalisme des potentiels de type "Embedded Atom Method" (EAM) et "Modified Embedded Atom Method" (MEAM) et de leurs applications aux alliages d'Aluminium.

II.1. Modélisation moléculaire

La modélisation moléculaire est une application des méthodes théoriques et des méthodes de calcul pour résoudre des problèmes impliquant la structure moléculaire [4].

La modélisation par ordinateur d'une molécule implique généralement une présentation graphique de la géométrie ou de la configuration des atomes, suivie de l'application d'une méthode théorique, comme la mécanique quantique ou la mécanique moléculaire, pour évaluer les propriétés physico-chimiques de la molécule à l'étude.

II.1.1 Approche de la dynamique moléculaire

Pour prédire le comportement des molécules et des atomes, les interactions intramoléculaires, les interactions avec le milieu extérieur, la construction de la molécule, l'arrangement des atomes, et pour déterminer les minima de l'énergie globale d'interaction, il existe plusieurs types de modélisation moléculaire [5], qui sont classés en deux grands groupes selon le modèle mathématique choisi pour représenter un système.

- Dynamique moléculaire quantique
- Dynamique moléculaire classique

Les simulations de dynamique moléculaire sont effectuées pour :

- Comprendre les propriétés des molécules afin de prédire leur structure et de comprendre les interactions microscopiques entre elles.
- Observer le mouvement des atomes individuels d'une manière qui n'est pas possible dans les expériences de laboratoire.
- Détailler et améliorer l'interprétation des résultats expérimentaux.
- Comprendre le comportement moléculaire et les bases de la structure physique
- Prévoir les caractéristiques des matériaux
- Comparer et interpréter l'observation expérimentale
- Interpoler ou extrapoler les données expérimentales dans des régions difficiles d'accès en laboratoire.
- Générer des trajectoires moléculaires sur un temps fini.

II.2. Méthode de Dynamique Moléculaire

II.2.1. Principe générale

La dynamique moléculaire (DM) est une méthode permettant de simuler l'évolution temporelle d'un système moléculaire. Elle repose généralement sur l'utilisation de la relation fondamentale de la dynamique (loi de Newton) pour calculer des accélérations, vitesses et positions des

particules pour chaque pas de temps, permet également de décrire les propriétés structurales, thermodynamiques et dynamiques sur des échelles atomiques. Alors les interactions entre les atomes dans un matériau sont modélisées par une fonction mathématique, pour avoir un aperçu microscopique de la structure des atomes/molécules et de leurs interactions, pour mieux comprendre des mécanismes physico-chimiques mis en jeu et difficilement accessible expérimentalement, et pour aider au développement de nouveaux procédés.

II.2.3. Équation du mouvement

Les atomes et les molécules d'un système sont autorisés à interagir pendant une période de temps donnant une vue de leur mouvement. Les trajectoires des particules en interaction sont déterminées en résolvant numériquement les équations du mouvement de Newton, où les forces entre les particules et l'énergie potentielle sont définies par le champ de la force mécanique moléculaire.

La dynamique moléculaire est le terme utilisé pour décrire la solution des équations de mouvement classiques (équation newtonienne) pour un système composé d'un ensemble de molécules ou d'atomes [6-7]. La dynamique moléculaire permet de suivre l'évolution temporelle d'un ensemble de N atomes par l'intégration numérique pas à pas des équations du mouvement classique, en utilisant les lois newtoniennes de la mécanique classique. La simulation de dynamique moléculaire fournit la méthodologie pour la modélisation microscopique détaillée à l'échelle moléculaire [8].

Pour chaque atome i de masse m , on définit la force F exercée par l'ensemble du système sur cet atome par [9] :

$$F_i = m \times a_i$$

Où F_i est la somme des forces agissant sur l'atome i , de masse m et a_i son accélération.

Pour cela, il faut pouvoir calculer les forces F_i agissant sur les atomes, et celles-ci dérivent généralement d'une énergie potentielle $V(r_i)$; où $r_i = (r_1; r_2; \dots; r_N)$ représente la position de l'ensemble des atomes i .

$$F_i = -\nabla_i V$$

$$F_i = m \frac{d^2 r_i}{dt^2} = m \times a_i$$

$$m_i \frac{d^2 r_i}{dt^2} = - \frac{dV}{dr_i}$$

II.2.4. Algorithmes d'intégration des équations du mouvement

Le choix d'un algorithme d'intégration des équations de mouvement est guidé par sa rapidité d'exécution, c'est-à-dire la possibilité d'avoir des pas d'intégration Δt les plus grands possibles tout en conservant l'énergie du système.

Plusieurs algorithmes sont utilisés, mais ils ont tous pour origine les lois de la dynamique classique de Newton discrétisées. En général le principe est d'obtenir depuis les forces (et potentiels) d'interaction entre les particules, les accélérations, puis les vitesses et les positions.

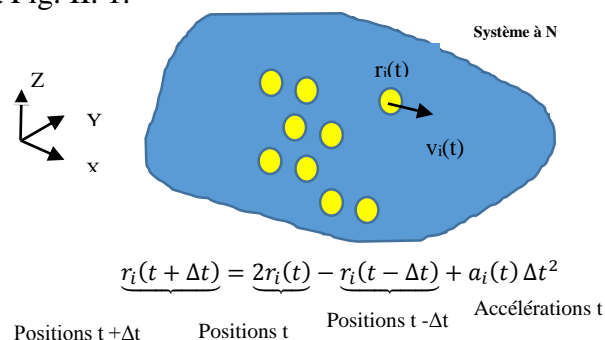
Plusieurs algorithmes numériques existent pour intégrer les équations du mouvement de Newton, y inclus [8,10] :

- algorithme "Verlet Vitesses"
- algorithme "Verlet Positions"
- algorithme "leap frog"
- algorithme "predictor corrector"

Un algorithme d'intégration doit posséder plusieurs propriétés essentielles. Il doit être précis, conserve l'énergie, être réversible par rapport au temps, ne pas demander trop d'espace mémoire et être rapide.

a. Algorithme de Verlet

Dans notre travail, pour intégrer les équations de Newton du mouvement des particules dans les simulations par dynamique moléculaire nous avons choisi d'utiliser l'algorithme de Verlet [1, 9, 10], C'est l'un des algorithmes les plus simples et les plus robustes, et qui est largement le plus employé parmi les nombreux algorithmes existants et parfaitement adéquat pour la majorité des applications de dynamique moléculaire, et le mieux indiqué pour nos systèmes [11]. C'est la méthode basée sur la décomposition par rapport au temps de la position r_i [12]. Il peut être résumé dans la Fig. II. 1.



$$\underbrace{r_i(t + \Delta t)}_{\text{Positions } t + \Delta t} = \underbrace{2r_i(t)}_{\text{Positions } t} - \underbrace{r_i(t - \Delta t)}_{\text{Positions } t - \Delta t} + \underbrace{a_i(t) \Delta t^2}_{\text{Accélérations } t}$$

Fig. II. 1: Principe de l'algorithme de Verlet.

En écrivant deux développements en série de Taylor d'ordre trois de $r_i(t)$ autour de t , l'un progressant de Δt dans le temps, il vient :

$$\begin{cases} r_i(t + \Delta t) = r_i(t) + \frac{\partial r_i(t)}{\partial t} \Delta t + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 r_i(t)}{\partial t^2} \Delta t^2 + \dots \\ r_i(t + \Delta t) = r_i(t) + v_i(t) \Delta t + \frac{1}{2} a_i(t) \Delta t^2 + \dots \end{cases}$$

Et l'autre rétrogradant du même pas, il vient :

$$\begin{cases} r_i(t - \Delta t) = r_i(t) - \frac{\partial r_i(t)}{\partial t} \Delta t + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 r_i(t)}{\partial t^2} \Delta t^2 + \dots \\ r_i(t - \Delta t) = r_i(t) - v_i(t) \Delta t + \frac{1}{2} a_i(t) \Delta t^2 + \dots \end{cases}$$

Où $v_i(t)$ est la vitesse (la première dérivée de la position $r_i(t)$), $a_i(t) = \frac{f_i(t)}{m}$ l'accélération (la deuxième dérivée de la position) calculée à partir de la position $r_i(t)$ de l'atome i à l'instant t , $f_i(t)$ étant la force exercée sur chaque particule i de masse m au temps t . Le terme Δt est appelé le pas de temps de la dynamique moléculaire.

Cet algorithme utilise les positions, et les accélérations à l'instant t , et les positions précédentes à l'instant $t - \Delta t$, pour calculer les nouvelles positions des particules à l'instant $t + \Delta t$.

On écrit la position r_i aux deux instants $t - \Delta t$ et $t + \Delta t$

$$r_i(t + \Delta t) = r_i(t) + v_i(t) \Delta t + \frac{1}{2} a_i(t) \Delta t^2 \quad \text{(a)}$$

$$r_i(t - \Delta t) = r_i(t) - v_i(t) \Delta t + \frac{1}{2} a_i(t) \Delta t^2 \quad \text{(b)}$$

Par la sommation des deux expressions précédentes, (a)+(b), on obtient les positions des atomes à l'instant $t + \Delta t$ à partir de la position à l'instant t , et à l'instant $t - \Delta t$ et l'accélération à l'instant t .

$$r_i(t + \Delta t) + r_i(t - \Delta t) = 2r_i(t) + a_i(t) \Delta t^2$$

$$r_i(t + \Delta t) = 2r_i(t) - r_i(t - \Delta t) + a_i(t) \Delta t^2$$

La soustraction des deux expressions, (a)-(b), donne la vitesse à l'instant t .

$$v_i(t) = \frac{r_i(t + \Delta t) - r_i(t - \Delta t)}{2\Delta t}$$

La détermination des vitesses des particules pour calculer les nouvelles positions, peut être déterminée par la soustraction des équations car l'algorithme de Verlet à l'avantage de ne pas utiliser les vitesses des particules.

L'algorithme d'intégration permet d'intégrer le système d'équations de mouvement classique au cours du temps et de calculer, à partir de la position $r_i(t)$ et de la force $F_i(t)$ au temps t , la nouvelle position des atomes au temps $(t + \Delta t)$ où Δt représente le pas d'intégration.

Ce pas doit être choisi de façon à être suffisamment petit pour que les forces interatomiques puissent être considérées comme constantes.

La position à l'instant $(t + \Delta t)$ et la vitesse à l'instant t sont alors égales à :

$$r_i(t + \Delta t) = 2r_i(t) - r_i(t - \Delta t) + a_i(t)\Delta t^2$$
$$v_i(t) = \frac{r_i(t + \Delta t) - r_i(t - \Delta t)}{2\Delta t}$$

On voit que pour déterminer la position d'une particule à un temps $(t + \Delta t)$, il faut connaître ses deux positions précédentes (à l'instant t et à l'instant $(t - \Delta t)$) et son accélération à l'instant t . C'est-à-dire pour calculer la nouvelle position de la particule i à l'instant $(t + \Delta t)$ on est besoin de trois termes qui sont la position de l'atome i à l'instant t , la position de i à l'instant $(t - \Delta t)$ et l'accélération $a_i(t)$ de la particule i à l'instant t .

Les avantages et les points positifs de cet algorithme sont :

- Rapidité
- Stabilité
- Simplicité
- Utilise peu de mémoire d'ordinateur, donc peu de ressource
- Réversible en temps
- Conservation d'énergie bonne à temps long.

b. Conditions initiales et conditions aux limites périodiques

En Dynamique Moléculaire pour simuler un système qui se compose de N particules, il faut tout d'abord déterminer ses conditions initiales qui sont les positions et les vitesses des atomes qui correspondent à la température à laquelle la simulation est faite. Ses conditions doivent être cependant choisies en fonction de la structure qu'on veut simuler. Donc, il faut prendre le système dans un état proche de celui que l'on veut simuler : solide, liquide, ou gaz. Le mieux, lorsque cela est possible, est de partir de la dernière configuration (bien équilibrée) d'un état très proche.

La méthode de dynamique moléculaire étudie les propriétés d'un système fini, qui contient un nombre N de particules déterminé à l'avance, et qui est limité par la taille mémoire de l'ordinateur et le temps d'exécution, alors que l'on s'intéresse généralement aux propriétés d'un système infini qui contient des milliards de particules. Afin d'être en mesure d'effectuer une extrapolation significative à la limite thermodynamique, la question des conditions aux limites périodiques [6] s'impose pour éliminer les différences entre le système réel et simulé.

La figure suivante illustre un système de particules à deux dimensions pour lequel les conditions aux limites périodiques sont appliquées. De ce fait, on impose des conditions aux limites périodiques au système à simuler, c'est-à-dire, que la boîte de simulation sera identiquement répétée (Fig. II. 2). Examinons ceci avec plus de détails : la boîte de simulation est dupliquée dans les trois directions de l'espace, en respectant les conditions aux limites périodiques qui nous permettent alors de simuler un système infini avec des moyens finis. Donc, si au cours d'une simulation, une particule se déplace dans la boîte centrale, ses images se déplacent de la même manière dans toute les boîtes images de simulation, et à chaque fois qu'un atome quitte la boîte par une face, il est remis dans la boîte par la face opposée avec la même vitesse. Ainsi, le nombre de particules reste constant dans la boîte centrale; et la force exercée sur chaque atome par ses voisins est alors calculée en utilisant les particules dans la boîte de simulation. Donc, la particule subit l'influence de toutes les particules environnantes [4, 13].

Même si les conditions ont des inconvénients, comme si y avait un défaut il sera répété à l'infini avec la périodicité de la boîte, ce qui peut introduire des accumulations des erreurs surtout si les champs de déformation induits par les défauts se superposent, ils sont nécessaire pour réussir une simulation en dynamique moléculaire.

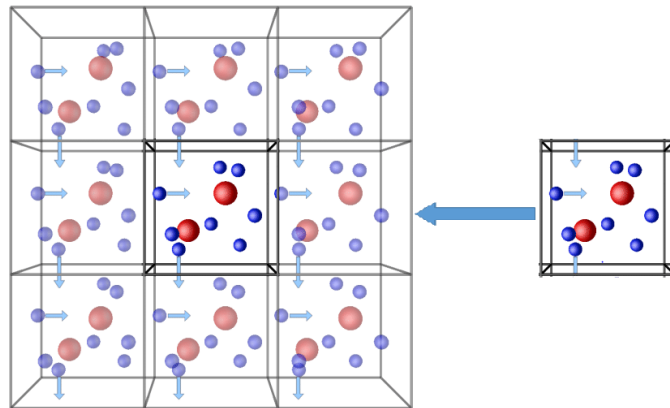


Fig. II. 2: Schéma représentant des Conditions aux Limites Périodiques en dynamique moléculaire d'une boîte cubique.

II.2.5. Ensembles thermodynamiques

Plusieurs types d'ensembles statistiques existent. L'ensemble canonique NVT et l'ensemble isotherme-isobare NPT ce sont les deux ensembles les plus utilisés en thermodynamique statistique, car ils ressortent un intérêt pratique du fait de leur analogie avec les systèmes expérimentaux. Il y a également l'ensemble microcanonique NVE est l'ensemble classique de la mécanique statistique [40]. Nous citons:

- **L'ensemble micro-canonique NVE** pour lequel le nombre d'atomes (**N**), le volume étudié (**V**) et l'énergie du système (**E**) sont constantes [14-15].
- **L'ensemble canonique NVT** pour travailler dans cet ensemble, on fixe le nombre de particules **N**, le volume **V** et la température **T** [15-18].
- **L'ensemble isobare-isotherme NPT** dont le Nombre de particules **N**, la pression **P** et la température **T** sont constantes [19-20].

L'ensemble micro-canonique NVE est l'ensemble historique de la mécanique statistique. Mais en pratique, il est préférable de travailler dans des ensembles NVT et NPT qui présente un intérêt pratique du fait de leur analogie avec les systèmes expérimentaux et qui sont plus proches de nos conditions thermodynamiques.

II.2.6. Choix du pas du temps

C'est un paramètre crucial de la simulation. L'idée principale de la dynamique moléculaire est de résoudre les équations de mouvement numériquement avec un pas de temps choisi convenablement. Donc, pour une simulation de la dynamique moléculaire, le pas de temps est un élément très intéressant puisqu'il représente le temps qui s'écoule entre chaque mouvement des atomes pour le matériau simulé.

En effet, lorsque les atomes bougent, les forces changent. Alors, lorsque ce dernier est trop petit, on se rapproche de la solution exacte des équations différentielles, si ce pas de temps est grand, l'énergie du système augmente donc la simulation devient instable. Il est nécessaire de choisir le bon pas d'intégration afin de résoudre convenablement les équations de mouvement. Dans la grande majorité des cas, des valeurs comprises entre 10^{-14} s et 10^{-15} s représentent un bon compromis.

II.2.7. Potentiels d'interaction

Avant toute simulation, il faut modéliser le système physique qu'on veut simuler. Pour cela, on doit bien représenter les interactions intermoléculaires et intramoléculaires quand elles existent. Cela revient à choisir la forme du potentiel interatomique, qui dépend des coordonnées des particules, c'est-à-dire du matériau à simuler (système à modéliser), et qui permet de connaître la position de chaque atome, leur évolution, et l'interaction entre les atomes constituant le système (leurs forces). En absence de champ extérieure, pour un système de **N** particules, le potentiel contient un ensemble de paramètres mathématiques permettant de prendre en compte les interactions subies et engendrées par ses particules. Ces interactions peuvent être écrites comme suit [8] :

$$E_{\text{totale}} = E_{\text{liés}} + E_{\text{non-liés}}$$

Où $E_{\text{liés}}$ regroupe les termes décrivant les énergies de liaison, angulaire et de rotation :

$$E_{\text{liés}} = E_{\text{Etirement}} + E_{\text{Rotation}} + E_{\text{Torsion}}$$

Et $E_{\text{non-liés}}$ les autres termes :

$$E_{\text{non-liés}} = E_{\text{Van der Waals}} + E_{\text{Electrostatique}}$$

Donc l'énergie totale s'écrit sous la forme :

$$E_{\text{totale}} = E_{\text{Etirement}} + E_{\text{Rotation}} + E_{\text{Torsion}} + E_{\text{Van der Waals}} + E_{\text{Electrostatique}}$$

Pour les systèmes métalliques ont été modélisés par de simples potentiels à deux corps tels que le potentiel de Lennard-Jones [21], EAM [22], Finnis–Singlair [23], Glue [24], Tersoff [25], MEAM [26], et d'autres potentiels empiriques. Ils étaient limités pour reproduire la liaison métallique avec sa dépendance avec les atomes de l'environnement.

Dans la suite, nous décrivons trois types de potentiels : le potentiel de Lennard-Jones, le potentiel de la méthode de l'atome encastré EAM (Embedded Atom Method), et la méthode modifiée de l'atome encastré MEAM (Modified Embedded Atom Method), qui ont remarquablement pu décrire les interactions atomiques des alliages d'Aluminium.

a- Potentiel Lennard-Jones

Le potentiel Lennard-Jones est un modèle mathématique simple servant à écrire l'interaction entre deux atomes. L'expression la plus commune de ce potentiel de pair s'écrit [21] :

$$V^{\text{LJ}}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N) = \sum_i \sum_{i \neq j} V_{ij}^{\text{LJ}}(r_{ij}) = \sum_i \sum_{j \neq i} 4\epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^6 \right]$$

Avec ϵ la profondeur du puits de potentiel, σ la distance pour laquelle l'énergie d'interaction est nulle, et r_{ij} la distance entre les atomes i et j .

Le terme en $\left(\frac{1}{r_{ij}} \right)^{12}$ est un terme représentant la répulsion entre les nuages électroniques à courte distance (terme empirique permettant de prendre en compte le principe d'exclusion de Pauli), compensé par l'attraction représentée par le terme d'interaction dipolaire en $\left(\frac{1}{r_{ij}} \right)^6$ (interaction de Van der Waals).

Ce potentiel décrit le comportement des gaz rares avec une précision acceptable [21]. Dans le cas des solides, il est utilisé pour donner des descriptions qualitatives des systèmes étudiés. La simplicité de son expression, peu de ressources sont nécessaires à l'évaluation des forces par rapport à des potentiels plus complexes.

Unités Lennard-Jones Pour le potentiel LJ, les grandeurs physiques sont exprimées en fonction de ϵ et σ : temps, distances, masses, énergies et températures sont respectivement exprimées en unités de $\sqrt{m\sigma^2/\epsilon}$, σ , m , ϵ et ϵ/k avec k la constante de Boltzmann. Le choix des paramètres ϵ et σ peut permettre de simuler un type de matériau en particulier. Typiquement, les valeurs des paramètres LJ pour l'argent sont $\epsilon = 0.345\text{eV}$ et $\sigma = 2.644\text{\AA}$ [35]. Dans le cadre de l'étude qualitative d'un phénomène, le choix des paramètres ϵ et σ n'a pas de justification physique, mais leur flexibilité permet de simuler l'interaction de différents matériaux.

b- Potentiel Embedded Atom Method (EAM)

Le potentiel de la méthode de l'atome encastré (Embedded Atom Method (EAM)) est un potentiel qui a été développé par Daw and Baskes [22], qui sert à décrire les métaux (Au, Ni, Cu, Al, ...), c'est-à-dire la liaison métallique à travers les électrons de conduction délocalisés, et qui permis de simuler les propriétés thermodynamiques des métaux, il a été étendue pour l'étude des alliages, simuler les défauts cristallins, les surfaces, et aussi les liquides. Par la suite Baskes a pu l'adapter pour les semi-conducteurs [28-30].

C'est un potentiel à N corps pour lequel on calcule l'énergie nécessaire à l'immersion d'un atome dans la densité électronique induite par les autres atomes du système.

L'énergie totale du système s'écrit [30] :

$$E_{tot} = \sum_i E_i = \sum_i F_i(\rho_{h,i}) + \frac{1}{2} \sum_i \sum_{j \neq i} \Phi_{ij}(r_{ij})$$

Avec
$$\rho_{h,i} = \sum_{i \neq j} \rho_j(r_{ij})$$

Où E_i est l'énergie de l'atome i , $\rho_{h,i}$ est la densité électronique due aux autres atomes du métal en i , ρ_j la contribution à la densité électronique totale de l'atome j (on suppose que la densité électronique totale est la superposition linéaire des contributions individuelles de chaque atome). $F_i(\rho_{h,i})$ est l'énergie nécessaire pour immerger un atome dans le nuage électronique, et $\Phi_{ij}(r_{ij})$ est un potentiel de paire assurant la répulsion entre les électrons de cœur (exclusion de Pauli) et corrigeant l'approximation du calcul de la partie immersion. Les interactions réelles entre atomes étant plus complexes qu'un simple potentiel de pair comme le potentiel Lennard-Jones, l'utilisation de ce potentiel est plus réaliste.

c- Potentiel Modified Embedded Atom Method (MEAM)

La méthode modifiée de l'atome encastré (Modified Embedded Atom Method) MEAM est une version modifiée du potentiel de la méthode des atomes embarqués (EAM) [22], il a été créé par Baskes [26] pour les métaux, qui est une méthode semi-empirique pour calculer l'énergie totale d'une structure atomique donnée. Il convient à la modélisation des métaux et alliages avec les structures CFC [31], BCC [32] et Hcp [33-34], ainsi que le manganèse [35], et leurs alliages ; et les éléments de liaison covalents à structure diamant tels que le carbone [36], le silicium [37], le germanium [38]. Dans le MEAM original [26], seules les premières interactions avec le plus proche voisin sont considérées. Le MEAM a été modifiée une fois de plus par Lee et Baskes [39] et Lee et al. [32] tels que les interactions entre le deuxième plus proche voisin des atomes sont considérés, en surmontant certaines lacunes critiques du MEAM original.

L'énergie totale E d'un système d'atomes dans le potentiel MEAM [26], est considérée comme la somme des énergies atomiques. L'énergie de l'atome i est constituée de l'énergie d'encastrement et de potentiels :

$$E_{total} = \sum_i E_i = F_i(\bar{\rho}_i) + \frac{1}{2} \sum_{j \neq i} S_{ij} \Phi_{ij}(r_{ij})$$

L'énergie d'encastrement $F_i(\bar{\rho}_i)$ représente le coût énergétique pour insérer l'atome i à un site où la densité électronique de fond est $(\bar{\rho}_i)$, $\Phi_{ij}(r_{ij})$ est une paire d'interaction potentielle entre les atomes i et j , et S_{ij} est la projection entre les atomes i et j dont les deux sont séparés par une distance r_{ij} .

Pour les calculs généraux d'énergie, il convient de donner les formes fonctionnelles des deux termes à droite de l'équation, F_i et Φ_{ij} .

II.2.8. Minimisation de la structure initiale

Dans le cas général, la minimisation a pour but de rechercher une conformation pour laquelle la molécule/l'atome est la plus stable possible en terme énergétique et donc pouvant présenter une forte probabilité d'existence et de stabilité.

La conformation présentant l'énergie la plus faible est retenue comme la conformation la plus stable de la molécule. La recherche d'une conformation énergétiquement stable est primordiale dans le cas d'une simulation par dynamique moléculaire. De plus, la molécule/l'atome simulée étant généralement un modèle de construction s'appuyant sur des données expérimentales.

II.2.9. Déroulement d'une simulation de DM

Une simulation de DM est similaire à une démarche expérimentale. En effet, en DM, il y a une préparation de l'échantillon qui consiste à considérer N particules à placer dans une boîte de simulation avec une géométrie particulière et à leur affecter des positions et une distribution initiale de vitesses. Le déroulement d'une simulation consiste ensuite à construire la trajectoire du système dans son espace, en contrôlant les conditions thermodynamiques (température, pression, etc...).

La réalisation d'une simulation de dynamique moléculaire s'effectue en plusieurs étapes. Celles-ci peuvent varier à la fois dans leur déroulement successif ainsi que dans leur méthodologie. Dans ce paragraphe, nous nous limiterons aux étapes et aux méthodologies les plus souvent rencontrées lors de la simulation des métaux. Elle comporte généralement 3 étapes :

- *Choix de la structure initiale*

La première étape de toute simulation est de construire le modèle dont on cherche à reproduire ou comprendre les propriétés. Il s'agit de positionner les atomes du système de simulation dans l'espace tridimensionnel tout en tenant compte des mesures expérimentales disponibles. Ces dernières peuvent par exemple nous renseigner sur les valeurs des longueurs de liaisons, des angles ou bien sur la conformation générale de la molécule/l'atome.

Le modèle construit devra donc être le plus proche possible des renseignements expérimentaux, donc de la réalité.

- *Phase de mise en température*

Partant du zéro absolu, la température est augmentée progressivement jusqu'à atteindre la température choisie pour la simulation.

Les vitesses peuvent être choisies nulles ou générées aléatoirement selon une distribution gaussienne à la température désirée.

- *Production*

Le calcul des propriétés peut être réalisé lorsque le système arrive à son état d'équilibre. Ceci se fait en continuant la simulation sur une portion de trajectoire de phase suffisante pour réaliser une analyse statistique : c'est le calcul concret des propriétés physiques qui sont l'intérêt de ce travail. Souvent, lors de cette étape, les positions et vitesses des particules ainsi que d'autres quantités calculées directement lors de la simulation sont sauvegardées pour une analyse ultérieure, post-traitement.

Les étapes d'une simulation de la dynamique moléculaire, déjà citées précédemment, sont schématisées dans la figure ci-dessous:

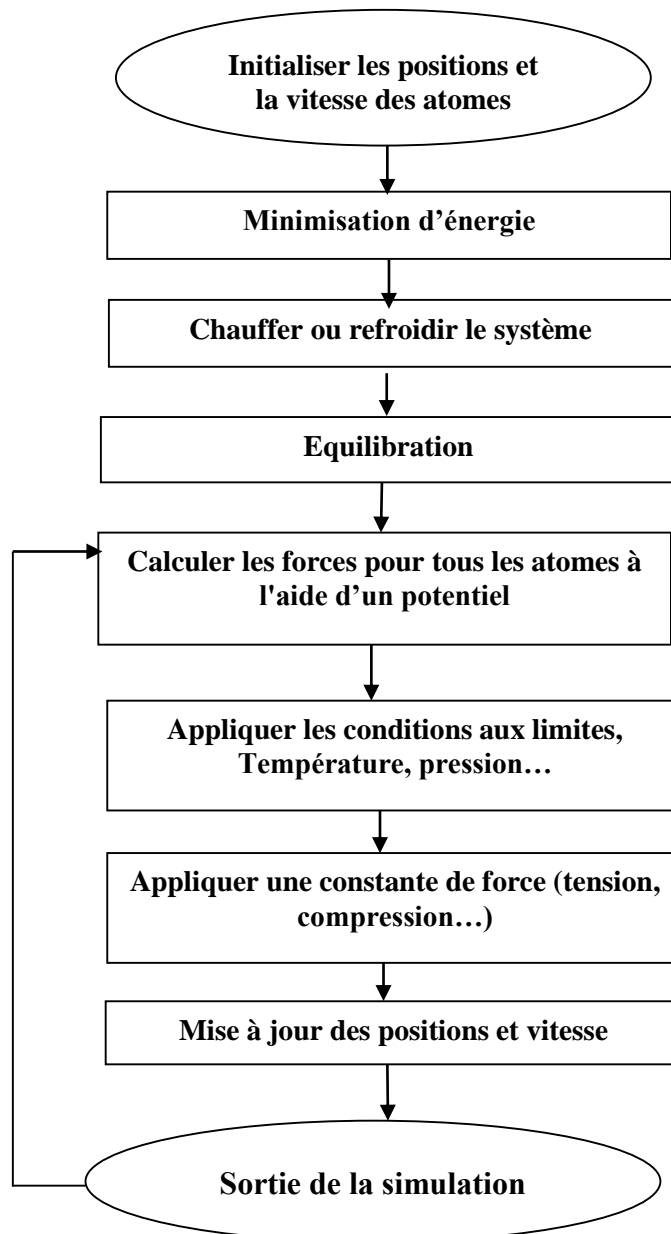


Fig. II. 3: Organigramme de la hiérarchie d'une simulation de dynamique moléculaire.

Les problèmes qui peuvent survenir lors d'une simulation sont également de même nature que ceux qui se produisent pendant une expérience réelle : une préparation incorrecte de l'échantillon, des mesures trop courtes ou trop longues, un changement irréversible vers un état non souhaité, conditions non convenable, etc...

Conclusion

Dans ce chapitre nous avons décrit en détails la méthode de la Dynamique Moléculaire classique (DM) utilisée pour la simulation des alliages d'Aluminium, le principe général, les techniques de cette méthode tel que l'algorithme d'intégration de l'équation du mouvement, les conditions initiales et aux limites périodiques, le pas du temps, les potentiels interatomiques, ainsi que les étapes qu'il faut suivre au cours d'une simulation de dynamique moléculaire.

La méthode de la DM classique est basée sur les équations de la seconde loi de Newton qui, via un intégrateur numérique tel que l'algorithme du Verlet, et via un ensemble de conditions initiales et périodiques ainsi qu'un potentiel interatomique, nous pouvons générer les trajectoires des particules afin de pouvoir analyser au cours du temps l'évolution et les différentes propriétés physico-chimiques du système étudié.

Références Ch. II

- [1] J. M. Haile, *Molecular Dynamics Simulation: Elementary Methods*, Wiley, John & Sons, March 1997, p. 512. ISBN: 978-0-471-18439-3.
- [2] Alder, B. J., & Wainwright, T. E., Phase Transition for a Hard Sphere System. *The Journal of Chemical Physics*, 1957, 27(5), p. 1208-1209.
- [3] F.H. Stillinger, & A.J. Rahman, Improved simulation of liquid water by molecular dynamics. *The Journal of Chemical Physics*, 60(4), 1974, 1545.
- [4] D. C. Rapaport, *The Art of Molecular Dynamics Simulation*, Cambridge University Press, 2^{ème} édition, 1 avril 2004, p. 564.
- [5] H.A. Scheraga, M. Khalili, & A. Liwo, Protein-folding dynamics: overview of molecular simulation techniques. *Annual Review Physical Chemistry*, 2007, 58(1), p. 57-83.
- [6] M. P. Allen & D. J. Tildesley, *Computer Simulation of liquids*, Oxford: Clarendon Press ; New York : Oxford University Press, 1989, p. 385.
- [7] P. Dea, T. Frauenheim, & M. R. Pederson (eds.), *Computer Simulation of Materials at Atomic Level*, ISBN: 3-527-40290-X, Volume 1, 15 June 2000, p. 728.
- [8] D. C. Rapaport, *The Art of Molecular Dynamics Simulation second edition*, Cambridge University Press, 2^{ème} édition, 1 avril 2004, p. 11-14.
- [9] D. Frenkel, & B. Smith, *Understanding molecular dynamics simulation from algorithms to applications*, 2^{ème} édition, Academic Press, San Diego, London, Boston, New York, Sydney, Tokyo, Toronto, 1996, p. 63-67.
- [10] L. Verlet, Computer 'Experiments' on classical fluids. I. thermodynamical properties of Lennard-Jones Molecules, *physical Review*, 1967, 159(1), 98-103.
- [11] W. G. Hoover, Canonical dynamics: equilibrium phase-space distributions, *Physical Review A*, 31(3), 1985, p. 1695-1697.
- [12] D. Frenkel & B. Smit, *Understanding Molecular Simulation: From Algorithms to Applications*, 2^{ème} édition, ser. Computational science series. Elsevier Science, 19 October 2001, p. 664.
- [13] T. Schlick, *Molecular Modeling and Simulation: An Interdisciplinary guide* Interdisciplinary Applied Mathematics series, vol. 21. Springer: New York, NY, USA. ISBN 0-387-95404-X. 2002, p. 272.

- [14] B. Diu, C. Guthman, D. Lederer & B. Roulet, *Element de physique statique*, Paris, Hermann, coll. D'enseignement des sciences' n°37, 1008, juillet 1996, p. 30-33.
- [15] Josiah Willard Gibbs, *Elementary Principles in Statistical Mechanic*, New York, Charles Scribner's Sons, 1902, p. 115-178.
- [16] S. Nosé. A molecular dynamics method for simulations in the canonical ensemble. *Molecular Physics*, 1984, 52(2), p. 255-268.
- [17] S. Nosé, A unified formulation of the constant temperature molecular dynamics methods. *The Journal of Chemical Physics*, 81(1), 1984, p. 511–519.
- [18] S. Nosé, A molecular dynamics method for simulation in the canonical ensemble. *Molecular Physics*, 52, 1983, p.255-268.
- [19] M. Parrinello, & A. Rahman, Crystal structure and pair potentials: A molecular dynamics study, *Physical Review Letters*, 45(14), 1980, p. 1196-1199.
- [20] M. Parrinello, & A. Rahman, Polymorphic transitions in single crystals: A new molecular dynamics method. *J. App. Phys.*, 52, 1981, p. 71-82.
- [21] J. E. Lennard-Jones, On the Determination of Molecular Fields, *Proc. R. Soc. Lond. A* 106 (738): 1924, p. 463-477.
- [22] M.S. Daw, M.I. Baskes. Embedded-atom method: Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals *J. Physical Review B.*, 29(12), 1984, 6443-6453.
- [23] M.W. Finnis, J.E. Sinclair, A simple empirical N body potential for transition metals, *Philosophical Magazine A*, 50(1), 1984, p. 45-55.
- [24] F. Ercolessi, E. Tosatti, M. Parrinello, Au (100) surface reconstruction, *Physical Review Letters*, 57(6), 1986, p. 719–722.
- [25] J. Tersoff, New empirical approach for the structure and energy of covalent systems, *Physical Review B*, 37(12), 1988, p. 6991–7000.
- [26] M.I. Baskes, Modified embedded-atom method potentials for cubic materials and impurities, . *Physical Review B*, 46(5), 1992, p. 2727–2742.
- [27] P. Guan, D R Mckenzie, & B A Pailthorpe. MD simulations of Ag film growth using the Lennard-Jones potential. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 8(45) 1996, 8753–8762.

- [28] M. E. Redjaimia, 3eme année génie mécanique CL, Université Mohamed Khider Biskra, 2008.
- [29] M. S. Daw & M. I. Baskes. Semiempirical, quantum mechanical calculation of hydrogen embrittlement in metals. *Physical Review Letters*, 50(17), 1983, p. 1285-1288.
- [30] S. M. Foiles, M. I. Baskes, & M. S. Daw. Embedded-atom-method functions for the fcc metals Cu, Ag, Au, Ni, Pd, Pt, and their alloys. *Phys. Rev. B*, 33(12), 1986, p. 7983-7991.
- [31] B.J. Lee, J.-H. Shim, M.I. Baskes, Semi-empirical atomic potentials for the FCC Metals Cu, Ag, Au, Ni, Pd, Pt, Al and Pb based on first and second nearest neighbor modified embedded atom method, *Phys. Rev. B* 68, 2003, p.144-112.
- [32] B.J. Lee, M.I. Baskes, H. Kim, & Y.K. Cho, Second nearest-neighbour modified embedded atom method potentials for BCC transition metals, *Phys. Rev. B* 64, 2001, 184102.
- [33] B.J. Lee, Y.M. Kim, M.I. Baskes, Modified embedded atom method interatomic potentials for Ti and Zr, *Phys. Rev. B* 74(1), 2006, 014101.
- [34] Y.M. Kim, N.J. Kim, B.J. Lee, Atomistic modelling of pure Mg and Mg-Al system, *CALPHAD* 33, 2009, p.650-657.
- [35] Y.M. Kim, Y.H. Shin, B.J. Lee, Modified embedded-atom method interatomic potentials for pure Mn and Fe–Mn System, *Acta. Mater.* 57, 2009, p.474-482
- [36] B.J. Lee, J.W. Lee, A modified embedded atom method interatomic potential for carbon, *CALPHAD* 29, 2005, p.7-16.
- [37] B.J. Lee, A modified embedded atom method interatomic potential for silicon, *CALPHAD* 31, 2007, p.95-104.
- [38] E.H. Kim, Y.-H. Shin, B.-J. Lee, A modified embedded atom method interatomic potential for germanium, *CALPHAD* 32, 2008, p.34-42.
- [39] B.J. Lee, M.I. Baskes, Second nearest-neighbor modified embedded-atom method potential, *Phys. Rev. B* 62, 2000, p. 8564-8567.
- [40] Josiah Willard Gibbs, *Elementary Principles in Statistical Mechanics*, New York, Charles Scribner's Sons, 1902, p. 115-178.

Chapitre III : OUTILS DE MODELISATION

Dans ce chapitre, nous tentons de décrire les outils de la simulation informatique, logiciel et ses langages employés dans cette thèse. Le but est de décrire d'une manière fine des scripts d'entrée et de sortie du logiciel LAMMPS (Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator), d'expliquer en quelques mots les commandes pour des simulations de dynamique moléculaire (MD). Ainsi qu'une présentation des logiciels de visualisation et d'analyse sur lesquels nous nous appuyons pour analyser et interpréter nos résultats de simulation.

Introduction

Une grande variété de techniques de modélisation ont été mises au point au fil des années, ainsi que celles qui sont pertinentes pour le travail au niveau moléculaire. Les simulations en dynamique moléculaire (DM) permettent de modéliser l'évolution temporelle du système à une température donnée, à travers le calcul des trajectoires atomiques individuelles [1]. Elle est basée sur les lois de Newton, qui sont déterministes ; autrement dit, un système placé dans un état initial donné évoluera toujours de la même manière [2]. Les vitesses sont calculées par intégration des lois de Newton, le plus souvent via un algorithme optimisé. Le code LAMMPS (Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator) emploie un algorithme de Verlet [3].

Ce chapitre donne un aperçu de ce que LAMMPS peut et ne peut pas faire, décrit ce que signifie pour LAMMPS d'être un code source ouvert. Nous commençons par la définition du logiciel de simulation utilisé pour la modélisation de nos métaux, et une discussion des fichiers nécessaires pour démarrer une simulation de dynamique moléculaire, les commandes du script d'entrée ainsi que les fichiers de sortie après l'exécution du code.

La visualisation prend plusieurs formes. Pour représenter les résultats de simulations, on a le choix d'observer directement les particules elles-mêmes ou d'afficher, généralement à l'aide de champs scalaires ou vectoriels, des valeurs moyennes appropriées telles que la vitesse, la température, la concentration, etc..., pour n'en citer que quelques-unes.

On utilisant des logiciels de visualisation il devient possible d'observer le système au mesure qu'il se développe au cours d'une déformation [4]. Les sorties des simulations peuvent être représentées au moyen des logiciels d'analyse sous forme de courbes. Ce qui permet au simulateur de contrôler à la fois les paramètres de la simulation et la façon dont les résultats sont affichés.

Les simulations par ordinateur exigent de grandes quantités de temps, mais cela ne signifie pas qu'elles se limitent aux machines les plus coûteuses et les plus puissantes [5].

III.1. Computer packages

In general, LAMMPS (Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator) [6], is a code of classical molecular dynamics that integrates the Newtonian equations of motion for atoms, molecules or particles that interact via short or long-range forces with a variety of initial or boundary conditions. LAMMPS is most effective for systems whose particles fill a three-dimensional parallelepiped box with uniform density. It is distributed as an open source code under a general public license (<http://www.lammps.sandia.gov/>).

The features of LAMMPS are briefly described in the following section.

III.1.1. Input and output files

In order to run a molecular dynamics simulation, we must first build the system (read_data file) determine the coefficients of the force fields (potential file). In an **input script**, we determine initial velocities, boundary conditions, specify variables and outputs, after running the simulation using a specific command we get the outputs in a defined **output files**.

In the following, we explain in details each file, the commands of the input file and the structure of the output file after running.

a. LAMMPS input script

LAMMPS executes by reading commands from an input script (text file), one line at a time. When the input script ends, LAMMPS exits. Each command causes LAMMPS to take some action. It may set an internal variable, read in a file, or run a simulation. Most commands have default settings, which can be changed upon once requirements.

LAMMPS input script typically consists of four parts:

- i. Initialization
- ii. atom definition
- iii. Settings
- iv. Execution

The following is a screenshot of the **Aug 2015 version** of LAMMPS input script used for a ternary Aluminum alloys simulation.

The following input script shows how to generate a material and then deform it at a prescribed strain rate. Files are dumped during the simulation in two different folders; equilibration dump files and deformed dump files. The dump files can then be easily viewed and post-processed for results.

```

# Input file for uniaxial compressive loading of Al/Mg/Si alloys
# ----- INITIALIZATION -----
units          metal
dimension      3
boundary       p      p      p
atom_style     atomic
read_data      beta.data
# ----- CREATE GROUPES OF ATOMS -----
group          Mg      type      1
group          Al      type      2
group          Si      type      3
# ----- DEFINE INTERATOMIC POTENTIAL -----
pair_style     meam
pair_coeff * * library.meam MgS AlS SiS MgAlSi.meam MgS AlS SiS
# ----- SETTINGS -----
compute        csym all centro/atom fcc
compute        peratom all pe/atom
# ----- EQUILIBRATION -----
reset_timestep 0
timestep       0.001
velocity       all create 300 12345 mom yes rot no
fix            1 all nvt temp 300 300 0.20
# ----- MINIMIZATION -----
min_style      quickmin
minimize       1.0e-10 1.0e-10 10000 1000
# ----- SET THERMO OUTPUT -----
thermo         1000
thermo_style   custom step temp pe ke etotal press vol lx ly lz pxx pyy pzz pxy pxz pyz
run            20000
unfix         1
# ----- STORING CELL LENGTH FOR STRAIN CALCULATIONS -----
variable tmp equal "lx"
variable L0 equal ${tmp}
print "Initial Length, L0: ${L0}"
# ----- DEFORMATION -----
reset_timestep 0
variable srates equal 3.0e10
variable srates1 equal "-v_srates / 1.0e12"
fix            1 all deform 1 x trates ${srates1} units box remap x
# Output strain and stress info to file, for units metal, pressure is in [bars] = 100 [kPa]= 1/10000 [GPa], p2,
# p3, p4 are in GPa
variable strain equal "(lx - v_L0)/v_L0"
variable p1 equal "v_strain"
variable p2 equal "-pxx/10000"
variable p3 equal "-pyy/10000"
variable p4 equal "-pzz/10000"
fix def1 all print 100 "${p1} ${p2} ${p3} ${p4}" file AlMgSi_comp_100.defMEAM.txt screen no
# ----- VISUALIZATION FILE -----
dump           1 all atom 1000 dump.AIMgSitensile.comp_*.lammppstrj
# ----- DISPLAY THERMO -----
thermo         1000
thermo_style   custom step v_strain temp v_p2 v_p3 v_p4 ke pe press
run            20000
# ----- SIMULATION DONE -----
print "All done"

```

All the commands in LAMMPS sit on the left side of the input script.

To the right of each command are the arguments the command takes. (Analogous to functions and inputs in MATLAB).

In the section below, we will explain in detail each command.

The '#' denotes a comment. Hence, LAMMPS does not do anything for these lines.

- **Initialization commands**

This section initializes the simulations. The 'units' command specifies the units that will be used for the remainder of the simulation. The 'dimension 3' command specifies a three-dimensional simulation cell will be used (2-D is also an option). The 'boundary p p p' specifies periodic boundaries in the x-, y-, and z-direction.

```
# ----- INITIALIZATION -----  
units          metal  
dimension     3  
boundary      p p p  
atom_style    atomic
```

- **Atom definition commands**

There are two options to create an atom.

✓ **Create atom**

```
# ----- CREATE ATOMS -----  
lattice       fcc 4.05  
region        box block 0 1 0 1 0 1 units lattice  
create_box    1 box  
lattice       fcc 4 orient x 1 0 0 orient y 0 1 0 orient z 0 0 1  
create_atoms  1 box  
replicate     1 1 1
```

The 'lattice' command specifies what type of lattice is used (fcc, bcc, hcp, etc...) and the number following this specifies the lattice constant. The 'region' command specifies the simulation cell. Here, we have used lattice units and specified that the simulation cell box is to be 1 lattice unit in each direction. The 'create_box' command will use the parameters outlined in the 'region' command to actually create the box. The 'replicate' command can be used to replicate the periodic cell in each direction.

✓ read_data command

We can create atoms using the read_data command. It defines the structure using an extra file for reading atomic positions. This is one of ways to specify initial atom coordinates.

We define the file in the same directory, and we call it when running the simulation using the read_data command. (beta.data is the file containing the positions of Al/Mg/Si atoms)

```
read_data      beta.data
# ----- Create Groups of atoms -----
group         Mg      type      1
group         Al      type      2
group         Si      type      3
```

The data file include the number of atoms, atom types, the simulation box and the atomic positions, as explained in the figure below.

```
# File generated with VESTA by Hanae on 2018-07-03 13:34:47 ← Comments about the file
27744 atoms
2 atom types ← Number of atoms and atom types

0.00000000 186.42767000 xlo xhi
0.00000000 161.45109819 ylo yhi ← Simulation box
0.00000000 50.40099000 zlo zhi
-93.21383500 0.00000000 0.00000000 xy xz yz

Masses
1 24.30500000 # Mg
2 26.98153860 # Al

Atoms # atomic
1 1 2.74160532 1.58286657 8.18955606
2 1 2.74160532 1.58286657 16.89007736
3 1 0.00000000 6.33146627 8.18955606
4 1 0.00000000 6.33146627 16.89007736 ← Atomic positions
5 1 -2.74151210 11.07990452 8.18955606 ID atom-type X Y Z
6 1 -2.74151210 11.07990452 16.89007736
7 1 -5.48311742 15.82850422 8.18955606
8 1 -5.48311742 15.82850422 16.89007736
9 1 -8.22472273 20.57710392 8.18955606
10 1 -8.22472273 20.57710392 16.89007736
```

Fig. III. 1: Example of a read-data file to simulate an Al/Mg alloys.

- Force Fields

```
# ----- DEFINE INTERATOMIC POTENTIAL -----
pair_style      meam
pair_coeff * * library.meam MgS AlS SiS MgAlSi.meam MgS AlS SiS
neighbor        2.0 bin
neigh_modify    delay 10 check yes
```

The 'pair_style' command specifies what kind of interatomic potential will be used, while the 'pair_coeff' specifies the file that the pair potential coefficients are stored in. the potential extension can sometimes give a clue as to which format is being used.

'neighbor' command sets parameters that affect the building of pairwise neighbor lists.

'neigh_modify-delay' says to build a new neighbor list after 10 steps of building the last one.

- Potential file structure

To execute the input script we need also a potential file. In our case, we used EAM and MEAM potentials. There are several sites that distribute and document potentials stored in many formats. The NIST, maintained by Chandler Becker, is a good resource for information on interatomic potentials and file formats.

<http://www.ctcms.nist.gov/potentials>

<http://cst-www.nrl.navy.mil/ccm6/ap>

<http://enpub.fulton.asu.edu/cms/potentials/main/main.html>

✓ EAM potential

Style 'eam/alloy', computes pairwise interactions for metals and metal alloys using Embedded Atom Method (EAM) potentials [7]. In the alloy case, the potential files contain explicit tabulated values for alloy interactions. They allow for modeling alloys. As an example, EAM potential file for Al-Mg alloy, named as *MgAl.eam.alloy*, is presented below:

```
Potential generated by PoCo (FE) on 95/05/22 at 14.12.00
Magnesium (Z= 12)Aluminum (Z= 13)
 2 Mg Al
500 .2404809619238477E-02 500 .1338677354709419E-01 .6680000000000000E+01
 12 24.305 3.1960 HCP
.0000000000000000E+00 -.9482628972829496E-02 -.1873285476699669E-01 -.2775377565590185E-01 -.3654839882526627E-01
-.4511986678820264E-01 -.5347132864385917E-01 -.6160584340262728E-01 -.6952645509861573E-01 -.7723635948530654E-01
-.8473865483609995E-01 -.9203632021967051E-01 -.9913256870167847E-01 -.1060305069457712E+00 -.1127331626728015E+00
-.1192436568144096E+00 -.1255651395160846E+00 -.1317006829794434E+00 -.1376533243449344E+00 -.1434262530684745E+00
-.1490225674234641E+00 -.1544452718146874E+00 -.1596975481243756E+00 -.1647825088634955E+00 -.1697031997451033E+00
-.1744627252052224E+00 -.1790642338927554E+00 -.1835108086576167E+00 -.1878054848324496E+00 -.1919514430326785E+00
-.1959517815317038E+00 -.1998095275274916E+00 -.2035278368046994E+00 -.2071098252808198E+00 -.2105587327628716E+00
```

Fig. III. 2: EAM potential file for Al/Mg alloy.

✓ MEAM potential

Style 'meam', computes pairwise interactions for a variety of materials using Modified Embedded Atom Method (MEAM) potential [8]. Conceptually, it is an extension to the original EAM potential, which adds angular forces. It is suitable for modeling metals and alloys with fcc, bcc, hcp and diamond cubic structures. Only a single 'pair_coeff' command is used with the meam style, which specifies two MEAM files, MEAM parameter file and MEAM library file to extract information for.

As an example, the MEAM library file provided with LAMMPS has the name potentials/library.meam. It has generic MEAM settings for a variety of elements. The potentials/AlMgSi.meam file has specific parameter settings for an Al and Mg alloy system.

```
# MEAM Al, Si, Mg alloy potential, Phys. Rev. B 85, 245102 (2012)
# http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.85.245102
# to be used with "meamf" file providing single element parameters
Cmin(1,1,1) = 0.8
repuls(1,1) = 0.1
Cmin(3,3,3) = 0.8
Cmin(4,4,4) = 0.8
Cmin(5,5,5) = 0.68
repuls(5,5) = 0.3
Cmax(5,5,5) = 1.9
nn2(1,1)=1
nn2(1,2)=1
nn2(1,3)=1
nn2(1,4)=1
nn2(1,5)=1
nn2(2,2)=1
nn2(2,3)=1
nn2(2,4)=1
nn2(2,5)=1
nn2(3,3)=1
nn2(3,4)=1
nn2(3,5)=1
nn2(4,4)=1
nn2(4,5)=1
nn2(5,5)=1
.....
```

Fig. III. 3: *AlMgSi.meam* parameter file for Al/Mg/Si alloys.

This *AlMgSi.meam* potential file should be used with *AlSiMgCuFe library.meam*

```
# MEAM Al, Si, Mg, Cu, Fe alloy potential, Phys. Rev. B 85, 245102 (2012)
# http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.85.245102
# to be used with "meam.alsimgcuFe" file providing combinational parameters
# elt      lat      z      ielement  atwt
# alpha    b0      b1      b2      b3      alat      esub      asub
# t0      t1      t2      t3      t3      rozero    ibar

'MgS'      'hcp'    12.     12      24.305
5.52      4.0     3.0     0.2     1.2  3.194  1.51     0.80
1.0       10.04   9.49    -4.3    0.63    0

'AlSi'     'fcc'    12.     13      26.9815
4.64      2.04    3.00    6.0     1.50  4.05    3.353    1.07
1.0       +4.50   -2.30   8.01    1.0     -5

'SiSi'     'dia'    4.      14      28.086
4.87      4.4     5.5     5.5     5.5  5.431  4.63     1.
1.0       2.05    4.47    -1.80   2.2     -5
```

Fig. III. 4: MEAM *library.meam* file for Al/Mg/Si alloys.

- Define Settings

```
# ----- DEFINE SETTINGS -----  
compute    eng all pe/atom  
compute    eatoms all reduce sum c_eng
```

Computes calculate one of three styles of quantities: global (e.g. the temperature of the system), per-atom (e.g. the kinetic energy of each atom), or local (e.g. a list of bond distances).

Here, two computes are defined. In the first 'compute' command, a variable named 'eng' is defined to store the potential energy for each atom. In the second 'compute' command, a variable named 'eatoms' is defined to store the sum of all 'eng' values.

- Equilibration

```
#-----EQUILIBRATION-----  
reset_timestep    0  
timestep          0.001  
velocity          all create 300 12345 mom yes rot no  
fix               1 all nvt temp 300 300 0.20
```

It's now time for simulation to actually run, which begins with the energy equilibration. The alloy simulated has to be equilibrated to constant energy before the deformation.

The 'reset_timestep' does just that. The 'timestep' command set the timestep size. 'velocity' command set or change the velocities of a group of atoms in one of several styles. We use 'fix' command to control the temperature of the system under a NVT or NPT ensemble.

- Minimization

```
# ----- MINIMIZATION -----  
min_style          quickmin  
minimize           1.0e-10 1.0e-10 10000 1000
```

Energy minimization (molecular statics), is performed using the minimize command. Perform an energy minimization of the system, by iteratively adjusting atom coordinates.

The minimization algorithm used is set by the 'min_style' command. Styles can be described by cg or cg/kk or hftn or sd or quickmin or fire or spin. The 'minimize' command starts the minimization.

- Thermo output

```
#-----SET THERMO OUTPUT-----  
thermo          1000  
thermo_style    custom step temp pe ke etotal press vol lx ly lz pxx pyy pzz pxy pxz pyz  
run             20000
```

The 'thermo' specifies the output during minimization. The 'thermo_style' specifies what type of output and parameters are shown on the screen.

```
#-----storing initial length for strain calculations -----  
variable        tmp equal "lx"  
variable        L0 equal ${tmp}  
print           "Initial Length, L0: ${L0}"
```

During the equilibration and minimization process for energy and pressure, the original length of the material changes by a small value, but we want to have the original measurements before we could run the deformation on it. Therefore, this section stores the initial length of the material simulated. Strain rate must be defined for the simulation to run.

- Deformation

```
#-----DEFORMATION-----  
reset_timestep  0  
variable        srate equal 3.0e10  
variable        srate1 equal "-v_srate / 1.0e12"  
fix             2 all deform 1 x trate ${srate1} units box remap x
```

A variable command is defined as:

variable name style args ...

a- name = name of variable to define, This “name” is the arbitrary string that is the 1st argument in the variable command.

b- style = delete or index or loop or world or universe or uloop or string or format or get env or file or atom file or python or internal or equal or vector or atom.

Variables can thus be useful in several contexts. This command assigns one or more strings to a variable name for evaluation later in the input script or during a simulation.

Variables of style atom store a formula which when evaluated produces one numeric value per atom, which can be output to a dump file or used as input to an averaging fix.

- **Stress-Strain Output**

Output strain and stress, for units metal, pressure [bars] = 100 [kPa]= 1/10000 [GPa], p2, p3, p4 are in GPa

```
variable strain equal "(lx - v_L0)/v_L0"
variable p1 equal "v_strain"
variable p2 equal "-pxx/10000"
variable p3 equal "-pyy/10000"
variable p4 equal "-pzz/10000"
fix def1 all print 100 "${p1} ${p2} ${p3} ${p4}" file AlMgSi_comp_100.defMEAM.txt screen no
```

This section prints these values to screen and to the log.lammps file. The '\${' is used to insert the variables defined earlier. Print a text string to the screen and log file.

If the text string contains variables, they will be evaluated and their current values printed.

- **Visualization**

```
#-----VISUALIZATION FILE-----
dump 1 all atom 1000 dump.AlMgSi.comp_*.lammpstrj
# -----Display thermo-----
thermo 1000
thermo_style custom step v_strain temp v_p2 v_p3 v_p4 ke pe press
run 20000
```

'dump' command is used to save the images either as a sequence of JPEG or PNG or PPM files, or as a single movie file every N time steps in one of several styles.

The options for this command as well as the 'dump_modify' command control what is included in the image or movie and how it appears. A series of such images can easily be manually converted into an animated movie of your simulation or the process can be automated without writing the intermediate files using the dump movie style.

Other dump styles store snapshots of numerical data associated with atoms in various formats. The dimensions of the simulation box are included in each snapshot.

b. Running a simulation

To run your file in windows use this command: 'lmp_serial.exe -in file's name.in'

```
#-----SIMULATION DONE-----  
print "All done"
```

If the simulation completes, then it will type "All done!".

As the result of simulation, we end up getting dump, deform folders, log files and other files which can be used for post-processing.

c. LAMMPS output script

As discussed previously, LAMMPS gives a variety of ways to determine what quantities are computed and printed when the thermodynamics, dump, or fix commands listed above perform outputs. As LAMMPS reads an input script, it prints information to both the screen and a log file about significant actions it takes to setup a simulation. After a successful execution of the simulation, the LAMMPS results can be displayed in several output files:

- a. **DUMP file:** Containing the atomic coordinates of the final structure after simulation and for deformation studies it contains the stress component values.

```
ITEM: TIMESTEP  
0  
ITEM: NUMBER OF ATOMS  
12672  
ITEM: BOX BOUNDS xy xz yz pp pp pp  
-13.9761 119.404 0  
0 30.7676 -13.9761  
0 100.072 0  
ITEM: ATOMS id type xs ys zs  
5 1 0.0598068 0.0625346 0.319178  
14 1 0.0591171 0.190045 0.318957  
22 1 0.0607612 0.311771 0.250729  
23 1 0.0594859 0.313705 0.319481  
32 1 0.0580735 0.439272 0.319814  
41 1 0.057514 0.563972 0.319145  
49 1 0.0621198 0.687293 0.250436  
50 1 0.0577321 0.687614 0.318769
```

Fig. III. 5: Example of Dump file.

- b. **RDF file:** contains coordination values of atoms and radial distribution function values. RDF or Radial Distribution Function is a measure of arrangement of atoms in the material.

- c. **Log file:** using log command, a new file with a specified name begins logging information to it. It contains thermodynamic data e.g temperature, pressure, volume, and total energy after a particular number of steps.

The default LAMMPS log file is named “log.lammps”.

```
LAMMPS (6 Apr 2015-ICMS)
WARNING: OMP_NUM_THREADS environment is not set. (../comm.cpp:89)
  using 1 OpenMP thread(s) per MPI task
# Input file for uniaxial compressive loading of aluminum
# ----- INITIALIZATION -----
units          metal
dimension      3
boundary       p p p
atom_style     atomic
read_data      beta.data
  triclinic box = (0 0 0) to (119.404 30.7676 100.072) with tilt (0 -13.9761 0)
  1 by 1 by 1 MPI processor grid
  reading atoms ...
  12672 atoms
# ----- CREATE GROUPS OF ATOMS -----
group          Mg          type          1
2304 atoms in group Mg
group          Al          type          2
3456 atoms in group Al
group          Si          type          3
6912 atoms in group Si
# ----- SETUP INTER ATOMIC POTENTIAL-----
pair_style     meam
pair_coeff * * library.meam MgS AlS SiS MgAlSi.meam MgS AlS SiS
```

Fig. III. 6: Example of log.lammps file after running a simulation.

d. Visualization Tools for Molecular Dynamics Simulation

✓ VESTA

To visualize CIF files and to build several initial cell structure of our alloys we used VESTA [9]. VESTA is a three-dimensional visualization system for crystallographic studies and electronic state calculations.

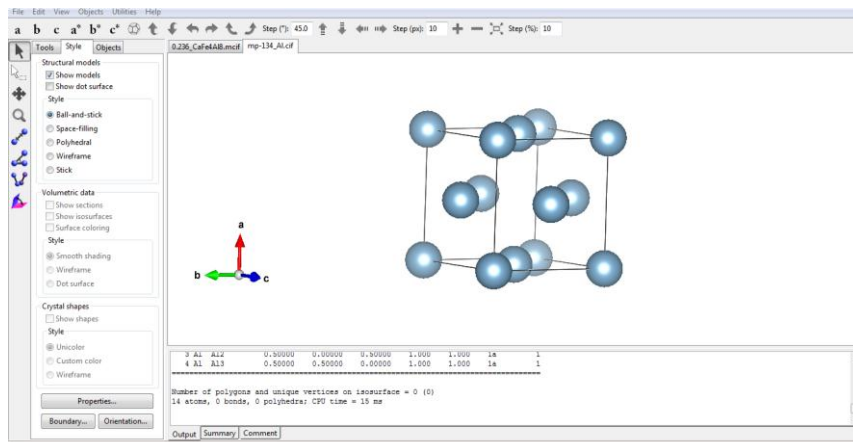


Fig. III. 7: Visualization Electronic and STructural Analysis-VESTA- program window screenshot.

✓ OVITO

In order to visualize the evolution of the microstructure and the local atomic arrangements during the deformation, and to gain better insights into materials phenomena and physical processes, we have used OVITO software [10]. It is a scientific 3D visualization and analysis software for atomistic and particle simulation results. It helps to give a simple representation of atoms, molecules and of the connections between them.

The program is an open Source and freely available in the platforms <https://ovito.org/>.

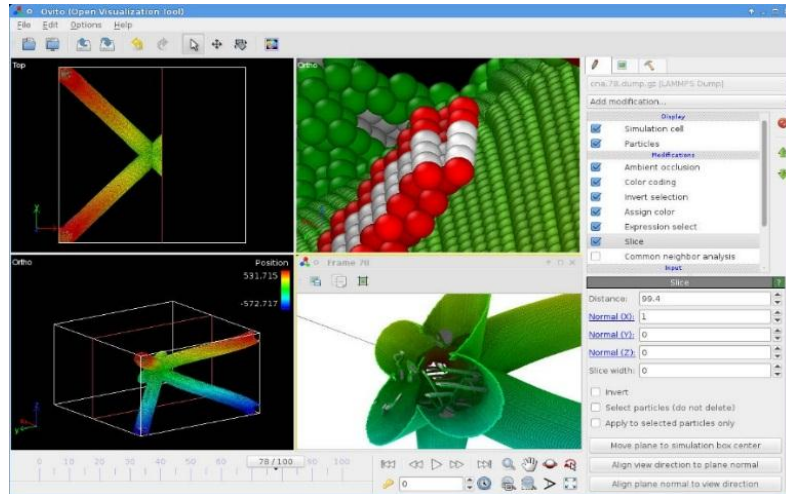


Fig. III. 8: Open Visualization Tool -Ovito- program window screenshot.

This is a tutorial for running a molecular dynamics simulations using LAMMPS on a Windows or Linux machine. It illustrate the input files, the command used for running, the output files obtained, the visualization and analysis software we rely on, to analyze and interpret our simulation results.

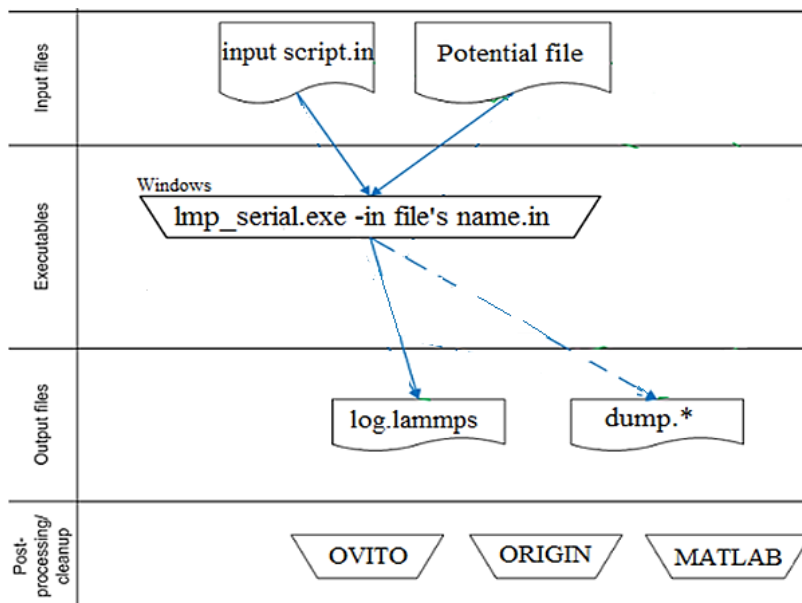


Fig. III. 9: Workflow for running atomistic simulations

LAMMPS can give results in several systems of units: "LJ", "real", "metal", "cgs". In this thesis, we used the "metal" units shown in the following table.

Table III. 1: Units « métal » in the LAMMPS code.

Quantities	Units
Masse	g/mole
Distance	Angströms (Å)
Time	Picoseconde (ps)
Energy	Electronvolts (eV)
Velocity	Angströms/picosende (Å/ps)
Temperature	Kelvin (K)
Pressure	bars
Density	g/cm ³

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons décrit en détails les méthodes de simulation moléculaire. Nous avons défini le code de simulation, LAMMPS, utilisé dans cette thèse pour modéliser les alliages d'Aluminium dans la suite de ce rapport. Nous avons identifié les fichiers nécessaires pour réaliser une simulation de dynamique moléculaire, fichier du potentiel, le script d'entrée, script de sortie et chacune des composantes en détails.

Nous avons discuté chaque commande dans le script d'entrée et des différents fichiers obtenus à la sortie après l'exécution du fichier d'entrée. Nous avons également défini les outils de visualisation et d'analyse des données de simulation moléculaire.

References Ch. III

- [1] D. Frenkel, & B. Smith, Understanding molecular dynamics simulation from algorithms to applications, 2^{ème} edition, Academic Press, San Diego, London, Boston, New York, Sydney, Tokyo, Toronto, 1996, p. 63-67.
- [2] D. C. Rapaport, The Art of Molecular Dynamics Simulation, Cambridge University Press, 2^{ème} edition, 1 avril 2004, p. 564.
- [3] L. Verlet, Computer 'Experiments' on classical fluids. I. thermodynamical properties of Lennard-Jones Molecules, physical Review, 1967, 159(1), 98-103.
- [4] D. C. Rapaport, The Art of Molecular Dynamics Simulation, Cambridge University Press, 2^{ème} edition, 1 avril 2004, pp. 481-505.
- [5] M. P. Allen & D. J. Tildesley, Computer Simulation of liquids, Oxford: Clarendon Press; New York: Oxford University Press, 1989, p. 385.
- [6] S. Plimpton, Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics, Journal of Computational Physics, 1995; 117(1): 1-19.
- [7] M.S. Daw, M.I. Baskes. Embedded-atom method: Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals J. Physical Review B. 1984, 29(12):6443-6453.
- [8] M.I. Baskes, Modified embedded-atom method potentials for cubic materials and impurities, Physical Review B, 46(5), 1992, p. 2727-2742.
- [9] K. Momma, F. Izumi, VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data, J. Appl. Crystallogr., 2011, 44(6): 1272-1276.
- [10] A. Stukowski, Structure identification methods for atomistic simulations of crystalline materials Model. Simul. Mater. Sci. Eng., 2012, 20(4): 045021.

Chapitre IV “MODELING ALUMINUM USING MOLECULAR DYNAMICS SIMULATION”

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats de simulation de l'Aluminium pur, nous cherchons donc à déterminer les propriétés mécaniques et microstructural de l'Aluminium pur, par des simulations à l'échelle atomique on utilisant deux types de potentiels, le potentiel EAM (Embedded Atom Method) et Leonard Jones, et comparer les résultats de la simulation avec la littérature, pour voir le plus convenable pour prédire le comportement de l'Aluminium pur et ses alliages pour nos prochaines simulations.

Résumé.

L'étude d'un matériau se fait par l'étude de ses propriétés mécaniques, chimiques, physiques et thermiques. Le module de masse comme l'une des propriétés mécaniques importantes des métaux ; la Fonction de Distribution Radiale (RDF) ; décrit comment la densité varie en fonction de la distance à une particule de référence ; sont calculés par la méthode de dynamique moléculaire. La boîte de simulation contient 4000 atomes d'Aluminium pur et deux fonctions de potentiel différentes sont utilisées, potentiels EAM et Leonard Jones, pour prédire le module de masse de l'Aluminium pur. Nous avons également calculé la Fonction de Distribution Radiale et la pression de rupture après la déformation appliquée. Par conséquent, toutes les simulations ont été effectuées à l'aide du code de dynamique moléculaire LAMMPS. Nous avons constaté que les fonctions potentielles de deux corps peuvent prédire le module de masse de l'aluminium en accord avec les données expérimentales.

Mots clés : Dynamique moléculaire, Module de masse, Fonction de potentiel, Fonction de Distribution Radiale, LAMMPS, Aluminium.

Abstract.

The study of a material is done by the study of its mechanical, chemical, physical and thermal properties. The bulk modulus as one of the important mechanical properties of metals; the Radial Distribution Function; describes how the density varies as a function of the distance to a particle of reference; are calculated using molecular dynamics simulation method. The box of simulation contains 4000 atoms of pure Aluminum and two different potentials functions are utilized to predict the bulk modulus for pure Aluminum. We have also calculated the Radial Distribution Function, and the rupture pressure Therefore, all simulations were performed with the use of the code of molecular dynamics LAMMPS. We found that the potential functions to two body can predict the bulk modulus of aluminum in agreement with the experimental data.

Keywords: Molecular Dynamics, Bulk modulus, Potential function, Radial Distribution Function, LAMMPS package, Aluminum.

Introduction

La dynamique moléculaire (MD) est une simulation des mouvements physiques des atomes et des molécules. On laisse les atomes et les molécules interagir pendant un certain temps, pour avoir une idée sur le mouvement des atomes. Les équations du mouvement sont résolues numériquement : les équations de Newton pour un système de particules en interaction pour suivre l'évolution temporelle du système, permettant la dérivation des propriétés cinétiques et thermodynamiques. Il existe plusieurs types de fonctions potentielles qui sont utilisées dans la simulation de la dynamique moléculaire telles que Lennard Jones (LJ), la méthode de l'atome embarqué (EAM), la méthode de l'atome embarqué modifié (MEAM) et Tersoff qui sont utilisées dans différents systèmes selon l'application.

Pour diverses applications mécaniques, la prédiction des propriétés mécaniques de l'Aluminium est une question de grande importance. Divers alliages d'Aluminium de différentes compositions chimiques et de différentes microstructures sont utilisés dans les industries, tandis que les méthodes les plus courantes pour obtenir leurs propriétés sont des expériences qui demandent du temps et de l'argent [1-2]. Une grande part de la recherche et du développement concerne l'innovation de nouveaux alliages d'Aluminium [3]. Récemment, la méthode de dynamique moléculaire a été largement utilisée pour l'estimation des propriétés mécaniques des alliages d'Aluminium. Dans cet article, nous avons fourni la simulation d'une traction de l'Al pur par dynamique moléculaire afin de prédire le comportement mécanique à partir de la courbe contrainte-déformation et de calculer les paramètres physiques comme le bulk modulus, Fonction de Distribution Radiale et la pression de rupture ; ainsi que de comparer les résultats obtenus à partir de deux potentiels différents (LJ, EAM). Nous avons constaté que le potentiel EAM est le plus approprié pour prédire le Bulk modulus de l'Al pur et de ses alliages.

La simulation permet l'exploration d'un large éventail de propriétés, et elle est capable de traiter des conditions qui sont difficiles à observer directement dans l'expérience, ce qui a pour résultat de fournir un complément précieux à l'investigation pratique. Dans ce contexte, nous utilisons le logiciel LAMMPS Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator <http://lammps.sandia.gov/index.html> (Sandia National Laboratories).

Ce document est organisé comme suit. Dans la première partie, nous faisons un bref rappel du module de masse et une description de l'Al pur ; dans la deuxième partie, nous présentons les résultats obtenus.

Introduction

Molecular dynamics (MD) is simulation of physical movements of atoms and molecules. The atoms and molecules are allowed to interact for a period, giving a view of the motion of the atoms. The equations of motion are solved numerically the Newton's equations for a system of interacting particles to follow the time evolution of the system, allowing the derivation of kinetic and thermodynamic properties. There are several kinds of potential functions that are used in molecular dynamics simulation such as Lennard Jones (LJ), Embedded Atom Method (EAM), Modified Embedded Atom Method (MEAM), and Tersoff which are used in different systems depending on the application. For variety of mechanical applications, the prediction of mechanical properties of Aluminum is the question of great importance. Thousands of aluminum alloys with different chemical compositions and different microstructures are used in the industries while the most common methods to obtain their properties are time and money consuming experiments [1-2]. An important part of researches and development involve the innovation of new aluminum alloys [3]. Recently MD method has been extensively used for estimation of mechanical properties of aluminum alloys with different chemical compositions. In this paper, we have provided molecular dynamics simulation for calculating bulk modulus of pure aluminum and compared results of two different common potentials (LJ, EAM). We have found that EAM potential is the most appropriate potential to predict the bulk modulus of pure aluminum and its alloys.

Simulation permits the exploration of a wide range of properties, and it is able to address conditions which are difficult to be observe directly in experiment, this results in to providing a valuable complement to practical investigation.

In this contest, we use LAMMPS software Large-scale Atomic / Molecular Massively Parallel Simulator <http://lammmps.sandia.gov/index.html> (Sandia National Laboratories).

This paper is organized as follows. In the first part, we give a brief recap of the bulk modulus and a description of pure aluminum; in the second part, we present results obtained.

IV.1. Materials & methods

IV.1.1. Aluminum

In general, materials and metals in particular hold an important place in many industrial development or technological progress [3]. Aluminum is the second widely used metal in different fields like industry; due to its desirable chemical, physical and mechanical properties and it represents an important category of technological materials. The following table shows the aluminum characteristics in the ambient temperature:

Table IV. 1: Identity card of pure Aluminum [4].

Aluminum Identity Card	
Symbol	Al
Atomic number	13
Atomic mass	27 g/mole
Structure	FCC
Melting temperature	660°C
Boiling temperature	2056°C
Bulk modulus	68 GPa
Lattice parameter	4.04912 Å
Young's modulus	69 GPa

These properties mean that the aluminum is used extensively in its pure state or more precisely in its unalloyed state (in most developed countries more than 40% of aluminum consumption takes place in the pure state) [5].

The Fig. IV.1 shows the initial crystal structure and atoms position of pure Aluminum simulated in this article before the tensile test according to VESTA [19] illustration.

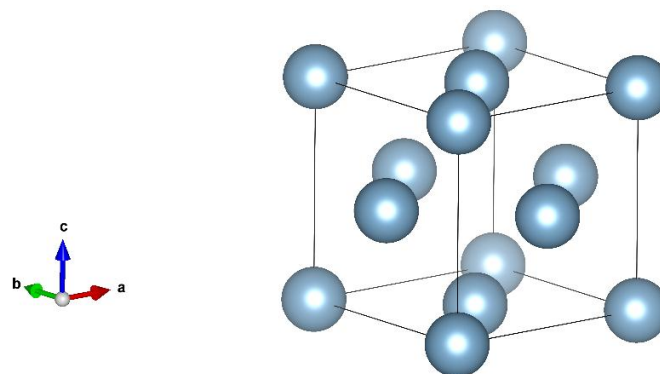


Fig. IV. 1: Cell structures model of pure Aluminum as illustrated using VESTA [19].

IV.1.2. Molecular dynamics

Molecular dynamics (MD) is the term used to describe the solution of the classical equations of motion (Newton's equations) for a set of molecules [6-7].

The motion of molecules is generally governed by Newton's equations of motion in classical theory. In MD simulations, particle motion is simulated on a computer according to the equations of motion. Molecular dynamics simulation provides the methodology for detailed microscopic modeling on the molecular scale [8].

Classical Molecular dynamics is a computer simulation technique where the time evolution of a set of interacting atoms and molecules of a system is followed by integrating their equations of motion. The atoms and molecules of the system are allowed to interact for a period of time giving a view of their motion. The trajectories of the interacting particles are determined by numerically solving Newton's equations of motion where forces between the particles and potential energy are defined by molecular mechanic force field.

For each atom i of mass m , we define the force F exerted by the whole system on this atom: [9].

$$F_i = m \frac{d^2 r_i}{dt^2} = m \times a_i$$
$$F_i = -\nabla_i V = \frac{-dV}{dr_i}$$

For this purpose, we need to be able to calculate the forces F_i acting on the atoms, and these are usually derived from a potential energy $V(r^N)$ where $r^N = (r_1; r_2; \dots; r_N)$ represents the complete set of $3N$ atomic coordinates.

IV.1.3. Lennard-Jones Potential

The potential of Lennard-Jones is a potential energy which serves to describe the interaction between two neutral atoms or molecules.

The empirical LJ function V^{LJ} describes the energy of dispersion interaction between atoms i and j that are separated by the distance r_{ij} , so V^{LJ} has the following form:

$$V^{LJ}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N) = 4\epsilon \left(\left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^6 \right)$$

According to the above form, ϵ is the depth of the potential and σ is the distance at which the interaction energy between particles is zero [10].

IV.1.4. EAM potential

The potential Embedded Atom Method (EAM) is widely used in molecular dynamics simulations for modeling metals and alloys; it is an approximation that describes the energy between atoms. The EAM was developed by Daw and Baskes [11]. Moreover, the energy is a function of a sum of functions of the separation between an atom and its neighbors. EAM is related to the second moment approximation to tight binding theory; these models are particularly appropriate for metallic systems.

The latter functions represent the electron density. The total energy of the system as two additive terms are pairwise sum of interactions between atoms and a term representing the electron density of each atomic site as shown in the equation below:

$$E_i = \sum_i F_i(\rho_{h,i}) + \frac{1}{2} \sum_i \sum_{j \neq i} \Phi_{ij}(r_{ij})$$
$$\rho_{h,i} = \sum_{i \neq j} \rho_j(r_{ij})$$

The total energy in potential of the EAM E_i consists of two parts, a pair potential $\Phi_{ij}(r_{ij})$, and $F_i(\rho_{h,i})$; the latter is the embedded function for atom i which depends on the electron density $\rho_{h,i}$ expressed by that atom i and j indicate the unique pairs of atoms within the N atoms of the system, r_{ij} is their interatomic separation and $\rho_j(r_{ij})$ is the density function [12].

IV.1.5. Characters

a. Bulk modulus

The Bulk modulus of a substance is a measure of the compressibility of this substance. An object will be compressed in all directions when it is under pressure on all surfaces, so this pressure reduces the volume of a material. To compress liquids and solids, you must actually compress their atoms and molecules; since a compression of the entire object is equivalent to compressing each of its three dimensions. Therefore, the bulk modulus B is a measure of the ability of a substance to withstand changes in volume while under compression in all sides. The change in volume is proportional to the force per unit area and its original volume, and it is related to the compressibility of the substance. Bulk modulus is the ratio of the pressure variation to the relative variation of the volume.

The relationship of the Bulk modulus to other physical quantities is explained in the expression below [13].

$$B = -\Delta P \cdot \frac{\Delta V}{V_0}$$

$$\Delta V = V_0 - V$$

Where:

ΔV : is standard deviation of instantaneous volume.

ΔP : Pressure difference in GPa

B: Bulk modulus in GPa

ΔV : Volume change

V: Volume after compression

V_0 : Initial volume

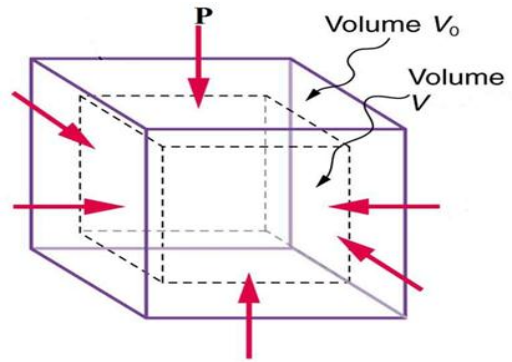


Fig. IV. 2: Schematic describe the bulk modulus.

b. Radial Distribution Function (RDF)

The Radial Distribution Function (Pair correlation function) $g(r)$ in a particularly system (atoms, molecules, colloids, etc...), is the most important structural quantities characterizing a system [14]; describes how the density varies as a function of the distance to a particle of reference.

If a given particle is considered to be the origin O and if ρ is the average density in number of particles, then the density local average as a function of time at a distance r from O is $g(r)$. It is a measure of the probability of finding a particle at a distance of the distance a particle is given in reference, in comparison to that of an ideal gas.

The Radial Distribution Function provides information on the radial distribution of a type element around a component considered.

The functions of the radial distributions FDR are evaluated by the following equation [15-16]:

$$g(r) = 4\pi r^2 dr$$

IV.1.6. Computer Packages

a. Background LAMMPS

LAMMPS (Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator) [20] is a classical molecular dynamics code. It was developed at Sandia National Laboratories, which is under United States Department of energy. It is distributed in the form of open source code under the GNU General Public License.

b. Visualization of the system

We have used a scientific visualization and analysis software for atomistic and particle simulation data Ovito [21]. It gives a simple representation of atoms and of the connections.

The software is Open Source and freely available in the platforms <https://ovito.org/>.

IV.2. RESULTS AND DISCUSSION

IV.2.1. Structure

In this research, we carried out molecular dynamics simulation deformation studies of pure Aluminum by traction. The effect of composition and strain rate were investigated. The following paragraphs describe the methods of creation of crystalline alloys and their analysis by radial distribution function followed by indentation studies of the alloys.

The molecular dynamics simulations were conducted with the software LAMMPS which has been adapted to calculate the bulk modulus. The traction applied to the pure aluminum and estimated the radial distribution function; we used two potentials (EAM and LJ).

In the first part, we have considered 4000 atoms of pure Al; we used two types of potentials with periodic boundary conditions in a FCC lattice configuration. Then we start to run simulation with temperature of 300K at 100 [kPa] pressure, with time step of 10 femtoseconds and the simulation continuous for 0.001 time steps. We apply an artificial deformation force to a FCC Al, we used LAMMPS to calculate the Al FCC bulk modulus, and we measure stress/strain relationship and the Radial Distribution Function.

The atomic structure of metals and their conditions of crystallization strongly influences the mechanical behavior resulting in the solid state. In the case of pure Aluminum, the following figure describes atomic organization of pure Aluminum to three dimensions before and after deformation.

The Fig. IV. 3 shows a typical configuration from the simulation. In this case, the Aluminum system was described with Ovito software [21]. We can conclude that, in this simple simulation, the microstructure of pure Al changes after traction.

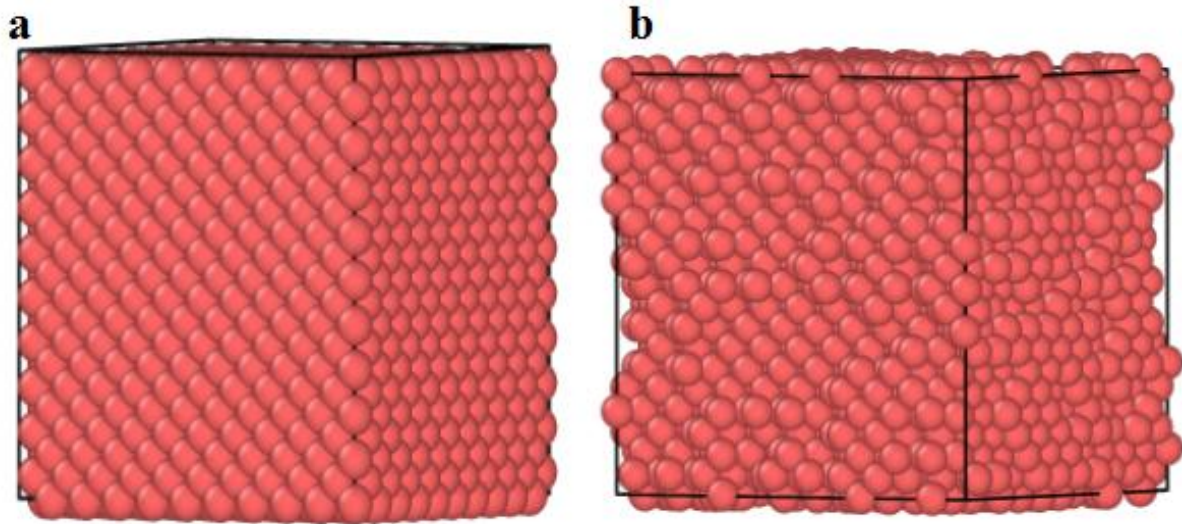


Fig. IV. 3: Atomic structure of pure Aluminum: (a) represents the structure before the deformation, (b) after the deformation.

After the deformation, the crystal structure of pure Aluminum changed, the following table presents the percentages of each structure after deformation.

The atoms during deformation change their crystal structure. This effect is observed by the calculations made by both potentials EAM and LJ.

Table IV. 2: Percentages of each structure after deformation.

Potentials	FCC	HCP	BCC	Others
EAM potential	74	2.3	0.4	23.3
LJ potential	49.9	50	0.1	0

IV.2.2. Stress-strain behavior

The simulation is performed using molecular dynamics after constructing the model and stabilized it for the tensile test. This template allows us to predict the mode of deformation as well as the resulting rheology at the atomic scale.

The issue is to simulate the aluminum using two potentials to represent the graph of deformation.

In the case of pure Aluminum, we obtain the stress strain graph below. According to this graph, pure aluminum has only an elastic deformation, the linear part, and the non-linear part represents the rupture of the material, for the two potentials there is no elongation at rupture. During the traction, the deformation of Aluminum appears in the early stages.

The Fig. IV. 4 shows that atoms are distorted from the beginning of the test and begin to deform locally, this phenomenon is reproduced for the two types of potential.

The constraint is evolving more regularly in function of the strain, as observed on the graph we can conclude that in pure Aluminum plastic deformation appears very early and gradually. From which the crystalline phase begins to be distorted. This decrease is the result of the destruction of the material.

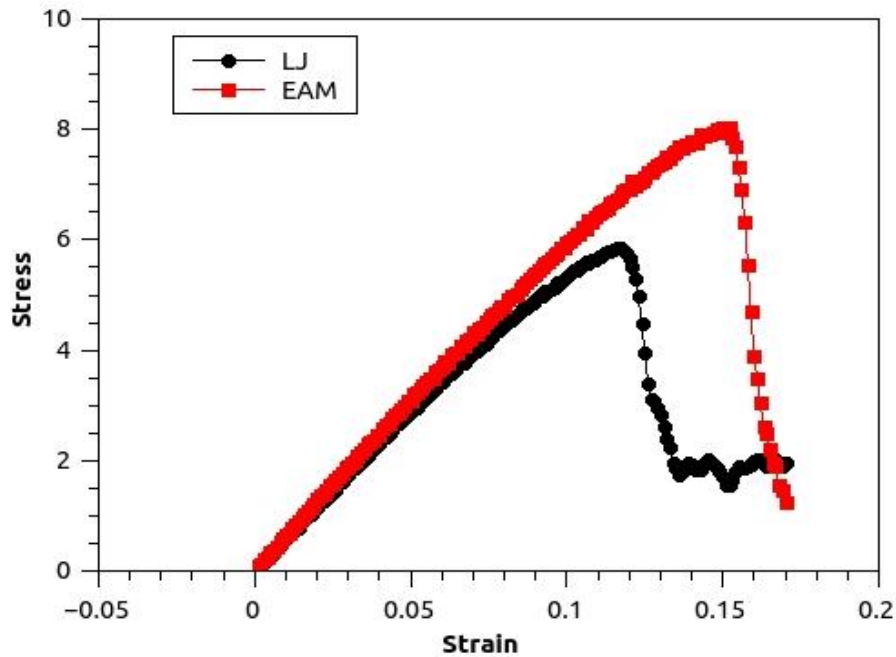


Fig. IV. 4: Stress-strain graph established according to the measurements made during the deformation

As shown in the graph, when we change the potential we have had a change of the bulk modulus from change of the module of Hooke and the pressure of rupture that was obtained from the potential LJ. The latter is different to the one that was obtained by the potential EAM.

a. Bulk modulus

It determines the strength of rupture of a tube of the alloy by a tensile test; the values of the bulk modulus and the pressure of rupture for pure aluminum are given in Table IV. 3.

The potential depends on the pressure applied; therefore, when we changed the potential, the force applied on the material changes the pressure of rupture.

As shown in Table IV. 3, the bulk modulus is in good agreements with experimental data, taking into account both types of potentials, [17]. Therefore, as we expected the LJ and the EAM potential are appropriate for predicting the bulk modulus of Aluminum. This result means that simulations are able to describe the behavior of Aluminum.

Table IV. 3: The bulk modulus and the pressure of rupture for pure aluminum.

	Bulk modulus (GPa)	Rupture pressure
LJ potential	58	5.85
EAM potential	59	8.03
Experimental value	68	-

b. Radial Distribution Function (RDF)

Radial Distribution Function is measure of arrangement of atoms in material. The atomic RDF $g(r)$ shows peaks corresponding to the inter-atomic distances existing in the material. It can provide information for both the average structure and the local atomic arrangement. It allows for a direct analysis of the inter-atomic distance and atomic displacements without prior knowledge of the structure. It also gives a measure of crystalline nature of a material. So, more is the close packing, more peaks of higher values will be observed at lower radial distances.

In the second part, we use EAM and LJ potentials function to simulate and calculate Radial Distribution Function Al-Al in function of the distance of a system of 4000 atoms. These functions correspond to the radial density of the atoms of type β around the atoms of type α . The results are presented in figure IV. 5.

As shown in Fig. IV. 5, It can be noted that the FDRs Al-Al of the system obtained by the potential EAM is different to the one obtained by the potential LJ; it is observed that there is oscillations after the first peak of the two graphs indicating the existence of a sequence more marked. The first peaks are higher and finer, which characterizes a more interesting local order. Moreover, as the peak is different on the two graphs, therefore, we find that the distance Al-Al is in function of the potential. For the potential EAM, the first peak appears at a distance of 3\AA , but for the potential LJ the oscillations have appeared at to 2.4\AA of the simulated Aluminum. The peak means that it is the greatest probability of distance Al-Al and this result is in agreement with the experimental results for Al-Al [18]. This distance binds the more frequently of the two atoms, and the first maximum of the radial distribution functions corresponds to the length of the interatomic connection the more probably.

Except for the systems Al-Al of 4000 atoms, the main differences between the two types of potential: the position of the maxima of the FDRs calculated is 4.3\AA by the use of EAM and 6\AA by the use of the potential LJ.

The Fig. IV. 5 shows the interatomic distance Al-Al of the system of 4000 atoms; the first maximum of the FDR corresponds to the length of the interatomic connection the more probably. In the sense, the position of the maxima of the FDRs Al-Al is respectively 4.3 and 6.

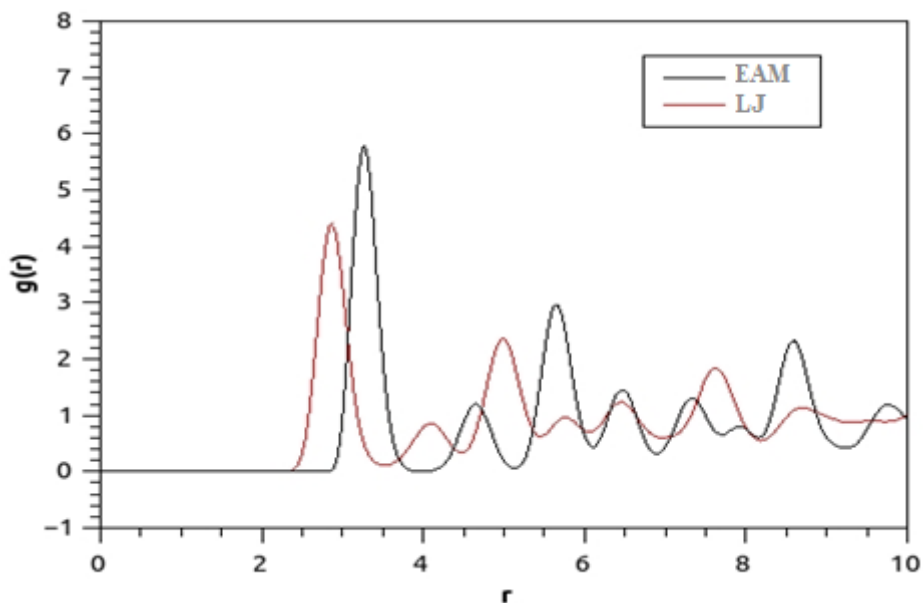


Fig. IV. 5: Radial distribution function of pure aluminum in function of the distance between two atoms calculated in molecular dynamics by EAM potential (red) and Leonard-Jones (black).

Table IV. 4: Distances interatomic obtained from the FDRs of the system Al-Al.

	Distance interatomic (Å)
LJ potential	2.4
EAM	3
Experimental values	3.24

Moreover, the results obtained are compared with experimental measurements from literature. Looking at Table IV. 4, we see that EAM potential is slightly more accurate than the LJ potential, for pure Aluminum.

Summary

In summary, in order to better understand the deformation mechanism, Molecular Dynamics simulation was performed with two types of potentials, for pure Al during deformation.

The modeling of the traction of pure Aluminum by Molecular Dynamics allows us to predict the deformation mechanisms. It allows also, to conclude on details microstructural hardly accessible by other methods and to make the link with mechanical behavior microscopic in a small deformation.

As conclusion, it can be stated according to results obtained and compared with actual measurements, that the potential EAM and LJ potential are appropriate potential functions for predicting the bulk modulus, radial distribution function Al-Al, Interatomic distance and the rupture pressure of pure aluminum. It is also apparent from this study that the results obtained by EAM potential is more accurate than those obtained by LJ potential.

Conclusion

En résumé, afin de mieux comprendre le mécanisme de déformation mécanique, la simulation de dynamique moléculaire a été réalisée avec deux types de potentiels différents, pour l'Al pur pendant une déformation.

La modélisation de la traction de l'Aluminium pur par la dynamique moléculaire permet de prédire les mécanismes de déformation et de calculer les propriétés mécaniques. Il permet aussi, de conclure des détails microstructuraux difficilement accessibles par d'autres méthodes expérimentales et de rendre le lien entre le comportement mécanique lors d'une déformation et l'arrangement microscopique des atomes.

D'après les résultats de la simulation, on a pu calculer la Fonction de Distribution Radiale qui donne une idée sur la distance interatomique, le réarrangement des atomes et le changement de structure avant et après la déformation ; tracer la courbe contrainte-déformation en utilisant les deux potentiels ; et de prédire les paramètres mécaniques tels que le module de masse et la pression de rupture.

En conclusion, on peut affirmer, d'après les résultats obtenus et comparés aux mesures réelles, que le potentiel EAM et LJ sont des fonctions potentielles appropriées pour prédire le module de masse, la Fonction de Distribution Radiale Al-Al, la distance interatomique et la pression de rupture de l'Aluminium pur. Il ressort également de cette étude que les résultats obtenus par le potentiel EAM sont plus précis que ceux obtenus par le potentiel Lennard Jones.

References Ch. IV

- [1] S.C. Sharma, B. Girish, R. Kamath, and B.M. Sathish, Fractography, Fluidity, and Tensile Properties of Aluminum/Hematite Particulate Composites. *Journal of Materials Engineering and Performance*, 8(3), 1999, p. 309-314.
- [2] KHW Seah, S C Sharma, M Krishna, Damping Behaviour of Aluminium/Albite MMCs, *Journal of ASTM International*, vol. 3 (3), (2006), pp.1-7.
- [3] L. F. Mondolfo, *Aluminum Alloys Structures and Properties*, Butterworth, London, 12, 1976, 1-3.
- [4] J. Randolph Kissell, L. Robert Ferry, *Aluminum structures a guide to their specifications and design second edition*, John wiley & sons, New York, (1996), 18.
- [5] J. Randolph Kissell, L. Robert Ferry, *Aluminum structures a guide to their specifications and design second edition*, John wiley & sons, New York, 1996, 18.
- [6] M. P. Allen & D. J. Tildesley, *Computer Simulation of liquids*, Oxford: Clarendon Press ; New York : Oxford University Press, 1987, p. 385.
- [7] P. Dea, T. Frauenheim, & M. R. Pederson (eds.), *Computer Simulation of Materials at Atomic Level*, ISBN: 3-527-40290-X, Volume 1, 15 June 2000, p. 728.
- [8] D. C. Rapaport, *The Art of Molecular Dynamics Simulation second edition*, Cambridge University Press, 2^{ème} edition, 1 avril 2004, p. 11-14.
- [9] D. Frenkel, & B. Smith, *Understanding molecular dynamics simulation from algorithms to applications*, 2^{ème} edition, Academic Press, San Diego, London, Boston, New York, Sydney, Tokyo, Toronto, 1996, p. 63-67.
- [10] P. Guan, D. R. Mckenzie, B. A. Pailthorpe, *J. of Condens. Matter Phys.*, 8, 875, (1996).
- [11] M.S. Daw, M.I. Baskes. Embedded-atom method: Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals *J. Physical Review B*. 1984, 29(12):6443-6453.
- [12] S. M. Foiles, M. I. Baskes, M. S. Daw, Embedded-atom-method functions for the fcc metals Cu, Ag, Au, Ni, Pd, Pt, and their alloys. *Physical Review B*, 33(12), 1986, 7983–7991.
- [13] A. Rajabpour, L. Seidabadi, M. Soltanpour, Calculating the Bulk Modulus of Iron and Steel Using Equilibrium Molecular Dynamics Simulation, *Procedia Materials Science*, 11, 2015, 391-396.
- [14] H. Akbarzadeh, M. Abbaspour, Investigation of size dependence of the properties of Cu nanoclusters using molecular dynamics simulations. *Journal of Molecular Liquids*, 2016, 219, 158-164.

- [15] B. Widom, *Statistical mechanics a concise introduction for chemists*, Cambridge University Press, New York, (2002).
- [16] D. Cheng, J. Lan, Thermal behaviour of Pd clusters inside carbon nanotubes: insights into the cluster-size, tube-size and metal–tube interaction effects. *Molecular Simulation*. 36 (10), 2010, 805.
- [17] Oliver, W. C., & Pharr, G. M., An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments. *Journal of Materials Research*, 7(06), 1992, p. 1564-1583.
- [18] P. Ganster, Doctoral Thesis, University Montpellier II Sciences and Techniques of Languedoc, (2004).
- [19] K. Momma, F. Izumi, VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data, *J. Appl. Crystallogr.*, 2011, 44(6): 1272-1276.
- [20] S. Plimpton, Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics, *Journal of Computational Physics*, 1995; 117(1): 1-19.
- [21] A. Stukowski Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO-the open visualization tool *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.*, 18, 2010, p. 015012.

Chapitre V “COMPRESSION BEHAVIOR OF AL-MG PHASES, MOLECULAR DYNAMICS SIMULATION”

Dans ce chapitre, nous présentons les modifications existantes lors de l'addition du Magnésium (Mg) à l'Aluminium (Al) pur, et l'influence qui portera l'ajout du Mg sur la cinétique de transformation de phase, ses effets sur les propriétés mécaniques et la microstructure des alliages étudiés, par une simulation de dynamique moléculaire, lors d'une déformation élastique.

Résumé.

Le développement des alliages d'Aluminium sort toujours dans le processus de fabrication. Les alliages Al/Mg ont fait l'objet d'une attention particulière en raison de leurs excellentes propriétés mécaniques. L'évolution microstructurale et les mécanismes de déformation sont encore des questions difficiles, et il est difficile de les observer directement par des méthodes expérimentales. Par conséquent, dans cet article, des simulations atomiques sont réalisées pour étudier le comportement de compression uni-axiale des phases Al/Mg ; avec différents rapports du Mg allant de 31% à 56%. La compression appliquée est à la même vitesse de déformation (3.10^{10} s^{-1}), à la même température (300K) et à la même pression, en utilisant le potentiel de la méthode des atomes intégrés (EAM) pour modéliser les interactions et le comportement de déformation entre l'Al et le Mg.

A partir des simulations, nous obtenons la Fonction de Distribution Radiale ; les courbes de contrainte-déformation pour décrire les comportements élastique et plastique des phases β - Al_3Mg_2 , ε - $\text{Al}_{30}\text{Mg}_{23}$, Al_1Mg_1 et γ - $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ avec, respectivement, 31, 41, 50 et 56% de Mg ajoutés à l'Aluminium pur. Les propriétés mécaniques, telles que le module de Young, la limite d'élasticité et la pression de rupture, sont déterminées et présentées. L'équation d'ingénierie a été utilisée pour tracer la courbe de contrainte-déformation pour chaque phase.

A partir des résultats obtenus, la composition chimique a un effet significatif sur les propriétés de ces phases.

Ces diagrammes de contrainte-déformation obtenus montrent une augmentation rapide de la contrainte jusqu'à un maximum suivi d'une baisse progressive lorsque l'éprouvette se brise par rupture ductile. Sous compression, le comportement de déformation des phases β - Al_3Mg_2 et γ - $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ est presque similaire. Les résultats ont montré que la phase ε - $\text{Al}_{30}\text{Mg}_{23}$ est fragile sous une charge de compression uni-axiale et que la phase γ - $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ est très ductile sous la même charge de compression.

La relation contrainte-déformation suggère que les phases β - Al_3Mg_2 et γ - $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ ont une limite d'élasticité, une capacité à résister à la déformation élevées et ont également l'avantage d'être très malléables. D'après cette simulation, nous constatons également que les propriétés mécaniques sous charge de compression de la phase ε - $\text{Al}_{30}\text{Mg}_{23}$ sont évidemment inférieures à celles des autres phases, ce qui fait d'elle la phase la plus faible. Les résultats obtenus ont été comparés aux études expérimentales précédentes et, d'une manière générale, il y a une bonne corrélation. Le système Al-Mg a été construit et simulé à l'aide du logiciel de dynamique moléculaire LAMMPS (Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator).

Mots clés : Compression, courbe de contrainte/déformation, simulation de la dynamique moléculaire, potentiel de la méthode de l'atome intégré (EAM), alliage d'Aluminium 5xxx, déformation, évolution microstructurale, mécanismes de déformation.

Abstract.

Aluminum alloys development always exist in the manufacturing process. Al/Mg alloys have been attracted significant attention because of their excellent mechanical properties. The microstructural evolution and deformation mechanisms are still challenging issues, and it is hard to observe directly by experimental methods. Accordingly, in this paper atomic simulations are performed to investigate the uniaxial compressive behavior of Al/Mg phases; with different ratio of Mg ranging from 31% to 56%. The compression is at the same strain rate (3.10^{10} s^{-1}), at the same temperature (300K) and pressure, using Embedded Atom Method (EAM) potential to model the interactions and the deformation behavior between Al and Mg.

From these simulations, we get the Radial Distribution Function; the stress-strain responses to describe the elastic and plastic behaviors of $\beta\text{-Al}_3\text{Mg}_2$, $\epsilon\text{-Al}_{30}\text{Mg}_{23}$, Al_1Mg_1 and $\gamma\text{-Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ phases with 31, 41, 50 and 56% of Mg added to pure Aluminum, respectively. The mechanical properties, such as Young's modulus, elasticity limit and rupture pressure, are determined and presented. The engineering equation was used to plot the stress-strain curve for each phase.

From the results obtained, the chemical composition has a significant effect on the properties of these phases. The stress-strain behavior comprised elastic, yield, strain softening and strain hardening regions that were qualitatively in agreement with previous simulations and experimental results. These stress-strain diagrams obtained show a rapid increase in stress up to a maximum followed by a gradual drop when the specimen fails by ductile fracture. Under compression, the deformation behavior of $\beta\text{-Al}_3\text{Mg}_2$ and $\gamma\text{-Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ phases is almost similar. From the results, it was found that $\epsilon\text{-Al}_{30}\text{Mg}_{23}$ phase is brittle under uniaxial compressive loading and $\gamma\text{-Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ phase is very ductile under the same compressive loading.

The engineering stress-strain relationship suggests that $\beta\text{-Al}_3\text{Mg}_2$ and $\gamma\text{-Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ phases have high elasticity limit, ability to resist deformation and also have the advantage of being highly malleable. From this simulation, we also find that the mechanical properties under compressive load of $\epsilon\text{-Al}_{30}\text{Mg}_{23}$ phase are evidently less than other phases, which makes it the weakest phase. The obtained results were compared with the previous experimental studies, and generally, there is a good correlation.

The Al-Mg system was built and simulated using molecular dynamics (MD) software LAMMPS (Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator).

Keywords: Compression, Stress-Strain curve, Molecular dynamics simulation, Embedded Atom Method (EAM) potential, Aluminum alloy 5xxx, deformation, Microstructural evolution; Deformation mechanisms.

Introduction

Récemment, l'alliage Al/Mg de la série 5xxx, dont le Magnésium (Mg) est le principal élément d'alliage, est connu pour être léger, facile à usiner et très résistant, entre autres attributs [1-2], et pour ses excellentes propriétés mécaniques : dureté élevée, résistance spécifique élevée, bonnes propriétés diélectriques, performances thermiques fiables et performances électriques. L'Aluminium, en particulier, et les alliages à base d'Al ont été largement appliqués et utilisés dans différents domaines comme l'architecture, l'industrie aérospatiale, les applications automobiles et l'industrie militaire. Il est le troisième élément le plus abondant de la croûte terrestre [3-4]. D'autre part, en raison de la solution solide sursaturée dans le système binaire Aluminium-Magnésium, les alliages Al/Mg présentent des résistances élevées ainsi qu'une excellente plasticité à des taux de déformation élevés [5-10].

Dans de nombreux cas, les simulations atomiques des phénomènes de plasticité ont en fait précédé l'observation expérimentale de ces mêmes phénomènes.

Pour développer les métaux nano structurés en vue d'applications structurales, il est nécessaire de comprendre le comportement des matériaux à un niveau plus fondamental, par exemple au niveau atomique. Aujourd'hui, de nombreux efforts expérimentaux et théoriques sont déployés pour comprendre et prévoir la corrélation entre le comportement des matériaux au niveau atomique et leurs propriétés macroscopiques.

Pour comprendre le comportement de déformation entre l'Al et le Mg, la distribution d'Al et du Mg doit être prédite afin de contrôler la formation de composés intermétalliques comme prévu. En raison de certaines limites des méthodes expérimentales, les simulations atomistiques telles que la dynamique moléculaire et Monte Carlo sont largement utilisées pour étudier le comportement des matériaux pendant les transformations de phase ou les déformations et pour déterminer les propriétés structurales, ce qui en fait un outil utile pour analyser et prévoir diverses propriétés mécaniques des matériaux. De plus, permet de visualiser la structure des phases Al-Mg au niveau atomique, la distribution des atomes dans un micro volume, et de calculer certaines propriétés physiques de ces phases.

Dans la littérature, les chercheurs [11-12] ont étudié, à l'aide des simulations de dynamique moléculaire, différents systèmes binaires d'alliages et de polymères, en raison de sa capacité à résoudre le problème à très petite échelle de temps et de longueur.

Dans ce travail, les interactions entre Al et Mg, le comportement et les propriétés mécaniques d'une phase Al/Mg typique sous une charge de compression uni-axiale en utilisant la méthode de dynamique moléculaire sont étudiés.

Il est évident que les résultats des simulations de dynamique moléculaire dépendent de la qualité des potentiels semi-empiriques employés. Pour l'interaction interatomique pour la phase solide de l'Aluminium pur [13], et du Magnésium pur [14, 15], les potentiels résultants étaient clairement des potentiels EAM, qui sont plus fiables que d'autres potentiels, [13-15] pour ce type de matériau. Dans ce document, nous utilisons donc l'approche de la méthode de l'atome embarqué EAM [16], qui décrit les orbitales électroniques des matériaux et les propriétés structurales, mécaniques et thermiques des systèmes métalliques. La simulation de la dynamique moléculaire est un excellent outil pour reproduire diverses propriétés physiques fondamentales (propriétés structurelles, élastiques, thermiques, etc.) et pour décrire le comportement de déformation des matériaux à l'échelle micro/Nano. Nous avons utilisé le potentiel EAM pour décrire et modéliser l'interaction des atomes, et pour reproduire les propriétés élastiques ainsi que les données mécaniques, telles que la relation contrainte-déformation, les comportements élastique et plastique et nous étudions l'effet de l'ajout du Mg dans les propriétés mécaniques de l'Aluminium pur, de l'alliage binaire Al/Mg. Nous calculons également les propriétés mécaniques, telles que la limite d'élasticité, le module de Young, la pression de rupture et la fonction de distribution radiale, pour ces phases Al/Mg.

Le comportement des matériaux sous charge dynamique dépend fortement de la vitesse de déformation [17], et de la composition qui affecte les microstructures ainsi que d'autres facteurs. Il a été révélé expérimentalement que le comportement mécanique et les microstructures sont sensiblement modifiés en fonction de la composition chimique.

A partir de nos simulations, nous obtenons la relation contrainte-déformation, afin de décrire l'interaction dans le système binaire Al/Mg.

Dans la présente étude, afin d'étudier l'effet de l'ajout du Mg à l'Al pur, de simuler la déformation par compression uni-axiale et d'étudier l'évolution structurale du processus de déformation mécanique de ces phases binaires ainsi que pour étudier les effets de la structure des phases sur les propriétés mécaniques de l'alliage Al-Mg, nous utiliserons la simulation de la dynamique moléculaire.

Le nombre total d'atomes dans le cadre d'un ensemble canonique NVT était d'environ 20000 atomes, et en utilisant le potentiel EAM [16], nous avons calculé plusieurs propriétés et étudié le mécanisme de déformation plastique des phases binaires sous une charge de compression 3.10^{10} s^{-1} . Quatre structures différentes seront décrites séparément.

Tous les résultats et les calculs de dynamique moléculaire présentés dans ce document ont été effectués à l'aide du logiciel LAMMPS, Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel

Simulator, [18], code de dynamique moléculaire. De plus, afin de décrire les interactions interatomiques entre les atomes dans le système binaire Al-Mg, et de construire et d'identifier l'allocation structurale de chaque atome pendant la simulation, la visualisation des données de simulation de dynamique moléculaire et l'analyse de la structure ont été effectuées en utilisant l'outil de visualisation ouvert OVITO [19] et VESTA [20].

Le bon accord entre les mécanismes de déformation calculés et ceux observés par l'expérience motive l'utilisation des simulations atomiques pour examiner les mécanismes de déformation à l'échelle nanométrique, car les expériences à cette échelle sont souvent difficiles à réaliser. À partir de nos simulations, nous obtenons les propriétés mécaniques des phases Al/Mg avec différents pourcentages du Magnésium.

Le reste de cet article est organisé comme suit. Dans la première section, nous décrivons les phases binaires ; les détails de la simulation de DM, les potentiels interatomiques pour la simulation de dynamique moléculaire. Dans la deuxième section, nous présentons une brève discussion des résultats de dynamique moléculaire et une comparaison avec les résultats expérimentales. Les principales conclusions sont résumées dans la troisième section.

Introduction

Recently, the 5xxx series Al/Mg alloy, with Magnesium as the main alloying elements, is known to be lightweight, easy to machine, and high in strength, among other attributes [1-2], and by its excellent mechanical properties: high hardness, high specific strength, good dielectric properties, reliable thermal performance, and electricity performance. Aluminum, in particular and Aluminum based alloys have been widely applied and used in different fields like architecture, aerospace industries, automotive applications and military industry. Which is the third most abundant element in earth's crust [3], have attracted attention in connection with some application in aerospace and armor construction [4].

On the other hand, due to the supersaturated solid solution in the Aluminum-Magnesium binary system, Al/Mg alloys exhibit high strengths as well as excellent super plasticity at high strain rates [5-10].

In many cases, atomic simulations of plasticity phenomena actually preceded the experimental observation of the same phenomena.

To develop the nanostructured metals for structural applications, it is necessary to understand the material behavior from a more fundamental level, e.g., the atomic level. Today, extensive experimental and theoretical efforts are being made to understand and predict the correlation between atomic level materials' behaviors and macroscopic materials' properties.

To understand the deformation behaviors between Al and Mg, the distribution of Al and Mg should be predicted in order to control the formation of inter-metallic compounds as expected.

Due to some limitations of experimental methods, atomistic simulations such as Molecular Dynamics and Monte Carlo are widely used to study the behavior of material during phase transformations or deformations and to determine structural properties as a useful tool for analyzing and predicting various fundamental static and dynamic properties of materials. In addition, allows as to visualize the structure of Al-Mg phases on the atomistic level, the distribution of atoms in a micro volume, and to calculate some physical properties of these phases.

In literature, the researchers [11-12] have investigated, using molecular dynamics simulations, different binary alloy and polymer systems, owing to its capability to solve the problem at very small length and time scale.

In this work, based on the experimental setups, the interactions between Al and Mg and the mechanical behaviors and properties of a typical Al/Mg phases under uni-axial compression load using MD simulation method is studied.

Obviously, the results of classical MD simulations depend on the quality of the employed semi-empirical potentials. For the interatomic interaction for the solid phase of pure Aluminum [13], and pure Magnesium [14, 15], the resulting potential were clearly EAM potential, which are more reliable than other potentials [13-15], for this type of material. So, in this paper, we use the one approach is the Embedded Atom Method potential EAM [16], which describe the electronic orbitals of materials and the structural, mechanical and thermal properties of metallic systems.

Molecular dynamics simulation is an excellent tool to reproduce various fundamental physical properties (structural, elastic, defect, surface, thermal properties, etc.) and to describe the deformation behavior of materials at micro/Nano scale. We used EAM potential to describe and model the interaction of atoms, and to reproduce elastic properties as well as the mechanical data, such as stress-strain relationship, to describe the elastic and plastic behaviors, and we investigate the effect of adding Magnesium in mechanical properties of pure Aluminum, of Al/Mg binary alloy. We also compute the mechanical properties, such as elasticity limit, Young's modulus, rupture pressure and radial distribution function, for these Al-Mg phases.

The behavior of materials under dynamic loading depends strongly on the strain rate [17] and the composition that affects the microstructures as well as the other factors. It has been revealed experimentally that both mechanical behavior and microstructures are substantially modified with the chemical composition.

From our simulations, we obtain the stress-strain relationship, in order to describe the interaction in binary Al/Mg system.

In the current study, in order to investigate the effect of adding Mg to pure Aluminum, to simulate the uniaxial compression deformation and investigating the structural evolution of the mechanical deformation process of these binary phases to study the phase structure effects on the mechanical properties of Al-Mg alloy, we will use molecular dynamics simulation.

In this paper, we investigate the mechanical properties of four models of Al/Mg phases with different composition under uniaxial compression using MD simulation method. The total number of atoms within the framework of a canonical ensemble NVT was about 20000 atoms, and using EAM potential [16] we calculate several properties and investigate plastic

deformation mechanism of the binary phases under 3.10^{10} s^{-1} strain rates loading. Four different structures will be described separately.

All the results and MD calculations reported in this paper were performed using LAMMPS package, Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator, [18], molecular dynamics code. Moreover, in order to describe the inter-atomic interactions between atoms in binary Al-Mg system, and to build and identify the structural allocation of each atom during simulation, visualization of MD simulation data and structure analysis has been carried out using the open visualization tool OVITO [19] and VESTA [20].

The good agreement between calculated and experiment observed deformation mechanisms motivates using atomistic simulations to examine deformation mechanisms at the Nano-scale, as experiments at this scale are often difficult to perform. From our simulations, we obtain the mechanical properties of Al/Mg phases with different percentage of Mg. Some new findings from this study are also reported.

The remainder of this paper is organized as follows. In the first Section, we describe the binary phases; details of the MD simulation, the inter-atomic potentials for MD simulation. We present a brief discussion of the MD results and comparison with other experiment results in the second section. The main conclusions are summarized in Section 3.

V.1. Materials and methods

V.1.1. Aluminum-Magnesium (Al-Mg) System (5xxx series)

A description of the Al-Mg phase diagram [21], as shown in Fig. V. 1. There are five equilibrium solid phases, the fcc solid solution (α -Al) rich in Al, the hcp solid solution (α -Mg) rich in Mg, ϵ , β and γ designate compounds from the binary Al-Mg system; while the β compound of approximate stoichiometry Al_3Mg_2 , the compound γ compound of stoichiometry $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$, and the ϵ compound of stoichiometry $\text{Al}_{30}\text{Mg}_{23}$.

According to the phase diagram and solidification results, there is no doubt about the existence of intermetallic compounds of the Al-Mg binary phases: Al_3Mg_2 - β , $\text{Al}_{30}\text{Mg}_{23}$ - ϵ and $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ - γ [22-23].

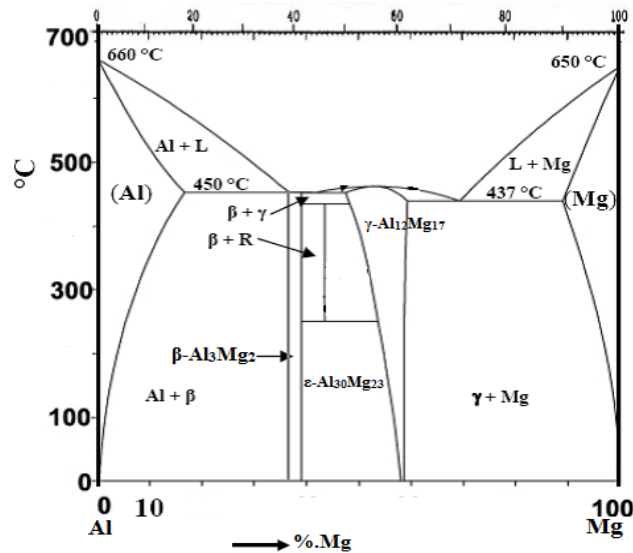


Fig. V. 1: The Al-Mg binary phase diagram [22].

After that, according to the Al-Mg binary phase diagram, (Fig.V.1), under equilibrium conditions the concentration of Magnesium in the α Aluminum structure is 0.21 at.% [25]. The compositional range of the β phase is given as 31- 40.3% Mg [26], while the equilibrium Mg concentration of the γ ($\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$) phase ranges from 45% to 60% [27, 28], while the concentration of magnesium in $\text{Al}_{30}\text{Mg}_{23}$ (ϵ) is 43% Mg [29-30]. Moreover, in the intermetallic compounds such as Al_1Mg_1 the composition range is 50% Mg [31], at room temperature.

In the present paper, mechanically phases in the Al/Mg binary system in the range of 31-56 at.% Mg were simulated using molecular dynamics simulation, in this study, three phases compositions were chosen for this molecular dynamics simulation. A fourth phase, much closer to the Al-Mg side Al-50 percent, was also simulated for this study. TableV.1 lists the nominal

compositions of these phases with an increase in the Mg content, according to phase diagram of Al/Mg alloys and to WEBQC [58].

Table V. 1: Weight percentage and chemical composition of each structure of simulated Al-Mg phase (in wt.%).

Phases wt. %	β -Al ₃ Mg ₂	ϵ -Al ₃₀ Mg ₂₃	Al ₁ Mg ₁	γ -Al ₁₂ Mg ₁₇
Al	68	59	50	43
Mg	31	41	50	56

Details of each phase structure for each compounds are given in TableV. 2.

Table V. 2: Crystal structure data for Al/Mg intermetallic compounds.

Phase	Lattice parameter (nm)			reference
	a	b	c	
β -Al ₃ Mg ₂	2.8300	2.8300	2.8300	[32-34]
ϵ -Al ₃₀ Mg ₂₃	1.2825	1.2825	2.1748	[32-35]
Al ₁ Mg ₁	-	-	-	-
γ -Al ₁₂ Mg ₁₇	1.0544	1.0544	1.0544	[32-35]

The Fig.V.2 shows the initial crystal structure and atoms position of γ -Al₁₂Mg₁₇ phase specimen simulated in this article before the compression test according to VESTA [20] illustration.

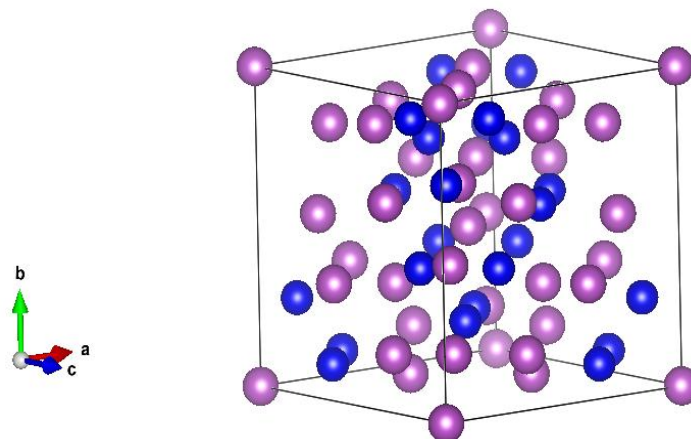


Fig. V. 2: Cell structures models of Al/Mg phases as illustrated using Vesta [20].

The blue spheres correspond to Aluminum (Al) atoms and the mallow spheres to the Magnesium (Mg).

V.1.2. Interatomic potentials : EAM potential

In order to simulate various physical properties of each phases, including the elastic properties, structural properties, defect properties, surface properties, thermal properties and mechanical properties, and to obtain meaningful results from this atomistic simulations, it is essential that reliable interatomic potentials are used, that is why we used Embedded Atom Method potential EAM [16].

Therefore, many EAM interatomic potential for different pure species and their alloys are generated based on different fitting criteria in the literature and most of them can be found in interatomic potentials repository of NIST [<http://www.ctcms.nist.gov/potentials/>], and the LAMMPS database from Sandia National Laboratories [<http://www.lammps.sandia.gov/>].

The atom interactions described by [36] with an embedded atom method alloy potential for Al and Mg, which has been identified as a proper potential can be used in current study. Most EAM potential was obtained by fitting to only a few bulk properties, typically lattice constant, cohesive energy, vacancy-formation energy and elastic constants. While the EAM potentials for Al-Mg alloys are fitted with both experimental data and a massive quantum-mechanical forces database in the works.

This potential is widely used in molecular dynamics simulations for modeling metals and alloys; and to describe approximately the energy between atoms. The EAM potential was developed by Daw and Baskes [16], and it is particularly appropriate for metallic systems. Moreover, the energy is a function of a sum of functions of the separation between an atom and its neighbors.

The latter functions represent the electron density. The total energy of the system as two additive terms are pairwise sum of interactions between atoms and a term representing the electron density of each atomic site as shown in the equation below:

$$E_i = \sum_i F_i(\rho_{h,i}) + \frac{1}{2} \sum_i \sum_{j \neq i} \Phi_{ij}(r_{ij})$$
$$\rho_{h,i} = \sum_{i \neq j} \rho_j(r_{ij})$$

The total energy in potential of the EAM E_i consists of two parts, a pair potential $\Phi_{ij}(r_{ij})$, and $F_i(\rho_{h,i})$. The latter is the embedded function for atom i , which depends on the electron

density $\rho_{h,i}$ expressed by that atom i and j indicate the unique pairs of atoms within the N atoms of the system. r_{ij} is their interatomic separation and $\rho_j(r_{ij})$ is the density function [16] [37].

V.1.3. Determination of potential parameters for the Al-Mg binary system

To describe a binary alloy system, and to study the behavior of the bulk material, the embedded atom method (EAM) is used to describe the interatomic interactions between individual elements Al-Al, Mg-Mg and between different elements Al and Mg.

In table V.3, the EAM potential parameters for each pure elements are listed:

Table V. 3: Set of the EAM potential parameters for single elements Al and Mg.

Parameters	Al	Mg
Structure	FCC	Hcp
E_c [eV]	3.353	1.51
a_0 [Å]	4.05	3.194
A	1.07	0.8
α	4.64	5.52
$\beta^{(0)}$	2.04	4.0
$\beta^{(1)}$	3.0	3.0
$\beta^{(2)}$	6.0	0.2
$\beta^{(3)}$	1.5	1.2
$t^{(0)}$	1.0	1.0
$t^{(1)}$	4.50	10.04
$t^{(2)}$	-2.30	9.49
$t^{(3)}$	8.01	-4.3
C_{\min}	0.8	0.8
C_{\max}	2.8	2.8
ρ_0	1.0	0.63

The reference structures for Al, Mg, are fcc, and hcp, respectively. E_c is the cohesive energy, α_0 is the equilibrium lattice parameter, A is the scaling factor for the embedding energy, α is the exponential decay factor for the universal energy, $\beta^{(0-3)}$ are the exponential decay factors for the atomic densities, $t^{(0-3)}$ are the weighting factors for the atomic densities, C_{\max} and C_{\min} are screening parameters, ρ_0 is the density scaling factor that is relevant only for element pairs. [38].

To compare Al-Mg systems with different stoichiometric coefficients, we simulate the interactions between the atoms of Al and Mg and were modeled using Embedded Atom Method (EAM). This interatomic potential is capable of reproducing different physical, elastic, thermal,

and interfacial properties for Al-Mg binary phases; and to model a physical deformation for these phases.

V.2. Molecular dynamics simulation procedure

Molecular dynamics simulations are useful to study the time evolution behavior of systems in a variety of states where thermal sampling of configurationally space is required [39], and it's provide a means to solve the equation of motion of particles and evaluate these mathematical formulas.

A standard constant stress molecular dynamics (MD) simulation method was applied to construct the atomistic models of Al-Mg binary phase in this study by setting up an appropriate interatomic potential function.

We used molecular dynamics simulation to explore the macroscopic properties of a system through microscopic simulations. The elastic properties of each phase were evaluated by performing simulations in two major steps. In the first step, we built the system of atoms in the same temperature and pressure, minimize and relax the model obtained. In the next step, the model was deformed using the same compressive loading.

Our Molecular dynamics simulations have been carried out and performed using the program package LAMMPS (large-scale atomic/molecular massively parallel simulator) <http://lammps.sandia.gov/> developed by Plimpton [18] at Sandia National Laboratories.

This molecular dynamics simulation first generates a simulation box with dimensions of 5(x) ×5 (y) ×5 (z) nm³ in the x, y, and z-directions, and contains approximately 20,000 atoms, with different set of Al and Mg.

After creating each material, all simulations were carried out at a temperature of 300 K and one standard atmospheric pressure as an ambient pressure, Newton's second law classical equations of motion of atoms are numerically solved using the Verlet algorithm integrator [40,41] with a fixed time step of $\Delta t=1$ fs. All the results were obtained at the canonical NVT ensemble, [42] based in Nose-Hoover thermostat [43] (number of atoms, volume and temperature remain constant) to finish the initialization. In the current study, the well-established Embedded Atom Method (EAM) developed by Baskes and al. [37], have been successfully used to describe the interatomic interactions between individual elements Al-Al, Mg-Mg. In addition to the descriptions of the interatomic interaction between Al & Mg [36]. And in the determination of elastic properties, defect deformation and fracture mechanisms of various Al-Mg binary phases.

Periodic boundary conditions (Fig. V.3bellow) have been applied in both x and y directions, while for z direction. After the initial construction of the system, energy minimization was performed to relax the as-built structures and to reach local equilibrium for the entire specimen. In the end of the simulation, the simulation cell is uniaxially deformed along the x-direction at a strain rate of 3.0^{10} s^{-1} . We let the system deform until the system fail; to study in detail the plastic deformation process, emphasized the phases effects and to follow the dynamic evolution of the atomic system under a uniaxial compression strain field. During the compression process, conditions are kept constants.

Fully atomistic simulations were performed on periodic systems of Al-Mg binary alloy. We have examined four Al-Mg binary phases with different Mg concentrations. To focus on the effect of Mg additions. Set one was generated with 31% of Mg; Set 2 was constructed with 41% of Mg. We augment this set of Mg in the third set to 50%. and 56% of Mg in the last set. The study here is carried out at fixed conditions. In order to examine the effects of adding Mg particles in compression deformation behavior.

The stress-strain values are output to a separate files, which can be imported in a graphing application for plotting using Matlab. To plot radial distribution function we used Origin software. The .cfg dump files include the x, y, and z coordinates the centrosymmetry values, the potential energies, and forces for each atom, to visualize the deformation mechanisms in the various materials. This can be directly visualized using visual molecular dynamics OVITO [19], software to visualize the simulation configurations and atoms trajectories.

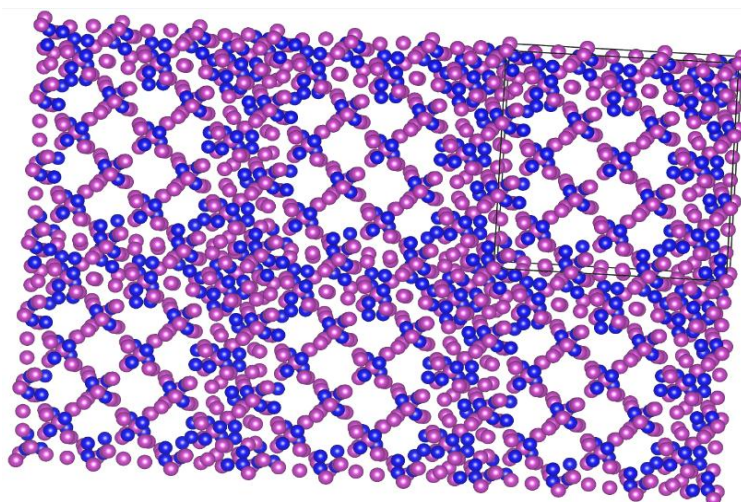


Fig. V.3: Representation of Periodic Boundary Conditions (PBC) in 3D captured in VESTA [20].

The figure shows selected atoms in the primary cell together with six replicas. (Mg atoms are plotted in mallow and Al atoms in blue).

V.3. RESULTS AND DISCUSSION

The purpose of this study is to investigate the effect of Mg addition on elastic and the mechanical properties of Al-Mg phases, and the properties of each structure under uniaxial compression using MD simulations.

This application note illustrates the capability of molecular dynamics simulation using LAMMPS [18] to simulate the compression of determined metals under strain and to compute the stress strain behavior of these materials.

One of the fundamental questions if the structure and mechanical properties of these phases as a function of chemical composition influence their mechanical properties.

We used molecular dynamics simulation to calculate the Radial Distribution Function and some mechanical properties as elasticity limit, Young's modulus and pressure rupture of these bi-phases. A code written in LAMMPS software was used to carry out this Molecular dynamics simulation calculation.

V.3.1. Microstructural evolution of Al-Mg phases

After equilibrating the system, the microstructure of the Al-Mg phases was characterized to ensure that the structure was appropriate for deformation simulations. Additionally, we utilized various microstructure metrics to characterize each phase structure and to track its evolution as a function of strain in the deformation simulations.

In order to visualize the evolution of the microstructure during the deformation transformations, local atomic arrangements were identified using a common neighbor analysis [44, 45] as implemented in the OVITO program [19].

Here we report on large-scale molecular dynamics simulation, performed with LAMMPS software investigating the compression loading of Al-Mg binary phases. The atomic interactions were described by an Embedded Atom Method (EAM) potential especially designed to model Al [13].

It is noted that the 3D snapshot in Fig.V.4 is captured in OVITO [19]. The blue atoms correspond to the Al structure, mallow atoms to the Mg structure.

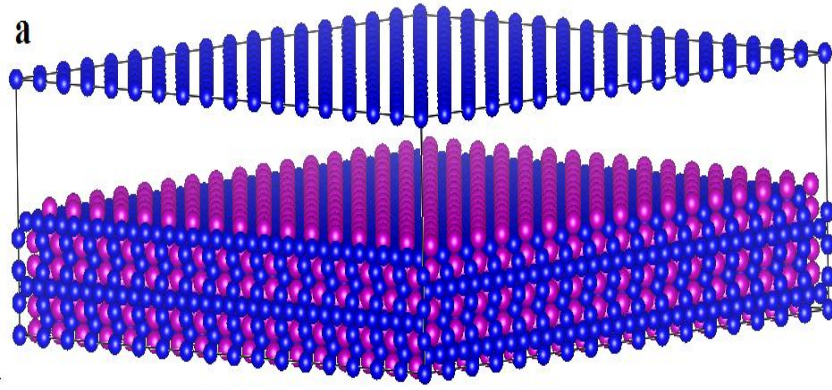


Fig. V. 4: 3-D reconstruction showing Nano scaled Al/Mg binary phase simulated.

To visualize the compression process and explore the deformation mechanism, we draw a representative atomic configuration out from the data obtained after the deformation of the material.

Snapshot bellow is an atomic representation for an Al/Mg phase after deformation, has been calculated and colored using the OVITO analysis and visualization software [19].

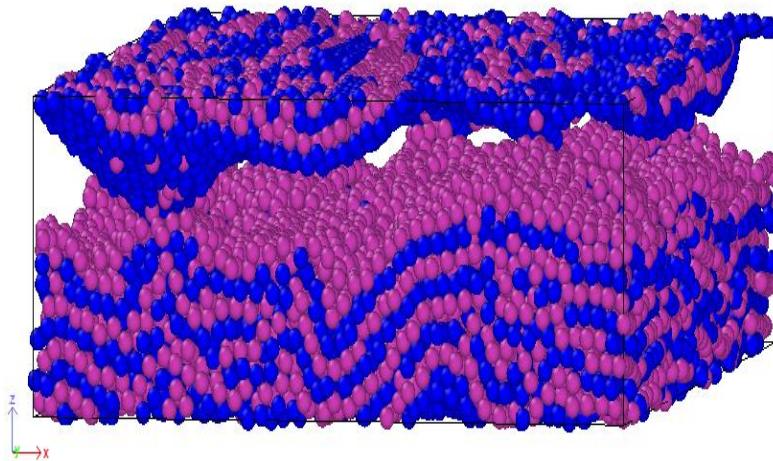


Fig. V. 5: 3-D Atomic structure of Al/Mg phases after the deformation. (Mg atoms are plotted in mallow and Al atoms in blue).

After relaxation, the initial set-up of phases simulated is shown in Fig. V. 4. When the material is constrict, the deformation of Al/Mg phase is still elastic as shown in Fig.V.5. Upon reaching the yield strain, the crystal structure experienced an abrupt deformation, as displayed in Fig.V.5.

V.3.2. Radial Distribution Function (RDF)

The Radial Distribution Function (RDF), $g(r)$, also called pair distribution functions or pair correlation functions, is one of the most important structural quantities characterizing a system; it is the primary linkage between macroscopic thermodynamic properties and intermolecular interactions [46].

As illustrated in Fig.V.6 [47], if the atoms are distributed homogeneously in space, the RDF, $g(r)$, basically gives the probability of finding an atom in a distance ranging from r and $r+\Delta r$, from another atom chosen as a reference point. RDF is expressed as follows:

$$g(r) = 4\pi r(\rho_r - \rho_0)$$

Where, ρ_r and ρ_0 are the local and average atomic number densities, respectively. r is the radial distance. As illustrated in Fig.V.6, the atomic RDF is a one-dimensional function that oscillates.

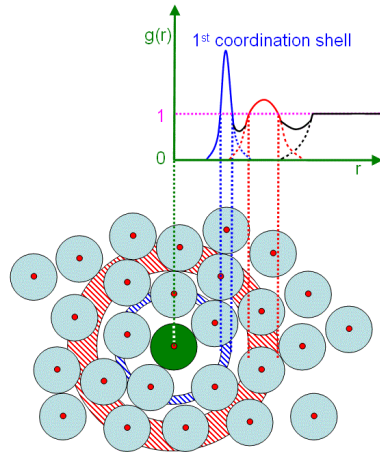


Fig. V. 6: Schematic illustration of RDF and interatomic distances r . The distribution peaks at distances separating pairs of atoms; peak areas are proportional to the number of atoms at those distances [47].

Pair distribution functions (PDF)'s analysis is a widely used technique for characterizing the atomic scale structure of materials of limited structural coherence, and to observe the variation in magnitude of bond length of atoms during mechanical deformation. Accordingly, in order to reveal the states of Al and Mg during a compression deformation process, Radial Distribution Functions (RDF) of Al-Mg phases of 20 000 atoms approximately, maintained at temperature 300K and 1 bar pressure, using EAM potential, of different steps was determined as showed in Fig.V.7. It shows peaks corresponding to the inter-atomic distances existing in the material. It provide information for both the average structure and the local atomic arrangement.

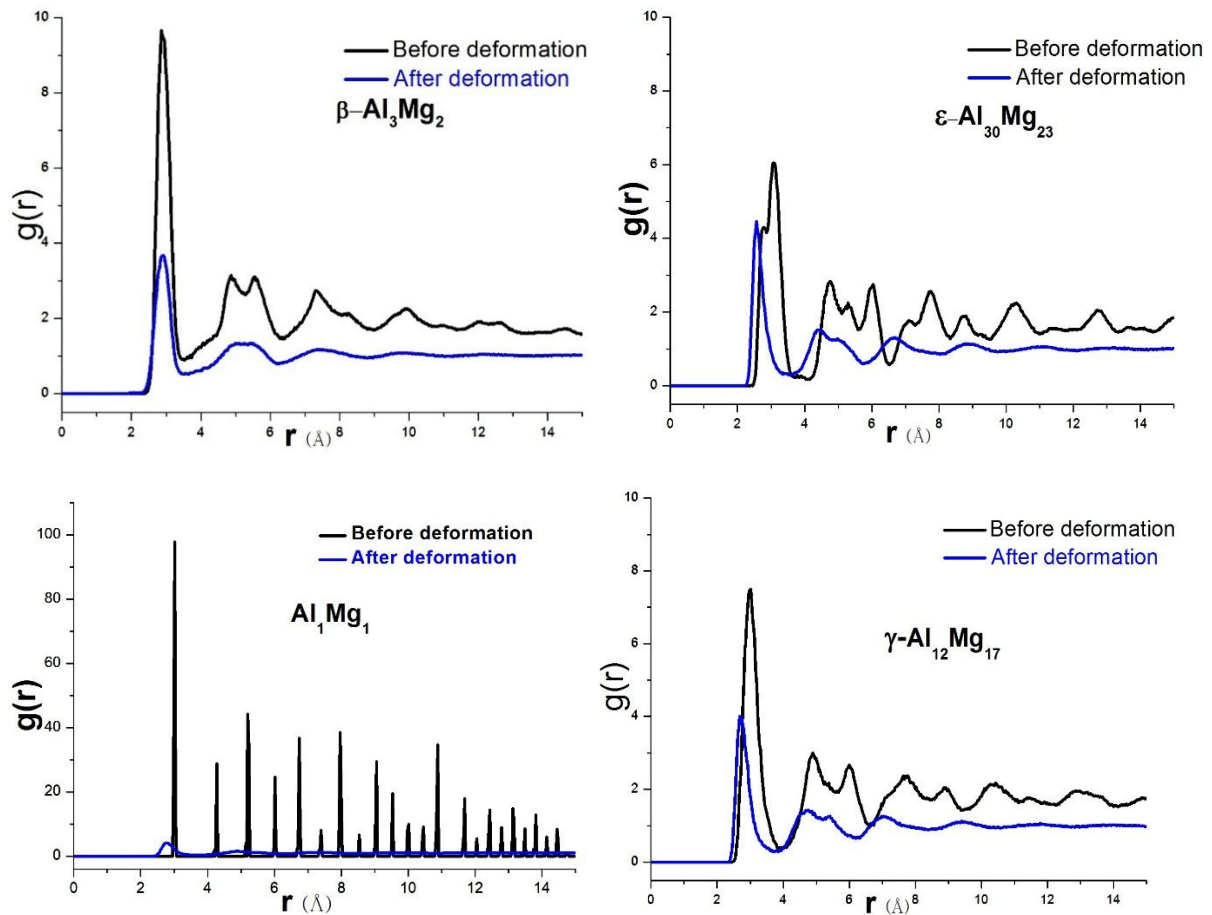


Fig. V. 7: The total Radial Distribution Function (RDF) of Al-Mg phases for different compositions before and after the compression deformation.

Fig.V.7 shows the total RDFs for Al/Mg phases with four different compositions, before and after deformation, all the total RDFs exhibit sharp and prominent first peaks with the exception of Al_1Mg_1 phase.

As well known, the RDF of a crystal structure has a profile with several peaks corresponding to the lattice positions of atoms. As shown in Fig.V.7, it can be noted that the FDR's Al-Mg of the system obtained for every structure is different and the oscillations in every graph are very pronounced and characteristic to the particular phase state of every studied phases.

From graphs in Fig.V.7, the peaks are getting less intensive and broader with time for RDF of $\beta\text{-Al}_3\text{Mg}_2$, $\epsilon\text{-Al}_{30}\text{Mg}_{23}$ and $\gamma\text{-Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ phases, while peaks keep broad after the deformation for the same phases.

The first peaks, in every graph, are higher and finer, which characterizes a more interesting local order. In addition, as the first peak is different on every graph, therefore, we find that the distance Al-Mg is in function of the composition of the material.

The peak means that it is the greatest probability of distance Al-Mg and these results are in agreement with the experimental results, as we can see in TableV.4.

This distance binds the more frequently of the two atoms, and the first maximum of the RDF corresponds to the length of the interatomic connection the more probably.

To support the quality of the Molecular dynamics simulation, and according to the Fig.V.7, interatomic distance between Al and Mg atoms for each Al/Mg phases with four different compositions, before and after compression, is defined as the radial distance corresponding to the first peak as tabulated in TableV.4, together with experimental data measured by x-ray diffraction experiments.

Moreover, the results obtained are compared with experimental measurements from literature.

Table V. 4: Simulated and experimental interatomic distances r for each structure.

phases	$r(\text{\AA})$ Before compression	$r(\text{\AA})$ After compression	Experimental results
$\beta\text{-Al}_3\text{Mg}_2$	2.865	2.732	2.9 [48, 49]
$\varepsilon\text{-Al}_{30}\text{Mg}_{23}$	3.015	2.565	3.02[48]
Al_1Mg_1	3.075	2.775	3[48] , 3.02 \pm 0.06[49]
$\gamma\text{-Al}_{12}\text{Mg}_{17}$	3.098	2.925	3.2003[50]

From this table, it can be determined that the numerical interatomic distances obtained fit very well to the experimental data. However, the interatomic distance increases from 2,865 Å to 3,098 Å as the concentration of Mg increases from 31% to 56% (see TableV.4). This is due to the smaller radius of Al atom, $R_{\text{Al}}=1.43\text{\AA}$, compared to that of Mg atom $R_{\text{Mg}}=1.6\text{\AA}$. As the concentration of Mg increases, there will be a greater number of Mg in the system. As a result, the average interatomic distance for the whole system therefore increases.

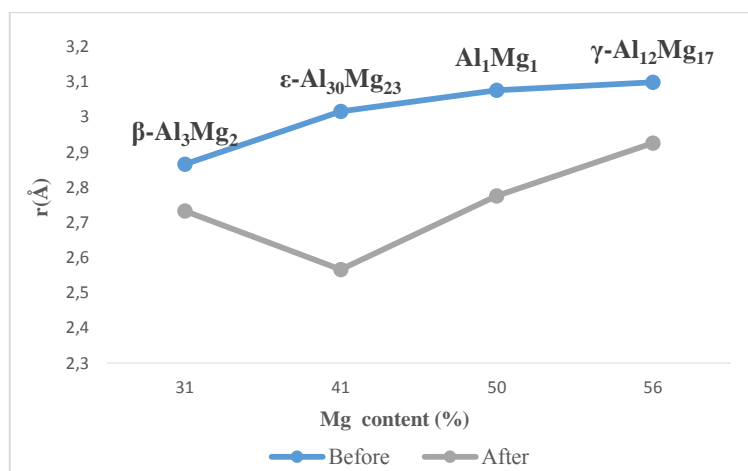


Fig. V. 8: Change in interatomic distance with increasing Mg concentration before and after compression.

As discussed and shown in Fig.V.8, the elastic modulus was found to vary with Mg concentration.

As mentioned in the Table V.4, and Fig.V.8, we see also that this distance for every structure decrease after compression. Based on this, alloys are possibly changed their crystalline structure during the compression deformation. When comparing between the curves before and after compression, clearly shows that the interatomic distance proportionally decreases after compression.

V.3.3. Stress-strain behavior: yield strength Plastic behavior

a. Uni axial Compression analysis

Stress-strain is an important variable in determining the mechanical properties. In this investigation, Molecular Dynamics (MD) simulations were used to study in details the mechanical properties and plastic deformation mechanisms of a range of Al-Mg phases during uniaxial compression loading; with different fractions of Mg.

During the entire simulation, we apply a constant strain rate ($3 \cdot 10^{10}$ 1/s) to 20 000 atoms approximately of Al-Mg phases, with a constant temperature 300K and 1bar pressure, using EAM potential describing above. The periodic boundary condition is applied in the x, y and z directions. Totally, 20 000 steps are performed to the system. Utilizing the Verlet algorithm to solve the Newton's motion equations, and keep a record of the statistical data every 0.001 times steps during the simulation. We let the system deform until the system fail, to study the deformations in each structure.

The stress-strain curve has four distinct regimes: elastic, yield, softening and hardening. Initially the stress increases nearly linearly with increasing applied strain indicating an elastic regime. The transition from elastic to plastic is seen where the line starts to curve. Upon reaching the yield point, the stress then shows a decrease to a local minimum suggesting material softening.

Compressive stress and strain relationship was plotted using Matlab (Fig. V. 9), for the case of uni-axially compression strain applied along the x direction, at the same strain rate, but at different fractions. The vertical axis represent shear stress, while the horizontal represents shear strain. Which is used to determine elastic limit, rupture pressure and Young's Modulus.

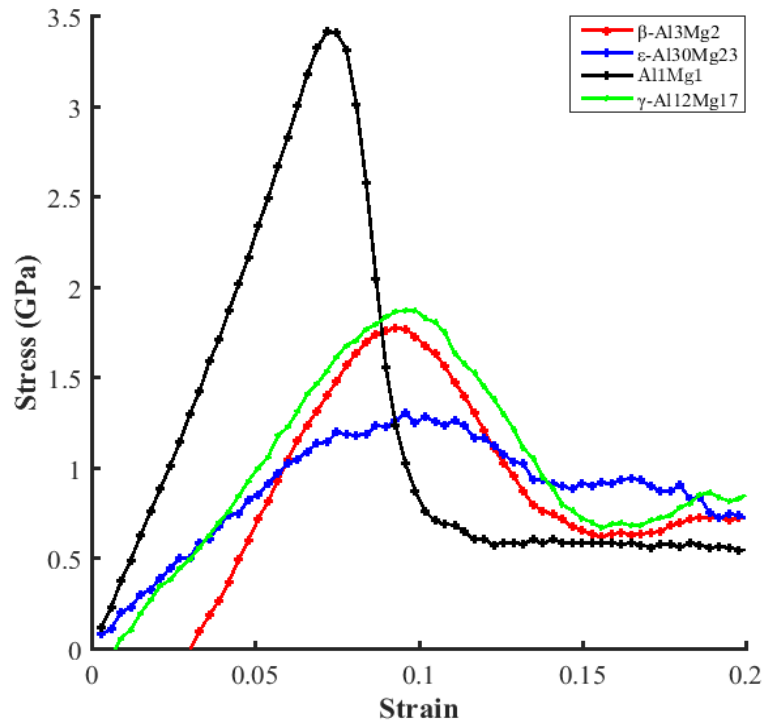


Fig. V. 9: Stress-strain curves for Al-Mg phases under uniaxial compressive strain applied along the x direction for four different alloys, measured at same values of strain. Red: β - Al_3Mg_2 , blue: ϵ - $\text{Al}_{30}\text{Mg}_{23}$, black: Al_1Mg_1 and green: γ - $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$.

Fig. V. 9 illustrates the stress-strain variations in the case of uniaxially compressive strain applied along the x direction. We can clearly see that stress in the x-direction varies with the strain. While, stress in the y- and z-directions fluctuates near zero (Fig. V. 10).

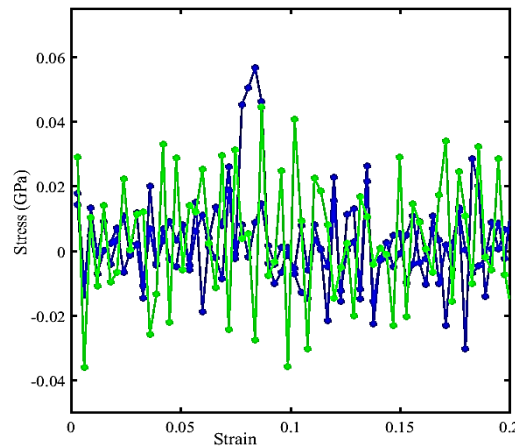


Fig. V. 10: Stress-strain curves for Al-Mg phases under uniaxial compressive strain applied along the y and z directions, measured at same values of strain.

As we can observe in the graph (Fig.V.9), β - Al_3Mg_2 , γ - $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ phases both deformed approximately at the same plastic strain despite the huge different in chemical composition. A considerable different trend is observed; for instance, the highest peak is found for 50% Al-Mg

phase. Therefore, ϵ -Al₃₀Mg₂₃ phase is the weaker phase under compressive loading. For these phases, an Mg effect is clearly visible, i.e. with increasing the % of Mg added to pure Al from 31% to 50%, we observe an increasing in the fracture point.

The elastic properties of a material are those that connect stresses to deformations. According to the above stress-strain curves of Al-Mg phases, we can obtain some mechanical properties of these phases. The Young's modulus E, was calculated from the stress-strain relations $E = s/\epsilon$ (Pa or N/mm²) [51], and is evaluated as the slope of stress-strain curve at initial tangent. Elastic limit σ_e , characterize the elastic behavior of the material.

For each structure, Young's modulus and elasticity limit are tabulated in table V.5.

Table V. 5: Elasticity limit and Young's modulus of the Al-Mg phases measured in this work compared to published values for Al-Mg compiled from the literature.

Phases	σ_e (GPa)	E (GPa)	E (experimental values) GPa
β -Al ₃ Mg ₂	1.7	66.83	63.49±1.27 [52], 61 [53]
ϵ -Al ₃₀ Mg ₂₃	1	61.16	58.75±0.40[52]
Al ₁ Mg ₁	3	64	45[54]
γ -Al ₁₂ Mg ₁₇	1.8	73.66	71.95±4.54 [52], 70.12 [55], 78 [56], 79.6 [57]

It is observed, however, that the elastic limit is a function of chemical composition and are found to decrease from 1.7 GPa to 1 GPa with increasing the % of Mg, from 31% to 41%, and increase to 3 GPa when the ratio of Mg is 50%. While, for γ -Al₁₂Mg₁₇ phase its elastic limit is 1.8 GPa, even it has the highest percent of Mg added. This increment was as a result of changing the percent of Mg added.

Based on the table above, the Young's Modulus value for γ -Al₁₂Mg₁₇ are slightly higher than the other phases, β -Al₃Mg₂ phase is positioned a little bit lower, showing that both are stiff and strong materials, meanwhile ϵ -Al₃₀Mg₂₃ has the least Young's Modulus making them the most ductile phase. These phenomena took place since there is a difference in the atomic bonding in each materials.

The predicted values were in a reasonably good agreement with the experimental-data. Except, for Al₁Mg₁ the average Young's modulus is 68 GPa, higher than the experimental value (45 GPa).

In Fig.V.11, the alloying percentage effect on elasticity limit and young's modulus properties are plotted.

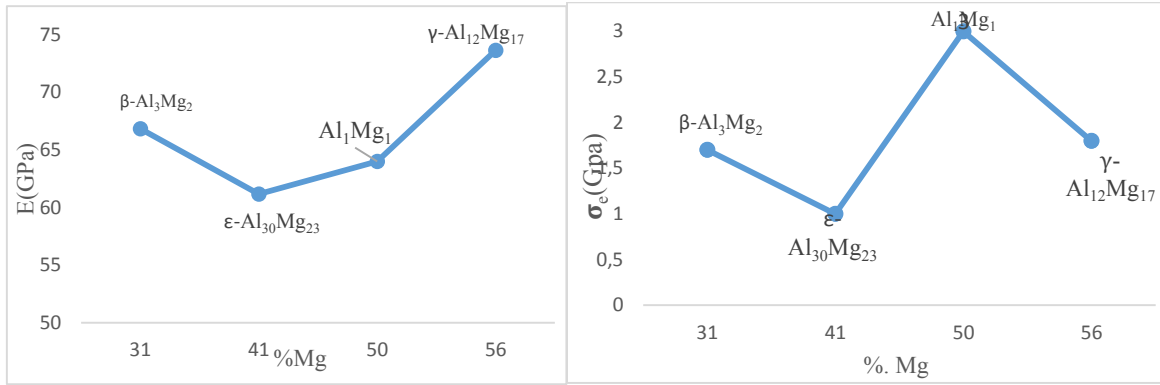


Fig. V. 11: Effect of Mg concentration on: (a) Young's modulus and (b) elasticity limit.

Besides the Radial Distribution Function, Young's modulus and elasticity limit, Table V.6 also indicate that the chemical composition is a key factor which influences the rupture point of Al-Mg phases, which changes Al-Mg alloys properties, the same as exhibited in available experimental results and early numerical simulations.

Table V. 6: Ultimate strength for Al/Mg phases after deformation applied.

Phases	Ultimate compressive strength (GPa)
β -Al ₃ Mg ₂	1.78
ϵ -Al ₃₀ Mg ₂₃	1.313
Al ₁ Mg ₁	3.416
γ -Al ₁₂ Mg ₁₇	1.879

The maximum amount of compressive stress of β -Al₃Mg₂ and γ -Al₁₂Mg₁₇ phases was observed to only change slightly during the deformation with increasing the percent of Mg. Therefore, Al₁Mg₁ phase has the highest failure point, and ϵ -Al₃₀Mg₂₃ phase had the lowest one. Alloying element seems to have a significant effect on mechanical behavior.

The data collected with the simulation focused on the elastic regime of deformation of the four phases, the simulated mechanical properties under compression showed that γ -Al₁₂Mg₁₇ was tougher and stiffer ($E = 73.66$ GPa) than the other three structures, and its changes its shape only slightly under elastic loads. β -Al₃Mg₂, Al₁Mg₁ phases are slightly tougher ($E = 66.83$ GPa), ($E = 64$ GPa), respectively. While, ϵ -Al₃₀Mg₂₃ phase was the most elastic under compression (61.16GPa) as its Young modulus of elasticity less than γ -Al₁₂Mg₁₇ and β -Al₃Mg₂ phases, exhibits less stiffness comparing to other phases and it is brittle too, and changes its shape considerably at the same strain rate, compared to other structures.

So, most of the Al-Mg alloys with ϵ -Al₃₀Mg₂₃ phase show elasticity more than Al-Mg with other phases. Al/Mg alloys becomes stronger and more elastic when we increase the ratio of γ -Al₁₂Mg₁₇ phase, by increasing the % of Mg added and apply the proper heat treatment to increase the presence of this phase in these alloys. The increment of this phase in Al/Mg alloys, will increment the elasticity and the ductility of these alloys.

Summary

A thorough understanding of the relation of alloys properties and their composition is therefore needed to identify alloying conditions required to obtain consistent results with different devices. The results have led to the following conclusions.

- ✓ Based on the results, it was concluded that the chemical composition has a significant effect on the properties of these phases mainly RDF, elasticity limit and Young modulus and the fracture point of such phases doesn't occur at the same stress and strain values.
- ✓ Interatomic distance increases proportionally with Magnesium content in each phase. Moreover, after compression, the interatomic distance decreases because of the forces applied.
- ✓ As for the compression deformation, the highest young's modulus was observed in the γ -Al₁₂Mg₁₇ phase because the added Mg substantially increased the strength of this phase. Furthermore, ϵ -Al₃₀Mg₂₃ phase has the lowest Young's modulus.
- ✓ β -Al₃Mg₂ and γ -Al₁₂Mg₁₇ phases are strongest in resisting compression because of their high ultimate compressive strength and ability to resist deformation.
- ✓ γ -Al₁₂Mg₁₇ and AlMg phases are also capable of absorbing large amounts of energy prior to failure than other phases.
- ✓ ϵ -Al₃₀Mg₂₃ phase is weakest comparing to other phases because of its mechanical behavior under compressive load.
- ✓ At the microscopic level, each phase contains atoms that are arranged in an orderly manner. Which makes them different from physical properties side.
- ✓ To soften Al/Mg alloys and improve ductility it is required to increment the presence of γ -Al₁₂Mg₁₇ & β -Al₃Mg₂ phases in these alloys.
- ✓ Simulated results presented satisfactory correlation to the experimental results, which shows that, once validated, molecular dynamics simulations can be used to predict damage of elastic-plastic materials.

Conclusion

Une compréhension approfondie des relations entre les propriétés des alliages et leurs compositions est donc nécessaire pour identifier les conditions d'alliage requises pour obtenir des résultats cohérents avec différents dispositifs. Les résultats ont conduit aux conclusions suivantes :

- ✓ Sur la base des résultats, il a été conclu que la composition chimique a un effet significatif sur les propriétés de ces phases principalement RDF, limite d'élasticité et module de Young et que le point de rupture de ces phases ne se produit pas avec les mêmes valeurs de contrainte et de déformation.
- ✓ La distance interatomique augmente proportionnellement à la teneur en Magnésium dans chaque phase. De plus, après compression, la distance interatomique diminue en raison des forces appliquées.
- ✓ En ce qui concerne la déformation par compression, le module de Young le plus élevé a été observé chez la phase γ -Al₁₂Mg₁₇ car l'ajout du Mg a considérablement augmenté la résistance de cette phase. De plus, la phase ϵ -Al₃₀Mg₂₃ a le module de Young le plus bas.
- ✓ β -Al₃Mg₂ et γ -Al₁₂Mg₁₇ sont les phases les plus résistantes à la compression en raison de leur résistance ultime à la compression et de leur capacité à résister à la déformation.
- ✓ Les phases γ -Al₁₂Mg₁₇ et Al₁Mg₁ sont également capables d'absorber de grandes quantités d'énergie avant défaillance que les autres phases.
- ✓ ϵ -Al₃₀Mg₂₃ est la phase la plus faible par rapport aux autres phases en raison de son comportement mécanique sous charge de compression.
- ✓ Au niveau microscopique, chaque phase contient des atomes qui sont disposés de manière ordonnée. Ce qui les différencie du côté des propriétés physiques.
- ✓ Pour durcir les alliages Al/Mg et améliorer la ductilité, il est nécessaire d'augmenter la présence de la phase β -Al₃Mg₂ et γ -Al₁₂Mg₁₇ dans ces alliages.
- ✓ Les résultats simulés ont présentés une corrélation satisfaisante avec les résultats expérimentaux, ce qui montre qu'une fois validées, les simulations de dynamique moléculaire peuvent être utilisées pour prédire les dommages des métaux élastiques-plastiques.

References Ch. V

- [1] R.E., Jr. Sanders, P. Hollinshead, E.A. Simielli, Industrial development of non-heat treatable aluminum alloys. *Mater. Forum* (2004), 28, 53–64.
- [2] Davis, J.R., *Corrosion of Aluminum and Aluminum Alloys*; J. R. Davis & Associates, ASM International: Metals Park, OH, USA, 1999, p. 3-8.
- [3] L. F. Mondolfo, *Aluminum Alloys Structures and Properties*, Butterworth, London, 12, 0-408-70680-5, 1976, p.1-3.
- [4] W.M. Lee, M.A. Zikry High strain-rate modeling of the interfacial effects of dispersed particles in high strength aluminum alloys *Int. J. Solids Struct.*, 49 (2012), pp. 3291-3300.
- [5] GW. Nieman, JR. Weertman, RW.Siegel, *J Mater Res* 1991; 6:1012.
- [6] RZ. Valiev, RK. Islamgaliev, IV. Alexandrov. *Prog Mater Sci.*, 2000; 45:103.
- [7] E. Ma. *Scripta Mater* 2003;49:663.
- [8] KS. Kumar, H. Van Swygenhoven, S. Suresh. *Acta Mater* 2003;51:5743.
- [9] KM. Youssef, RO. Scattergood, KL. Murty, CC. Koch. *Appl Phys Lett* 2004;85:929.
- [10] GJ. Fan, LF. Fu, YD. Wang, H. Choo, Y. Ren, PK. Liaw, et al. *Phys Rev Lett* (to be published).
- [11] SJ V. Frankland, VM. Harik, GM. Odegard, DW. Brenner, TS. Gates. The stress–strain behavior of polymer-nanotube composites from molecular dynamics simulation. *Compos Sci Technol* 2003; 63: 1655–61.
- [12] LC Saha, Mian SA, Jang J. Molecular Dynamics Simulation Study on the Carbon Nanotube Interacting with a Polymer. *Bull Korean Chem Soc* 2012;33:893–6.
- [13] H. Chabba, M. Lemaalem, A. Derouiche, F. BELMIR, D. Dafir, Modeling aluminum using molecular dynamics simulation *J. Mater. Environ. Sci.*, Volume 9 2018.
- [14] F. Ercolessi and J.B. Adams, *Europhys. Lett.* 26, (1994) 583.
- [15] X.-Y. Liu, J.B. Adams, F. Ercolessi and J. Moriarty, in preparation.
- [16] M.S. Daw, M.I. Baskes. Embedded-atom method: Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals *J. Physical Review B.* 1984, 29(12):6443-6453.
- [17] Ivanov et al., 1963; Kumar and Kumble, 1969.

- [18] S. Plimpton, Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics, *J Comp Phys*, 117, 1-19 (1995).
- [19] A. Stukowski Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO-the open visualization tool *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.*, 18 (2010), p. 015012.
- [20] K. Momma and F. Izumi, VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data, *J. Appl. Crystallogr.*, 44, 1272-1276 (2011).
- [21] Y. Zhong, M. Yang, and Z.-K. Liu, "Contribution of first principles energetics to Al-Mg thermodynamic modeling," *Calphad*, vol. 29, no. 4, pp. 303–311, 2005.
- [22] J.L. Murray, The Al-Mg (Aluminium-magnesium) System. *Bulletin of Alloy Phase Diagrams* 3:61, 1982.
- [23] Zuo Y. CYA. Thermodynamic calculation of the Al-Mg Phase diagram. *CALPHAD*. Vol.17, No.2, 1993, p. 161-174.
- [24] Su H.L., Harmelin M., Donnadieu P., Beatzner C., Seifert H., Lukas H.L., Effenberg G., F. A. Experimental investigation of the Mg-Al phase diagram from 47 to 63 at.% Al. *Journal of alloys and compounds* 1997; 247:57.
- [25] M.J. Starink and A-M. Zahra, *Acta Mater.* 46, 3381 (1998).
- [26] J.L. Murray, The Al-Mg (Aluminium-magnesium) System. *Bulletin of Alloy Phase Diagrams* 3:60, 1982.
- [27] Ragani J., Donnadieu P., Tassin C., ET AL.: 'High-temperature deformation of the c-Mg₁₇Al₁₂ complex metallic alloy', *Scr. Mater.*, 2011, 65, p. 253–256
- [28] Wang L., Liu H.: 'The microstructural evolution of Al₁₂Mg₁₇ alloy during the quenching processes', *J. Non-Cryst. Solids*, 2006, 352, p. 2880–2884
- [29] Su H.L., Harmelin M., Donnadieu P., Beatzner C., Seifert H., Lukas H.L., Effenberg G., F. A. Experimental investigation of the Mg-Al phase diagram from 47 to 63 at.% Al. *Journal of alloys and compounds* 1997, p. 247:57.
- [30] A. Calka, W. Kaczmarek, and J.S. Williams, *J. Mater. Sci.* 28, 15 (1993).
- [31] D.L. Zhang, T.B. Massalski, and M.R. Paruchuri, *Metall. Mater. Trans.* 25A, 73 (1994)
- [32] P. Villars and K. Cenzual, Pearson's Crystal Data-Crystal Structure Database for Inorganic Compounds (on CD-ROM), ASM International, Materials Park, Ohio, USA, 2009.

- [33] H. Perlitz: Nature (London) 154, 1944, 606.
- [34] A. Samson: Acta Crystallogr. 19 (1965) 401–413.
- [35] THESE Bertha Rocío VALDES LOPEZ Etude de transformations de phases dans des alliages d'aluminium par la technique des couples de diffusion, Soutenue 13 juillet 2006, p. 8.
- [36] M.I. Mendeleev, M. Asta, M.J. Rahman & J.J. Hoyt (2009) Development of interatomic potentials appropriate for simulation of solid–liquid interface properties in Al–Mg alloys, Philosophical Magazine, 89:34-36, 3269-3285
- [37] S. M. Foiles, M. I. Baskes, M. S. Daw, Phys. Rev. B, 33, (1986), 7983–7991.
- [38] M. I. Baskes, Phys. Rev. B 46, 2727 (1992).
- [39] M.J. Starink and A-M. Zahra, Acta Mater. 46, 3381 (1998). 10. H. Okamoto, J. Phase Equilibria 19, 598 (1998).
- [40] L. Verlet, Computer « experiments » on classical fluids. I. Thermodynamical properties of Lennard-Jones molecules. Phys. Rev., 98, p. 159 (1967).
- [41] L. Verlet, Computer « experiments » on classical fluids. II. Equilibrium correlation functions. Phys. Rev., 201, p. 165, 1968.
- [42] Gibbs, Josiah Willard. Elementary Principles in Statistical Mechanics. New York: Charles Scribner's Sons, 1902.
- [43] Posch, Harald A. "Canonical dynamics of the Nosé oscillator: Stability, order, and chaos". Physical Review A. ,1986-01-01, 33 (6): 4253–4265.
- [44] A. Stukowski Structure identification methods for atomistic simulations of crystalline materials Model. Simul. Mater. Sci. Eng., 20, 2012, 045021
- [45] J.D. Honeycutt, H.C. Andersen Molecular dynamics study of melting and freezing of small Lennard-Jones clusters J. Phys. Chem., 91 (1987), pp. 4950-4963.
- [46] J. Yarnell, M. Katz, R. Wenzel, S. Koenig, (1973). "Structure Factor and Radial Distribution Function for Liquid Argon at 85 °K". Physical Review A. 7 (6): 2130.
- [47] Information on <http://www.globalsino.com/EM/page3097.html>
- [48] C.C. Wang, C.H. Wong, Short-to-medium range order of Al–Mg metallic glasses studied by molecular dynamics simulations, Journal of Alloys and Compounds, 509 (2011) 10222-10229.

- [49] M. Feuerbacher, Carsten Thomas, Julien Makongo, S. Hoffman, Wilder Carillo-Cabrera, et al. The Samson phase, β -Mg₂Al₃, revisited. Zeitschrift für Kristallographie, De Gruyter, 2007, 222 (6).
- [49] Dongwon Shin, Raymundo Arróyave, and Zi-Kui Liu, Thermodynamic properties of binary HCP solution phases from special quasi random structures, cond-mat.mtrl-sci., February 1, 2008.
- [50] F.W. Von Batchelder and R. F. Rauehcle, lattice constants and brillouin zone overlap in dilute magnesium alloys, physical review, volume 105, number 1, January 1, (1957).
- [51] ASTM E 111, "[Standard Test Method for Young's Modulus, Tangent Modulus, and Chord Modulus](#)". Book of Standards Volume: 03.01.
- [52] Yin Wang, Philip B. Prangnell, The significance of intermetallic compounds formed during interdiffusion in aluminum and magnesium dissimilar welds, J. Materials Characterization 134 (2017) 84–95.
- [53] Luping Long, Wensheng Liu, Yunzhu Ma, Lei Wu and Siwei Tang, Evolution of Voids in Mg/Al Diffusion Bonding Process, High Temp. Mater. Proc.; 36(10): 985–992, July 16, 2016.
- [54] Information on <https://www.americanelements.com/aluminum-magnesium-alloy-12604-68-1>.
- [55] Feng WANG, Shi-jie SUN, Bo YU, Feng ZHANG, Ping-li MAO, Zheng LIU, First principles investigation of binary intermetallics in Mg-Al-Ca-Sn alloy: Stability, electronic structures, elastic properties and thermodynamic properties, 2 July 2015.
- [56] H. Zhang, S. Shang, Y. Wang, A. Saengdeejing, L. Chen, Z. Liu, Acta Mater. 58 (2010) 4012-4018.
- [57] D. Zhou, J. Liu, S. Xu, P. Peng, Phys. B Condens. Matter 405B (2010) 2863–2868.
- [58] Information on “Material property data-WEBQC” <http://www.webqc.org/mmcalc.php>.

Chapitre VI 'ATOMISTIC SIMULATION STUDY OF MECHANICAL DEFORMATION IN TERNARY ALUMINUM PHASES'

Suite aux résultats de la simulation obtenus pour les phases Al/Mg binaire, on a dû renforcer notre étude par la simulation des phases ternaires. Cette étude décrit les phases ternaires d'Aluminium (Al) en vue de mieux connaître l'effet de l'ajout du Magnésium (Mg) et du Silicium (Si) sur les propriétés mécaniques de l'Aluminium pur. Les simulations par dynamique moléculaire ont essentiellement porté sur l'analyse du comportement mécanique de ses phases sous compression.

Ces résultats, complétés par des essais de compression, ont permis de décrire ses alliages ternaires au niveau microstructurale, l'effet qui portera l'ajout du Silicium et du Magnésium sur les propriétés mécaniques lors d'une déformation élastique des phases étudiés.

Résumé.

Les alliages d'Aluminium ont fait l'objet d'une grande attention. Les alliages ternaires Al/Mg/Si, en particulier, peuvent présenter un excellent équilibre entre résistance et ductilité. L'évolution microstructurale et les mécanismes de déformation sont encore des questions difficiles. En conséquence, pour décrire comment le type de phase influence le comportement mécanique des alliages Al/Mg/Si, des simulations atomiques sont réalisées dans cet article pour étudier le comportement en compression uniaxiale des phases ternaires Al/Mg/Si.

La compression est à la même vitesse de déformation ($3,10^{10} \text{ s}^{-1}$) ; en utilisant le potentiel de la méthode MEAM (Modified Embedded Atom Method) pour modéliser le comportement de déformation. A partir de ces simulations, nous obtenons la Fonction de Distribution Radiale et les réponses de contrainte-déformation pour décrire les comportements élastique et plastique des phases GP- AlMg_4Si_6 , U2- $\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$ et β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$.

Pour une description détaillée de la phase qui influence la dureté et la ductilité de ces alliages, les propriétés mécaniques sont déterminées et présentées. Les diagrammes de contrainte-déformation obtenus montrent une augmentation rapide de la contrainte jusqu'à un maximum suivi d'une baisse progressive lorsque l'éprouvette se brise par rupture ductile. Les résultats ont montré que les phases GP- AlMg_4Si_6 et U2- $\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$ sont fragiles sous une charge de compression uniaxiale, tandis que la phase β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$ est très ductile sous la même charge de compression. La courbe contrainte-déformation en ingénierie suggère que les phases β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$ ont une limite d'élasticité élevée, une capacité de résistance à la déformation et ont l'avantage d'être très malléables. Le système Al-Mg-Si a été construit et simulé à l'aide du logiciel de dynamique moléculaire LAMMPS.

Keywords : Simulation de la dynamique moléculaire ; Potentiel MEAM Modified Embedded Atom Method ; Mécanisme de déformation ; Évolution des microstructures ; Alliages ternaires d'aluminium.

Abstract.

Aluminum alloys have been attracting significant attention. Especially Al-Mg-Si alloys can exhibit an excellent balance between strength and ductility. Deformation mechanisms and microstructural evolution still remain challenging issues in these materials. Accordingly, in an effort to describe how the type of phase influence mechanical behavior of Al/Mg/Si alloys, in this paper atomic simulations are performed to investigate the uniaxial compressive behavior of Al-Mg-Si ternary phases. The compression is at the same strain rate ($3 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$); using Modified Embedded Atom Method (MEAM) potential to model the deformation behavior. From these simulations, we acquire the total Radial Distribution Function; enabling us to acquire the stress-strain responses to describe the elastic and plastic behaviors of GP- AlMg_4Si_6 , U2- $\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$ and β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$ phases. For a detailed description of which phase influence hardness and ductility of these alloys; the mechanical properties are determined and presented using molecular dynamics simulation. These stress-strain curves obtained show a rapid increase in stress up to a maximum followed by a gradual drop when the specimen fails by ductile fracture. From the simulation results, it was found that GP- AlMg_4Si_6 & U2- $\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$ phases are brittle under uniaxial compressive loading, while β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$ phase is very ductile under the same stress conditions. The engineering stress-strain relationship suggests that β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$ phase have high elasticity limit, ability to resist deformation and have the advantage of being highly malleable. Molecular dynamics software LAMMPS was used to simulate and build the Al-Mg-Si ternary system.

Keywords: Molecular Dynamics Simulation; Modified Embedded Atom Method (MEAM) Potential; Deformation Mechanism; Microstructural Evolution; Ternary aluminum alloys.

Introduction

Les alliages Al-Mg-Si, comme les autres alliages d'Al, sont de plus en plus utilisés dans les industries automobile et aérospatiale en raison de leur excellente aptitude au moulage, de leur résistance à la corrosion et, en particulier, de leurs bonnes propriétés mécaniques à l'état traité thermiquement [1]. Les alliages Al-Mg-Si (classés comme alliages de la série 6xxx) sont largement utilisés pour des applications industrielles, notamment dans les secteurs de l'automobile et de la marine, ainsi que dans les bâtiments et les constructions. Leur large applicabilité s'explique par les propriétés attrayantes des alliages Al-Mg-Si, qui offrent une résistance moyenne, une bonne formabilité, qui conviennent parfaitement à de nombreuses applications industrielles. L'ajout de quelques pourcentages en poids de Mg et de Si permet la formation de différentes phases précipitées dans ces alliages ternaires.

Dans de nombreux cas, les simulations atomiques des phénomènes de plasticité ont en fait précédé l'observation expérimentale de ces mêmes phénomènes. Cela s'est avéré jouer un rôle important pour la compréhension et le développement ultérieur des alliages d'Al, y compris le système Al-Mg-Si. Il est devenu plus clair qu'il est nécessaire d'étudier les structures des précipités à l'échelle atomique afin d'obtenir les propriétés macroscopiques souhaitées des alliages. Par conséquent, en parvenant à une compréhension complète des structures des précipités, il devrait être possible d'adapter la composition des alliages et le traitement thermomécanique pour obtenir les propriétés macroscopiques souhaitées pour une certaine application.

Dans cet article de recherche, nous nous attachons à résumer les effets des petits ajouts de Mg & Si à l'aluminium pur. Comme il sera démontré que les éléments dopants ont de fortes influences sur la structure atomique des précipités, sur la morphologie, ainsi que sur la stabilité de ces alliages.

Pour comprendre les comportements de déformation entre Al, Mg et Si, et pour visualiser la structure des phases ternaires au niveau atomistique, la distribution des atomes dans un micro volume, et pour calculer certaines propriétés physiques de ces phases, nous avons utilisé la simulation de la dynamique moléculaire.

Dans ce travail, basé sur les résultats simulés de la déformation binaire des phases Al/Mg [2], les interactions entre Al, Mg et Si et les comportements et propriétés mécaniques d'une phase Al/Mg/Si typique sous une charge de compression uni-axiale en utilisant la méthode de simulation MD sont étudiés. Pour l'interaction interatomique de la phase solide de ces phases,

nous avons utilisé le potentiel MEAM [3], qui est plus fiable que les autres potentiels pour ce type de systèmes métalliques [4, 5].

La simulation de la dynamique moléculaire est un excellent outil pour reproduire diverses propriétés physiques fondamentales (propriétés structurales, élastiques, de défaut, de surface, thermiques, etc.) et pour décrire le comportement de déformation des matériaux à l'échelle micro/Nano [6]. Nous avons utilisé le potentiel du MEAM pour décrire et modéliser l'interaction des atomes, et pour reproduire les propriétés élastiques ainsi que les données mécaniques, telles que la relation contrainte-déformation à décrire, les comportements élastique et plastique et nous étudions l'effet de l'ajout d'éléments dans les propriétés mécaniques de l'aluminium. Nous calculons également les propriétés mécaniques, telles que la limite d'élasticité, le module de Young, la pression de rupture et la fonction de distribution radiale, pour ces phases Al/Mg/Si.

Dans ce travail, des phases ternaires Al-Mg-Si avec différents éléments supplémentaires (Mg et Si) sont étudiées. L'objectif est (1) de comprendre le mécanisme des phases ternaires Al/Mg/Si et son influence sur les précipitations ultérieures et (2) d'étudier l'effet de chaque phase sur les propriétés mécaniques des alliages ternaires Al/Mg/Si ; en utilisant la simulation de la dynamique moléculaire.

Dans cet article, nous étudions les propriétés mécaniques de trois modèles de phases Al/Mg/Si de composition différente sous la même compression uniaxiale en utilisant la méthode de simulation MD. Le nombre total d'atomes dans le cadre d'un ensemble canonique NVT était d'environ 20000 atomes, et en utilisant le potentiel du MEAM, nous calculons plusieurs propriétés et étudions le mécanisme de déformation plastique des phases ternaires sous une charge de 3.10^{10} s^{-1} de taux de déformation. Trois structures différentes seront décrites séparément.

Tous les résultats et les calculs de dynamique moléculaire présentés dans ce document ont été réalisés à l'aide du logiciel LAMMPS, Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator, [7]. De plus, afin de décrire les interactions interatomiques entre les atomes dans le système ternaire Al-Mg-Si, et de construire et d'identifier l'allocation structurale de chaque atome pendant la simulation, la visualisation des données de simulation et l'analyse de la structure ont été réalisées en utilisant les outils de visualisation OVITO [8] et VESTA [9].

Cet article est organisé comme suit. Une brève description des phases ternaires simulées et des paramètres de potentiel interatomique adaptés. Partie 2 est une section décrivant comment des éléments supplémentaires influencent les propriétés mécaniques des phases ternaires.

Introduction

Al-Mg-Si alloys, as other Aluminum alloys, are being increasingly used in automotive and aerospace industries for critical structure applications because of their excellent cast ability, corrosion resistance and, in particular, good mechanical properties in the heat-treated condition [1]. Al-Mg-Si alloys (classified as 6xxx series alloys) are widely used in industrial applications including automotive and marine industries to buildings and constructions all over the world. The reason for their wide applicability is the superior mechanical and physical properties of the Al-Mg-Si alloys, providing medium strength, good formability, and corrosion properties, which are highly desirable in many industrial applications.

In many cases, atomic simulations in plasticity phenomena actually preceded the experimental observation of the same phenomena. This has shown to play an important role for understanding and further development of aluminum alloys including the Al-Mg system [2]. It has become clearer that it is necessary to investigate the precipitate structures at the atomic scale in order to achieve the desired macroscopic properties of the alloys. Consequently, by achieving a complete understanding of the precipitate structures, it should be possible to tailor alloy chemistry and thermo-mechanical treatment to achieve desired macroscopic properties for a certain application.

In this research article, we focus on summarizing the effects of small additions of Mg & Si to pure aluminum. It will be demonstrated that doping elements have strong influences on atomic structure of the precipitates, on morphology, as well as on stability of these alloys.

To understand the deformation behaviors between Al, Mg & Si, to visualize the structure of ternary phases on the atomistic level, the distribution of atoms in a micro volume, and to calculate some physical properties of these phases; we used molecular dynamics simulation.

In this work, based on the simulated results of binary Al-Mg phases deformation, the interactions between Al, Mg and Si and the mechanical behaviors and properties of a typical Al-Mg-Si phases under uniaxial compression load using MD simulation method are studied.

The results of classical MD simulations depend on the quality of the employed semi-empirical potentials. For interatomic interaction for the solid phase of these phases, MEAM potential [3], which is committed to describe the interactions between Al, Si & Mg, was used [4, 5].

Molecular dynamics simulation is an excellent tool to reproduce various fundamental physical properties (structural, elastic, defect, surface, thermal properties, etc.) and to describe the deformation behavior of materials at Micro/Nano scale [6]. In this current work, we have used the MEAM potential to describe and model the interaction between atoms, and to reproduce elastic properties as well as the mechanical data, such as stress-strain relationship, to describe, the elastic and plastic behaviors. We also endeavored to simulate the mechanical properties, such as elasticity limit, Young's modulus, rupture pressure and radial distribution function, for these Al-Mg-Si phases.

In this work, high purity ternary Al-Mg-Si phases with different additional elements (Mg and Si) are studied. The aim is (1) to understand the mechanism of Al-Mg-Si ternary phases and its influence on further precipitation and (2) to investigate the effect of each phase on the mechanical properties of ternary Al-Mg-Si alloys; using molecular dynamics simulation.

In this paper, the total number of atoms within the framework of a canonical ensemble NVT was about 20000 atoms, and using MEAM potential we calculated several properties and investigate plastic deformation mechanism of the ternary phases under $3 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$ strain rates loading. Three different structures will be described separately.

All the results and MD calculations reported in this paper were performed with LAMMPS package, Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator, [7]. Moreover, in order to describe the inter-atomic interactions between atoms in ternary Al-Mg-Si system, and to build and identify the structural allocation of each atom during simulation, visualization of MD simulation data and structure analysis has been carried out using the open visualization tools OVITO [8] and VESTA [9].

This article is organized as follows. A short description of ternary phases simulated as well as the inter-atomic potential parameters suitable for this alloy. Part 2 is a section describing how additional elements influence the mechanical properties of Aluminum phases.

VI.1. Materials and methods

VI.1.1. Ternary Al-Mg-Si system (6XXX series)

The Al-Mg-Si phase diagram is shown in Fig. VI. 1. [10]. This alloy goes through several phase transformations, from a supersaturated solid solution (SSSS) to phases that are thermally stable.

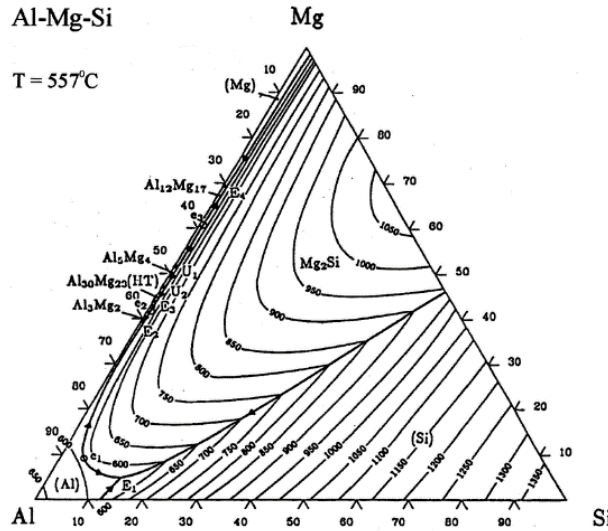


Fig. VI. 1: The Al-Mg-Si ternary phase diagram [10].

In these ternary alloys, many equilibrium solid phases exist, the fcc solid solution (α -Al) rich in Al, also, Mg and Si will form phases like U2-Al₄Mg₄Si₄ and β -Al₃Mg₂Si₆, altering the effective Mg/Si ratio for the hardening phases.

The precipitation sequence of the Al-Mg-Si system is commonly written [11, 12].

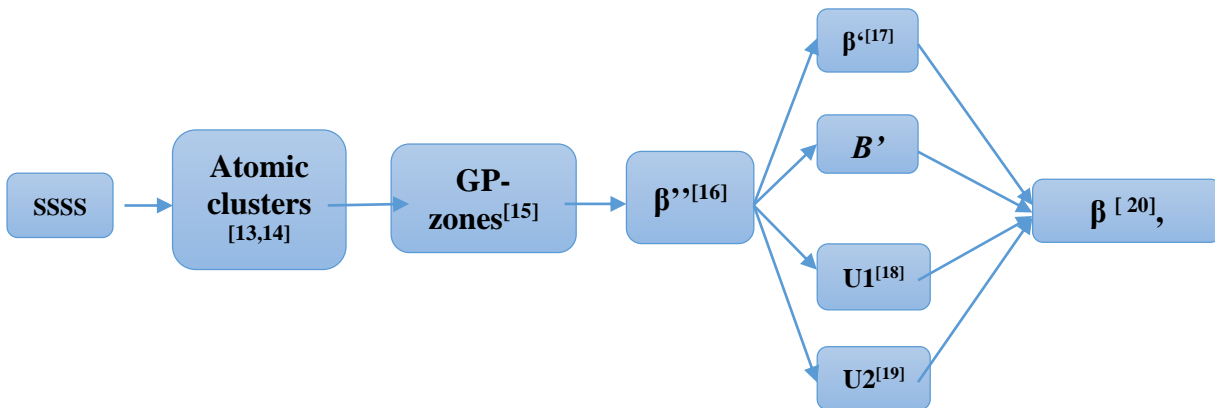


Fig. VI. 2: Sequence of precipitation found for Al-Mg-Si alloys.

Several metastable phases were reported to form in Al solid solution, as GP zones which also called pre- β'' at the early stage of nucleation, U1, U2 and B' are also known as type A, type B, and type C, respectively [22,23].

Table VI.1, lists the nominal compositions of the phases simulated; at room temperature using molecular dynamics, where the range of Mg and Si concentration change.

Table VI. 1: Weight percentage and chemical composition of each structure of simulated Al-Mg-Si phase (in wt.%).

Phases wt.%	GP- AlMg_4Si_6	U2- $\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$	β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$
Al	10	33	27
Mg	33	30	16
Si	57	37	56

An overview of the structural unit cell models of each compounds in Al-Mg-Si alloys simulated is shown in Fig.VI.3 and Table VI. 2.

Table VI. 2: Crystal structure data for Al-Mg-Si intermetallic compounds.

Phases	Composition	Structure	Lattice parameter (nm)			reference
			a	b	c	
GP	AlMg_4Si_6	Monoclinic	1.48	0.405	0.648	[16,24]
U2	$\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$	Orthorhombic	0.675	0.405	0.794	[25,26]
β	$\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$	FCC	0.639			[27]

The Fig.VI.3, shows the initial crystal structure and atoms position of each phases specimen simulated in this article before the compression test according to VESTA [9] illustration. The blue spheres correspond to Al atoms, the purple spheres to the Mg & the yellow to Si atoms.

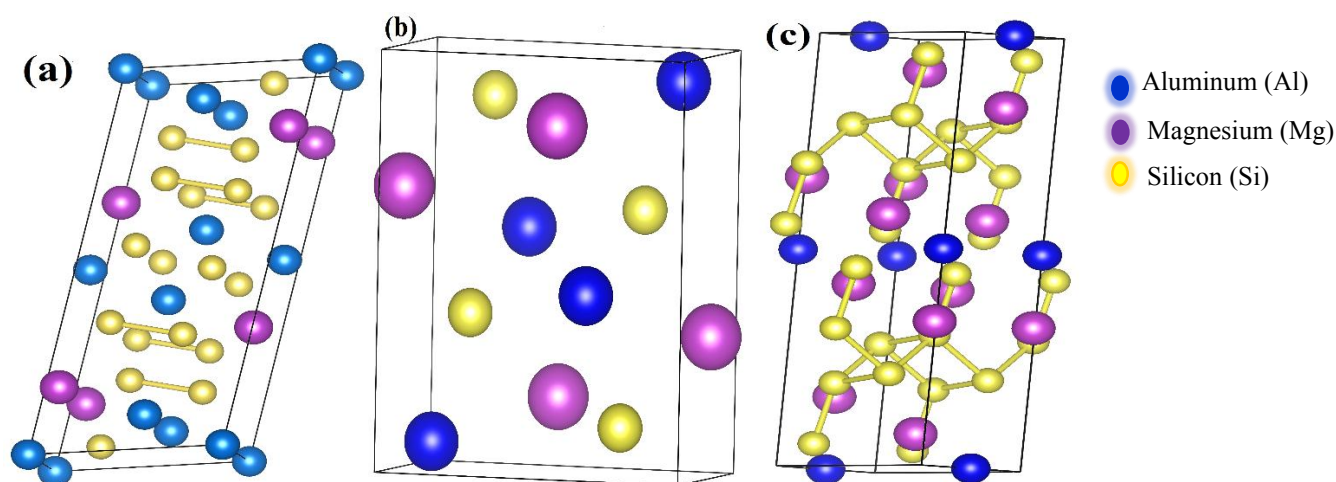


Fig. VI. 3: Structural unit cell models of metastable precipitates in Al-Mg-Si alloys drawn to the same relative scale, as illustrated using VESTA [9]. (a) β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$ phase, (b) U2- $\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$ phase, (c) GP- AlMg_4Si_6 phase.

The inclusion of two elements Mg and Si in pure Aluminum is taken into account, with positive or no significant influence in the alloy properties.

VI.1.2. INTERACTION POTENTIALS : MEAM potentials

In our previous investigations, we used EAM (Embedded Atom Method) potentials to model Al-Mg interactions [2]. In this study, we used MEAM (Modified Embedded Atom Method) potentials for the pair combinations of Al, Si and Mg. [3] and to describe the ternary interaction between Al/Mg/Si elements.

The energy of atom i consists of the embedding energy and the pair potential terms: [28].

$$E_{total} = F_i(\bar{\rho}_i) + \frac{1}{2} \sum_{j \neq i} S_{ij} \Phi_{ij}(r_{ij})$$

The embedding energy $F_i(\bar{\rho}_i)$ represents the energy cost to insert atom i at a site where the background electron density is $(\bar{\rho}_i)$, $\Phi_{ij}(r_{ij})$ is a pair potential interaction between atoms i and j , and S_{ij} are the screening between atoms i and j whose separated by a distance r_{ij} . For general energy calculations, the functional forms for the two terms on the right hand side of the equation, F_i and Φ_{ij} , should be given.

- *Potential parameters for the Al-Mg-Si ternary system*

To describe a ternary alloy system, and to study the behavior of the bulk material, we used the Modified Embedded Atom Method (MEAM) to describe the interatomic interactions between individual elements Al-Al, Mg-Mg, Si-Si and between different elements Al, Mg and Si.

In table VI.3, the MEAM potential parameters for each pure elements, are listed:

Table VI. 3: MEAM potential parameters for single elements Al, Mg and Si.

parameters	Al	Mg	Si
Structure	FCC	Hcp	Diamond
E_c [eV]	3.353	1.51	4.63
a_0 [Å]	4.05	3.194	5.431
A	1.07	0.8	1.00
α	4.64	5.52	4.87
$\beta^{(0)}$	2.04	4.0	4.4
$\beta^{(1)}$	3.0	3.0	5.5
$\beta^{(2)}$	6.0	0.2	5.5
$\beta^{(3)}$	1.5	1.2	5.5
$t^{(0)}$	1.0	1.0	1.0
$t^{(1)}$	4.50	10.04	2.05
$t^{(2)}$	-2.30	9.49	4.47
$t^{(3)}$	8.01	-4.3	-1.80
C_{min}	0.8	0.8	2.0
C_{max}	2.8	2.8	2.8
ρ_0	1.0	0.63	2.2

E_c is the cohesive energy, α_0 is the equilibrium lattice parameter, A is the scaling factor for the embedding energy, α is the exponential decay factor for the universal energy, $\beta^{(0-3)}$ are the

exponential decay factors for the atomic densities, $t^{(0-3)}$ are the weighting factors for the atomic densities, C_{\max} and C_{\min} are screening parameters, ρ_0 is the density scaling factor that is relevant only for element pairs [2].

This interatomic potential is capable of reproducing different physical, elastic, thermal, and interfacial properties for Al-Mg-Si ternary phases; and to model a physical deformation for these phases.

VI.2. MOLECULAR DYNAMICS SIMULATION PROCEDURE

As described previously, molecular dynamics simulations provide a means to solve the equation of motion of particles, evaluate these mathematical formulas and are useful to study the time evolution behavior of systems in a variety of states where thermal sampling of configurationally space is required [30].

As in our previous investigations [2, 4], a standard constant stress molecular dynamics (MD) simulation method was applied to construct the atomistic models of Al-Mg-Si ternary phase by setting up the MEAM interatomic potential.

First, we construct the system of atoms in the same temperature and pressure, minimize and relax the model obtained. Then, each model was deformed using the same compressive loading. Our molecular dynamic simulations have been carried out with LAMMPS package <http://lammmps.sandia.gov/> developed by Plimpton [7] at Sandia National Laboratories.

This molecular dynamic simulation first generates a simulation box with dimensions of $8(x) \times 8(y) \times 8(z)$ nm³ in the x, y, and z-directions, and contains approximately 20,000 atoms, with different set of Al, Mg & Si.

After creating each phase, all simulations were carried out at a temperature of 300 K and one standard atmospheric pressure as an ambient pressure. Newton's second law classical equations of motion of atoms are numerically solved using the Verlet algorithm integrator [30, 31], with a fixed time step of $\Delta t=1$ fs. All the results were obtained at the canonical NVT ensemble; (number of atoms, volume and temperature remain constant) [32]; based in Nose-Hoover thermostat [33] to finish the initialization. To describe the interatomic interactions between individual elements, Al-Al, Mg-Mg & Si-Si. In addition to the description of the interatomic interaction between different element Al-Mg, A-Si & Mg-Si, and to the determination of elastic properties, defect deformation and fracture mechanisms of various Al-Mg-Si ternary phases, we used MEAM potential [3]. Periodic boundary conditions (Fig. VI. 4 bellow) have been applied in both x and y directions, while for z direction.

Subsequently, the simulation box is uni-axially deformed along the x-direction at a strain rate of 3.0^{10} s^{-1} . We allowed the system to deform until failure, to study in detail the plastic deformation process, emphasized the phases effects and to follow the dynamic evolution of the atomic system under a uniaxial compression strain field. During the compression process, conditions are kept constants, to focus on the effect of Si and Mg additions to pure Al.

To visualize the simulation configurations and atoms trajectories we used visual molecular dynamics OVITO [8].

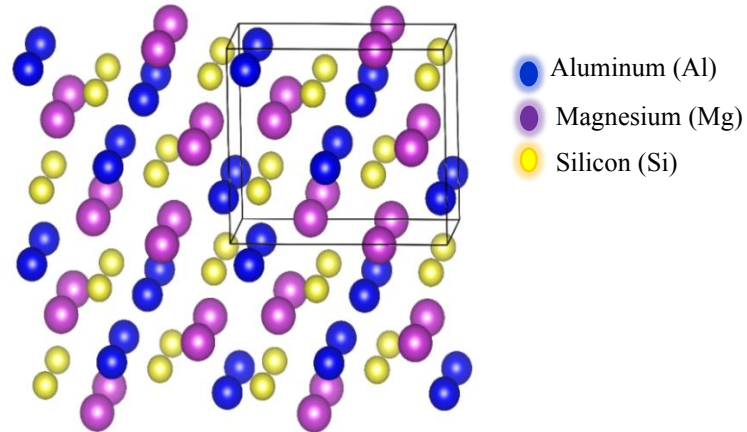


Fig. VI. 4: Periodic boundary conditions in 3D captured in VESTA [9]. (Mg atoms are plotted in purple, Al in blue & Si atoms in yellow).

Fig. VI. 4 shows selected atoms in the primary cell together with six replicas.

VI.3. RESULTS & DISCUSSION

The purpose of this study is to investigate the effect of Mg and Si addition on elastic and mechanical properties of Al-Mg-Si phases, and the properties of each structure under uniaxial compression using MD simulations.

a. Microstructural evolution of Al-Mg-Si phases

After equilibrating the system, the microstructure of the Al-Mg-Si phases was characterized to ensure that the structure was appropriate for deformation simulations. Additionally, we utilized large-scale molecular dynamics simulation to characterize each phase structure and to track its evolution as a function of strain in the deformation simulations.

In order to visualize the evolution of the microstructure during the deformation transformations, local atomic arrangements were identified using a common neighbor analysis [34, 35], as implemented in the OVITO software [8]. Figures below are 3D snapshots, captured using OVITO for the three ternary phases before and after deformation. The blue atoms correspond to the Al structure, purple atoms to the Mg and the yellow to Silicon atoms.

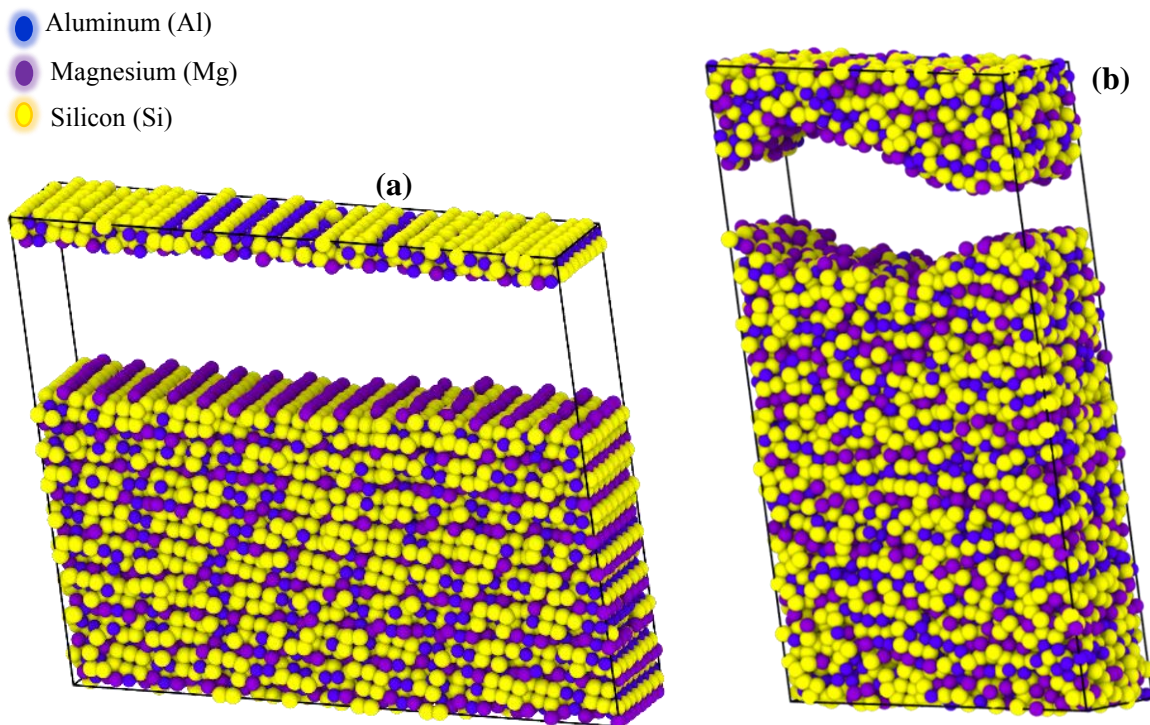


Fig. VI. 5: 3-D reconstruction showing Nano scaled structure of β -Al₃Mg₂Si₆ ternary phase simulated before (a) and after (b) deformation.

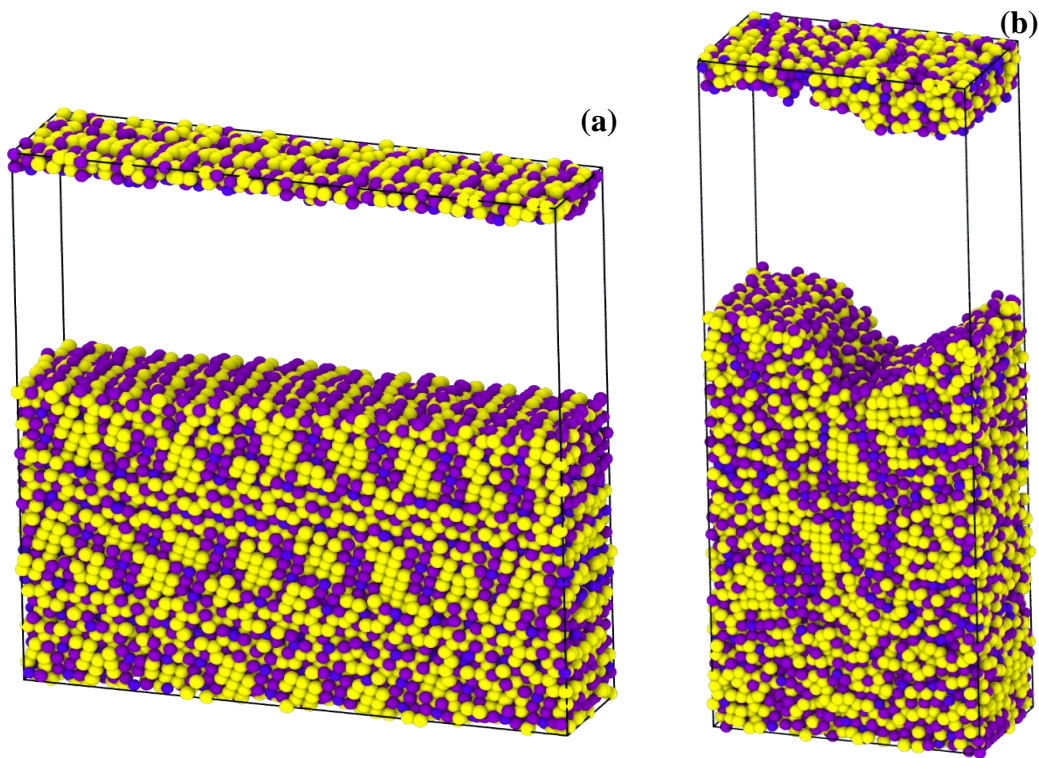


Fig. VI. 6 :3-D reconstruction showing Nano scaled structure of GP-AlMg₄Si₆ ternary phase simulated before (a) and after (b) deformation.

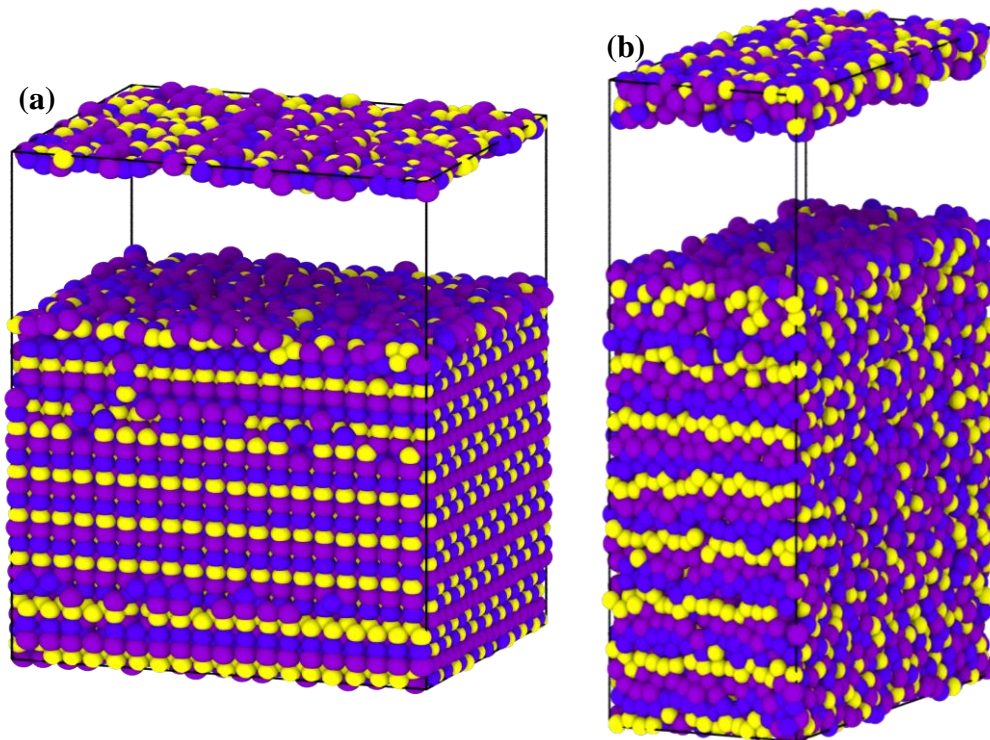


Fig. VI. 7: 3-D reconstruction showing Nano scaled structure of U2-Al₄Mg₄Si₄ ternary phase simulated before and after deformation.

After relaxation, to visualize the compression process and explore the deformation mechanism, we draw a representative atomic configuration out from the data obtained during simulation of the material. The initial set-up and the final structure after deformation of phases simulated are shown in figures VI. 5, VI. 6 & VI. 7 above.

From these figures (Fig. VI. 5, VI. 6 & VI. 7), we can observe that when the material is constrict, the deformation of Al-Mg-Si phases is still elastic as shown in the first (a) snapshot of each phase. Upon reaching the yield strain, the crystal structure experienced an abrupt deformation, as displayed in the second one (b). Moreover, we can observe that β -Al₃Mg₂Si₆ phase change its shape slightly, while, GP-AlMg₄Si₆ phase changes it considerably.

b. Radial Distribution Function (RDF)

To characterize the atomic scale structure of materials and to observe the variation in magnitude of bond length of atoms during mechanical deformation we used Pair Distribution Functions (PDF)'s analysis.

Accordingly, in order to reveal the states of Al, Mg and Si during a compression deformation process, total Radial Distribution Functions (RDF) of Al-Mg-Si phases of two steps was determined as showed in Fig. VI. 8. It shows peaks corresponding to the total inter-atomic distances existing in the material. It provide information for both the average structure and the local atomic arrangement [36].

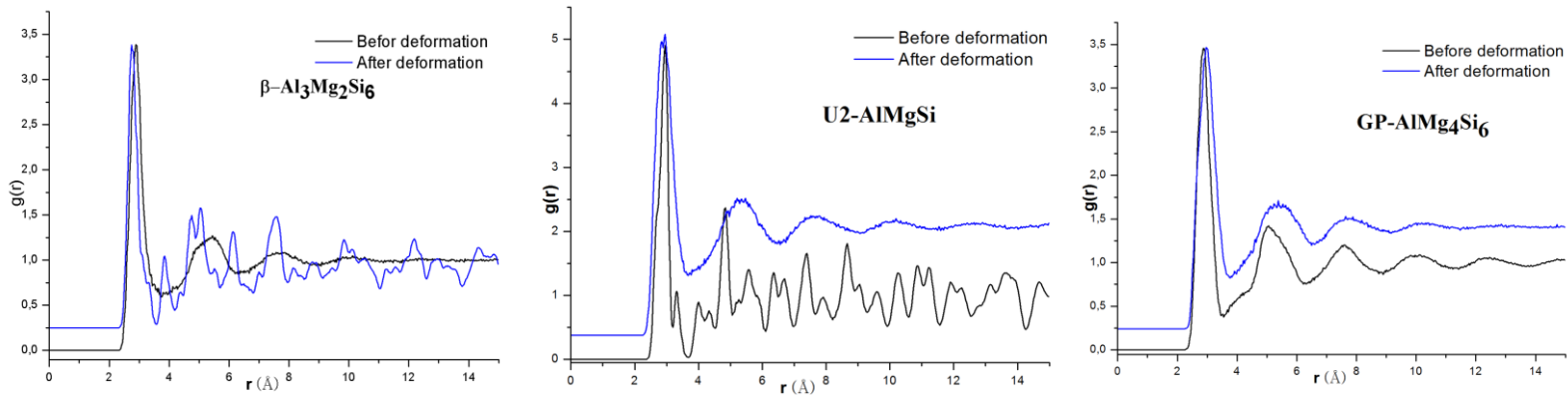


Fig. VI. 8: The total Radial Distribution Function (RDF) for Al-Mg-Si phases before and after compression deformation. (a) β -Al₃Mg₂Si₆ phase, (b) U2-Al₄Mg₄Si₄ phase, (c) GP-AlMg₄Si₆ phase.

Figure VI. 8 shows the total RDFs for Al-Mg-Si phases with three different compositions, before and after deformation, all the total RDFs exhibit sharp and prominent first peaks. The first peaks, in every graph, are higher and finer, which characterizes a more interesting local

order. In addition, as the first peak is different on every graph, therefore, we find that the total interatomic distance is in function of the composition of the material.

As well known, the RDF of a crystal structure has a profile with several peaks corresponding to the lattice positions of atoms [37]. As shown in each curve, it can be noted that the FDR's Al-Mg-Si of the system obtained for every structure is different and the oscillations in every graph are very pronounced and characteristic to the particular phase state of every studied phases.

From these graphs, the peaks in each curve are getting less intensive and broader with time for RDF of similarly for each phases, while peaks keep broad after the deformation for the same phases.

To support the quality of our molecular dynamics simulation. The total interatomic distance between Al, Mg and Si atoms for each Al-Mg-Si phase with three-different compositions, before and after compression, is defined as the total interatomic distance corresponding to the first peak in each curve as tabulated in Table VI. 4.

Table VI. 4: Simulated interatomic distances r for each structure before and after compression.

Phases	$r(\text{Å})$ Before compression	$r(\text{Å})$ After compression
GP- AlMg_4Si_6	2,955	2,895
U2- $\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$	2,865	2,955
β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$	2,925	2,895

From the above table, it can be determined that the numerical interatomic distances obtained decreases from 2,955 Å to 2,895 Å as the Si concentration decreases from 57% to 35%, and the Al concentration increases from 10% to 33%, while the Mg concentration is the same in both phases. This is due to the large number of Si atoms with a larger radius, $R_{\text{Si}}=1.8$ Å, compared to that of the Al atom $R_{\text{Al}}=1.34$ Å.

While, for β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$ phase, we observe that the total interatomic distance is slightly lower than that of the GP- AlMg_4Si_6 phase, since the percentage of Si is almost the same for both phases; and due to the larger number of Al atoms with a smaller radius $R_{\text{Al}}=1.43$ Å.

As a result, the average interatomic distance for the whole system therefore increases after compression deformation.

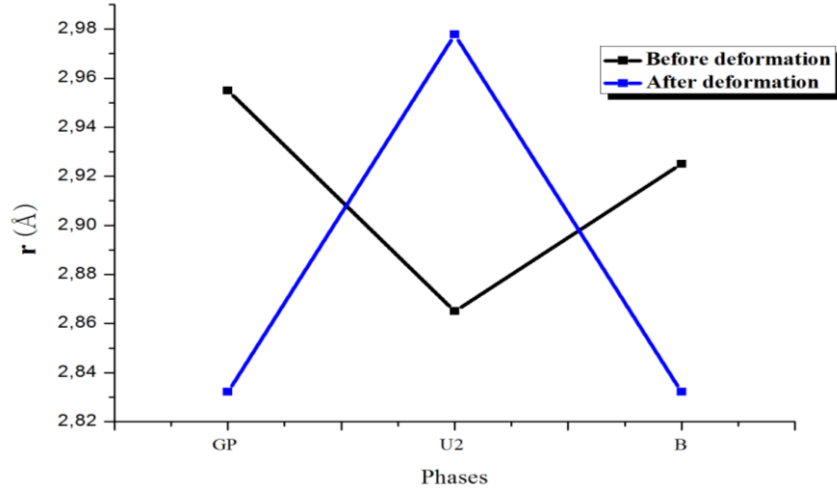


Fig. VI. 9: Change in the total interatomic distance before and after compression for each phase.

As discussed, the total interatomic distance was found to vary with Mg & Si concentration added to pure Al. As mentioned in the Table VI. 4 & Figure VI. 9, we see also that this distance changes after compression. Based on this, alloys are possibly changed their crystalline structure during the compression deformation. When comparing between the curves before and after compression, clearly shows that the total interatomic distance proportionally decreases after compression.

c. Uni axial Compression analysis

In this investigation, MD simulations were used to study in details the mechanical properties and plastic deformation mechanisms of a range of Al-Mg-Si phases during uniaxial compression loading. During this entire simulation, we apply the same conditions that we applied for the binary phases [2].

The stress-strain curves have the same behavior. Initially the stress increases nearly linearly with increasing applied strain indicating an elastic regime. The transition from elastic to plastic regime is seen where the line starts to curve. Upon reaching the yield point, the stress then shows a decrease to a local minimum, indicating material destruction.

We used Matlab to plot the compressive stress-strain relationship. The vertical axis represent shear stress, while the horizontal represents shear strain. Which is used to determine elastic limit, rupture pressure and Young's Modulus. For the case of uni-axially compression strain applied along the x direction, at the same strain rate, but at different fractions of Mg and Si.

From figure VI. 10, we can clearly see that stress in the y and z directions fluctuates near zero.

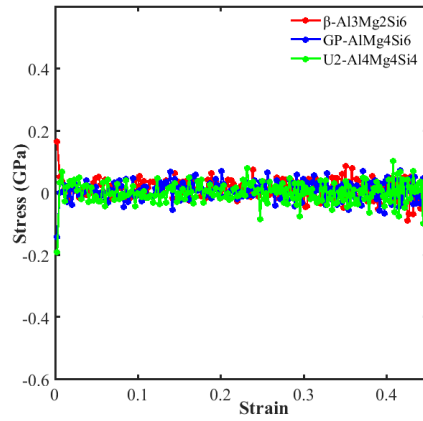


Fig. VI. 10: Stress-strain curves for Al-Mg-Si phases under uniaxial compressive strain along the y and z directions, measured at the same values of strain.

Figure 11 illustrates Stress-strain curves of uni-axially compressive strain applied along the x direction of ternary Al-Mg-Si phases. These curves can be all divided into four stages: Elastic stage, hardening stage, damage stage, and failure stage, which are similar to the Al/Mg binary phases [2]. Except U2-Al₄Mg₄Si₄ phase has it's own unique stress-strain curve. We can observe that it has two hardening peaks; a strain hardening, occurs when the phase experiences plastic deformation, and a necking, occurs after a material hits it's ultimate compressive strength. This type of curves leads to increasing the yield stress or hardening of the U2-Al₄Mg₄Si₄ phase.

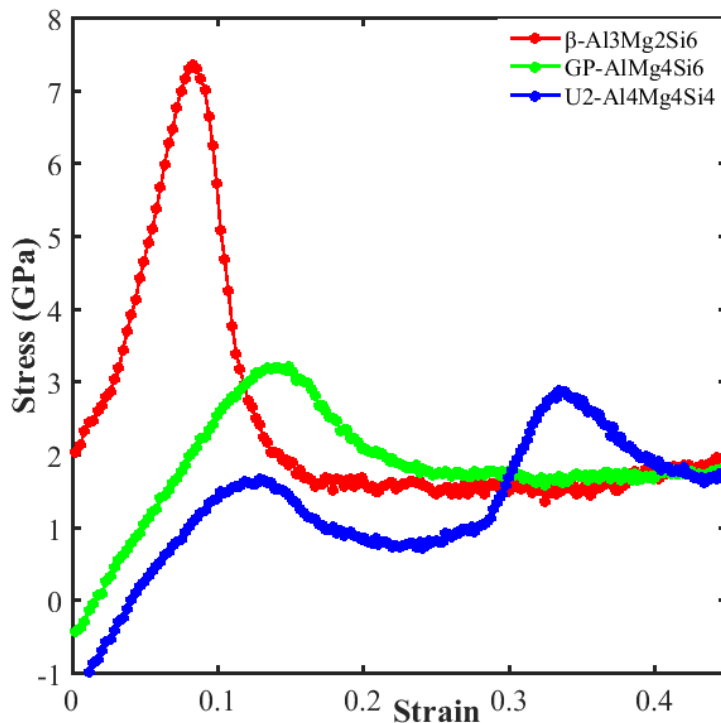


Fig. VI. 11: Stress-strain curves for Al-Mg-Si phases under uniaxial compressive strain applied along the x direction for three different phases, measured at same values of strain.

Red: β -Al₃Mg₂Si₆, Green: GP-AlMg₄Si₆, and blue: U2-Al₄Mg₄Si₄.

As we can observe, a considerable different trend is observed. For instance, for the curve of β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$ phase, we observe that the slope is higher and steeper so the fatigue behavior of this phase is less dispersed. Therefore, for GP- AlMg_4Si_6 phase the fatigue scatter is large because of the lower slope value, which make this phase the weaker phase under compressive loading. According to the above stress-strain curves of Al-Mg-Si phase's deformation, we can obtain the elastic properties of our material. For each structure, Young's modulus and elasticity limit are tabulated in table VI. 5.

Table VI. 5: Elasticity limit and Young's modulus of the Al-Mg-Si phases.

Phases	σ_e (GPa)	E (GPa)
GP- AlMg_4Si_6	3	44
U2- $\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$	2,7	66,66
β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$	7,25	90

Based on the table above, GP- AlMg_4Si_6 and U2- $\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$ has almost the same elasticity limit. While, for β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$ phase its elastic limit is 7.25 GPa, it has the highest elasticity limit. From the same table, the Young's modulus value for β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$ are slightly higher than the other phases, U2- $\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$ phase is positioned a little bit lower, showing that both are stiff and strong phases, meanwhile GP- AlMg_4Si_6 phase has the least Young's Modulus making this phase the most ductile and malleable phase. These phenomena took place since there is a difference in the atomic bonding and atomic arrangement in each phase.

In Fig.VI.12, the alloying percentage effect on elasticity limit and young's modulus properties are plotted.

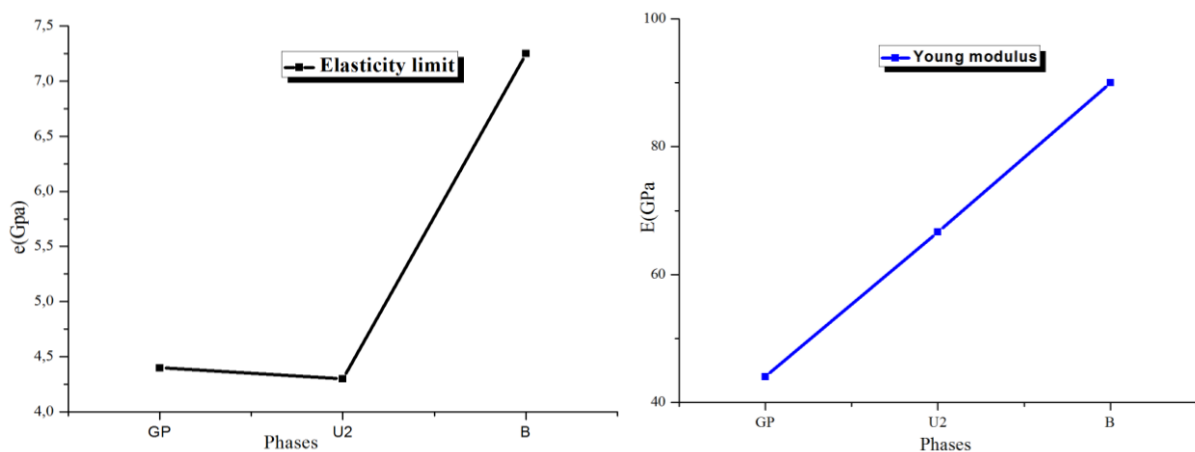


Fig. VI. 12: Elasticity limit & Young's modulus for each ternary phase.

From Table VI.5 & Figure VI.12 Young's modulus and elasticity limit, also indicate that the chemical composition is a key factor, which influence the rupture point of Al-Mg-Si ternary phases, which changes Al-Mg-Si alloys properties.

Besides, Young's modulus and elasticity limit, Table VI.6. also indicate that ultimate compressive strength is influenced by the chemical composition, which influences the rupture point of Al-Mg-Si phases.

Table VI. 6: Ultimate strength for Al/Mg/Si phases after compression.

phases	Ultimate compressive strength (GPa)
GP- AlMg_4Si_6	3,2
U2- $\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$	2,95
β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$	7,4

The maximum amount of compressive stress of GP- AlMg_4Si_6 and U2- $\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$ phases was observed to only change slightly during the deformation with decreasing the concentration of Si and increasing the percentage of Al, while the percentage of Mg is the same. Therefore, β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$ phase has the highest failure point, while U2- $\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$ phase had the lowest one.

From the molecular dynamics simulation, we focused on the elastic behavior of Al-Mg-Si ternary phases, the simulated mechanical properties under compression showed that β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$ was tougher and stiffer with the highest mechanical properties ($E = 90$ GPa) than the other two structures, and its changes its shape only slightly under elastic loads.

U2- $\text{Al}_4\text{Mg}_4\text{Si}_4$ phase is slightly tougher ($E = 66.66$ GPa). While, GP- AlMg_4Si_6 phase was the most elastic under compression showing the lowest Young modulus ($E=44$ GPa) less than other phases. This phase exhibits less stiffness comparing to other phases, and changes its shape considerably at the same strain rate, compared to other structures.

The deformed ternary phases show high strength and ductility as compared to the pure Al and binary phases [2,4]. So, most of the Al-Mg-Si alloys with β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$ phase show elasticity more than Al-Mg-Si alloys with other phases. Al/Mg/Si alloys becomes stronger and more elastic when we increase the ratio of β - $\text{Al}_3\text{Mg}_2\text{Si}_6$ phase, by increasing the percentage of Si added and apply the proper heat treatment to increase the presence of this phase in these alloys. The increment of this phase in Al/Mg/Si alloys, will increment their elasticity and their ductility.

Summary

Simulation is helpful to study many reactions on the atomic scale. By using molecular dynamics simulations, the compressive behavior of phases in ternary Al/Mg/Si systems has been studied. The results obtained from this simulation have led to the following conclusions.

- ✓ For simulated ternary phases, as for the compression deformation, the highest young's modulus was observed in the β -Al₃Mg₂Si₆ phase because the added Si substantially increased the strength of this phase. Furthermore, GP-AlMg₄Si₆ phase has the lowest Young's modulus.
- ✓ The presence of β -Al₃Mg₂Si₆ phase in ternary Al/Mg/Si alloys seems to have a significant effect on mechanical behavior of these alloys.
- ✓ However, the nature of the precipitations, which depends on the chemical composition and the thermal history, influence the mechanical properties of these alloy.
- ✓ So, to harden Al-Mg-Si alloys and improve the ductility of Al/Mg/Si alloys it is required to increment the presence of β -Al₃Mg₂Si₆ phase.

Conclusion

La simulation par dynamique moléculaire est un outil utile pour étudier de nombreuses réactions à l'échelle atomique. En utilisant des approches de simulation, le comportement en compression des phases dans les systèmes ternaires Al/Mg/Si a été étudié. Les résultats obtenus à partir de cette simulation ont conduit aux conclusions suivantes.

- ✓ Pour les phases ternaires simulées. Lors d'une déformation en compression, le module d'Young le plus élevé a été observé dans la phase β -Al₃Mg₂Si₆, la combinaison des plus hautes concentrations d'Al et du Si a considérablement augmenté la résistance de cette phase. Par contre, la phase GP-AlMg₄Si₆ a le module d'Young le plus bas.
- ✓ La présence de la phase β -Al₃Mg₂Si₆ dans les alliages ternaires Al/Mg/Si semble avoir un effet significatif sur le comportement mécanique de ces alliages.
- ✓ Cependant, la nature des précipitations, qui dépend de la composition chimique et de l'historique thermique, influence les propriétés mécaniques de ces alliages.
- ✓ Ainsi, pour durcir et adoucir les alliages Al/Mg/Si et améliorer leur ductilité, il est nécessaire de favoriser la présence de la phase β -Al₃Mg₂Si₆.

References Ch. VI

- [1] Emsley J., *The Elements*, 2nd, Oxford; Clarendon Press; 1991.
- [2] Chabba H. & Dafir D. Compression Behavior of Al-Mg Phases, *Molecular Dynamics Simulation, International Journal of Engineering Research in Africa*; Jan. 2020; 46: 15–31.
- [3] Jelinek B., Groh S., Horstemeyer M.F., Houze J., Kim S.G., Wagner G.J., Moitra A., and Baskes M.I. Modified embedded atom method potential for Al, Si, Mg, Cu, and Fe alloy, *Physical Review B*; 2012, 85(24): 245102.
- [4] Chabba H., Lemaalem M., Derouiche A., BELMIR F., Dafir D., Modeling aluminum using molecular dynamics simulation *J. Mater. Environ. Sci.*, 2018, 9(1): 93-99.
- [5] Ercolessi F., Adams J.B., Interatomic Potentials from First-Principles Calculations: The Force-Matching Method. *Europhysics Letters (EPL)*, 1994, 26(8): 583-588.
- [6] D. C. Rapaport, *The Art of Molecular Dynamics Simulation* second edition, Cambridge University Press, 2^{ème} edition, 1 avril 2004, p. 11-14.
- [7] S. Plimpton, Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics, *Journal of Computational Physics*, 1995; 117(1): 1-19.
- [8] A. Stukowski, Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO-the Open Visualization Tool. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 2009. 18(1): 015012.
- [9] K. Momma, F. Izumi, VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data, *J. Appl. Crystallogr.*, 2011, 44(6): 1272-1276.
- [10] Phillips, H.W.L., *Annotated Equilibrium Diagrams of Some Al Alloy Systems*, Monograph, Inst. of Met., London, (1959); 25(18): 57-65.
- [11] Edwards G. A., Stiller K., Dunlop G. L., Couper M. J., The precipitation sequence in Al–Mg–Si alloys, *Acta materialia*, 1998, 46: 3893.
- [12] K. Matsuda Y. Sakaguchi Y. Miyata Y. Uetani T. Sato A. Kamio S. Ikeno, Precipitation sequence of various kinds of metastable phases in Al-1.0mass% Mg₂Si-0.4mass% Si alloy, *J. Mater. Sci.* 2000, 35(1): 179-189.
- [13] A. Serizawa, S. Hirose, and T. Sato, “Three-Dimensional Atom Probe Characterization of Nanoclusters Responsible for Multistep Aging Behavior of an Al-Mg-Si Alloy,” *Metall. Mater. Trans. A*, Jan. 2008; 39(2): 243-251.
- [14] Torsæter M., Hasting H. S., Lefebvre W., Marioara C. D., Walmsley J. C., Andersen S. J., & Holmestad R. The influence of composition and natural aging on clustering during preaging in Al-Mg-Si alloys. *Journal of Applied Physics*, 2010, 108(7), 073527.

- [15] Marioara, C. D., Andersen, S. J., Jansen, J., & Zandbergen, H. W. Atomic model for GP-zones in a 6082 Al-Mg-Si system. *Acta Materialia*, 2001, 49(2): 321-328.
- [16] Hasting H. S., Frøseth A. G., Andersen S. J., Vissers R., Walmsley J. C., Marioara C. D., Danoix F., Lefebvre W., Holmestad R., Composition of β'' precipitates in Al-Mg-Si alloys by atom probe tomography and first principles calculations. *J. Appl. Phys.* 2009, 106 (12): 123527.
- [17] Vissers, R., van Huis, M. A., Jansen, J., Zandbergen, H. W., Marioara, C. D., & Andersen, S. J. The crystal structure of the β' phase in Al-Mg-Si alloys. *Acta Materialia*, 2007: 55(11), 3815-3823.
- [18] Andersen, S. J., Marioara, C. D., Vissers, R., Frøseth, A., & Zandbergen, H. W. The structural relation between precipitates in Al-Mg-Si alloys, the Al-matrix and diamond silicon, with emphasis on the trigonal phase U1-MgAl₂Si₂. *Materials Science and Engineering: A*, 2007; 444(1-2): 157-169.
- [19] Andersen, S. J., Marioara, C. D., Frøseth, A., Vissers, R., & Zandbergen, H. W. (2005). Crystal structure of the orthorhombic U2-Al₄Mg₄Si₄ precipitate in the Al-Mg-Si alloy system and its relation to the β' and β'' phases. *Materials Science and Engineering: A*, 2005; 390(1-2): 127-138.
- [20] Jacobs, M. H. The structure of the metastable precipitates formed during ageing of an Al-Mg-Si alloy. *Philosophical Magazine*, 1972, 26(1): 1-13.
- [21] Marioara C. D., Andersen S. J., Birkeland A., Holmestad R., Orientation of silicon particles in a binary Al-Si alloy, *J. Mater. Sci.* 2008, 43(14): 4962-4971.
- [22] Matsuda K., Sakaguchi Y., Miyata Y., Uetani Y., Sato T., Kamio A., Ikeno S., Precipitation sequence of various kinds of metastable phases in Al-1.0mass% Mg₂Si-0.4mass% Si alloy, *J. Mater. Sci.* 2000, 35, 179-189.
- [23] Matsuda K., Tada S., Ikeno S., Sato T., & Kamio A. Crystal system of rod-shaped precipitates in an Al-1.0 mass% Mg₂Si-0.4mass%Si alloy. *Scripta Metallurgica et Materialia*, 1995; 32(8): 1175-1180.
- [24] Chen, J. H., Costan, E., van Huis, M. A., Xu, Q., & Zandbergen, H. W. Atomic Pillar-Based Nanoprecipitates Strengthen AlMgSi Alloys. *Science*, 2006; 312(5772): 416-419.
- [25] Frøseth A. G., Høier R., Derlet P. M., Andersen S. J., & Marioara C. D. Bonding in MgSi and Al-Mg-Si compounds relevant to Al-Mg-Si alloys. *Physical Review B*, (2003). 67(22): 224106.

- [26] Andersen S.J., Marioara C.D., Frøseth A., Vissers R., Zandbergen H.W., Crystal structure of the orthorhombic U₂-Al₄Mg₄Si₄ precipitate in the Al-Mg-Si alloy system and its relation to the β' and β'' phases, Mater. Sci. Eng. 2005; A390: 127-138.
- [27] Andersen S. J., Zandbergen H. W., Jansen J., Træholt C., Tundal U., & Reiso O. The crystal structure of the β'' phase in Al-Mg-Si alloys. Acta Materialia, 1998,46(9): 3283-3298.
- [28] Baskes, M. I. Modified embedded-atom potentials for cubic materials and impurities. Physical Review B, 1992, 46(5): 2727-2742.
- [29] Starink, M. J., & Zahra, A.-M. β' and β precipitation in an Al-Mg alloy studied by DSC and TEM. Acta Materialia, 1998, 46(10): 3381-3397.
- [30] Verlet L., Computer experiments on classical fluids. I. Thermodynamical properties of Lennard-Jones molecules. Phys. Rev., 1967, 159(1): 98: 103.
- [31] Verlet L., Computer experiments on classical fluids. II. Equilibrium correlation functions. Phys. Rev., 1968, 165(1):201-214.
- [32] Gibbs J. W. Elementary principles in statistical mechanics. New York: Charles Scribner's Sons; 1902.
- [33] Posch H. A., Hoover W. G., & Vesely F. J. Canonical dynamics of the Nosé oscillator: Stability, order, and chaos. Physical Review A.; 1986; 33 (6): 4253-4265.
- [34] Stukowski A., Structure identification methods for atomistic simulations of crystalline materials Model. Simul. Mater. Sci. Eng., 2012, 20(4): 045021.
- [35] Honeycutt J.D., Andersen H.C., Molecular dynamics study of melting and freezing of small Lennard-Jones clusters J. Phys. Chem., 1987; 91(19):4950-4963.
- [36] B. Widom, Statistical mechanics a concise introduction for chemists, Cambridge University Press, New York, 2002.
- [37] PETKOV Valeri. Pair distribution functions analysis. J. Characterization of Materials, 2002, p. 1-14.

Conclusions générales

Le but de cette thèse était de modéliser la structure des alliages d'Aluminium en utilisant la simulation de la dynamique moléculaire dans l'espoir de trouver une structure d'alliage appropriée qui soit ultrarésistante.

En résumé, afin de mieux comprendre le mécanisme de déformation, la simulation de dynamique moléculaire a été réalisée avec des potentiels appropriés, pour l'Al pur et ses alliages pendant une déformation. Dans le but de modéliser des structures différentes en utilisant les outils de simulation de la dynamique moléculaire. Nous avons largement atteint les principaux objectifs de cette thèse et, ce faisant, nous avons découvert les phases qui sont responsables de la résistance des alliages d'Aluminium.

L'objectif de ce travail a été d'appréhender les relations entre les phases existantes dans les alliages binaires et ternaires en alliages d'Aluminium de la série 5xxx et 6xxx et les mécanismes d'endommagements rencontrés durant un essai de tension et de compression.

Le premier chapitre est une revue bibliographique exposant les différentes caractéristiques des alliages d'Aluminium. Le second chapitre présente une brève présentation de la technique de la Dynamique Moléculaire.

Les outils de la simulation informatique, les scripts d'entrée et de sortie du logiciel de simulation LAMMPS, les logiciels de visualisation et d'analyse, sur lesquels nous nous appuyons pour analyser et interpréter nos résultats de simulation, ont été présenté dans le chapitre III.

Une modélisation du comportement mécanique après une déformation, de l'Aluminium pur a été exposée dans le chapitre IV, des phases binaires des alliages de la série 5xxx dans le chapitre V. Enfin au chapitre VI, nous avons effectué une autre série de simulation des phases ternaire en présence de l'Al, Mg et le Si. Une analyse de la microstructure et du comportement macroscopique des alliages d'Al à l'état allié semble les différencier. Du fait les déformations observées durant la compression ont été l'objet de cette étude.

Les résultats obtenus à partir des simulations ont conduit aux conclusions suivantes :

- ✓ L'approche de la simulation par dynamique moléculaire s'est avérée utile pour décrire le mécanisme de formation des phases dans les systèmes purs, binaires ou même dans les systèmes d'alliage ternaires avec d'autres éléments supplémentaires. Par conséquent, la simulation de DM pourrait éventuellement fournir plus d'informations lorsqu'elle est utilisée pour étudier les alliages d'Aluminium.

- ✓ Les résultats simulés présentent une corrélation satisfaisante avec les essais expérimentaux, ce qui montre, que les simulations de DM peuvent être utilisées pour prédire les dommages des matériaux élastiques-plastiques.
- ✓ L'avantage de ce modèle de simulation est sa rapidité d'exécution, sa faible consommation en ressources informatiques et donne des résultats comparatifs avec les résultats expérimentaux assez simplement et rapidement.
- ✓ Cette étude théorique fait appel principalement à des simulations de type dynamique moléculaire. Cependant, la qualité des résultats obtenus par cette modélisation dépend fortement du choix du potentiel. Il a donc fallu dans un premier temps choisir des potentiels interatomiques. Par ailleurs, notre travail a été effectué sur la base des potentiels semi-empiriques du type EAM et MEAM.
- ✓ Sur la base des résultats de la modélisation d'Al pur, phases binaire et ternaire, il a été conclu que la composition chimique a un effet significatif sur les propriétés et le comportement mécaniques des alliages d'Aluminium.
- ✓ β -Al₃Mg₂ et γ -Al₁₂Mg₁₇ dans les alliages binaires d'Al et Mg sont les phases les plus résistantes à la compression en raison de leur résistance ultime à la compression et de leur capacité à résister à la déformation.
- ✓ ϵ -Al₃₀Mg₂₃ est la phase la plus faible par rapport aux autres phases en raison de son comportement mécanique sous charge de compression.
- ✓ Pour durcir les alliages Al/Mg et améliorer leurs ductilité, il est nécessaire d'augmenter la présence de la phase β -Al₃Mg₂ et γ -Al₁₂Mg₁₇ dans ces alliages.
- ✓ Pour les phases Al-Mg-Si ternaires simulées. Lors d'une déformation en compression, le module d'Young le plus élevé a été observé dans la phase β -Al₃Mg₂Si₆, la combinaison des plus hautes concentrations d'Al et du Si a considérablement augmenté la résistance de cette phase. Par contre, la phase GP-AlMg₄Si₆ a le module d'Young le plus bas.
- ✓ La présence de la phase β -Al₃Mg₂Si₆ dans les alliages ternaires Al-Mg-Si semble avoir un effet significatif sur le comportement mécanique de ces alliages.
- ✓ Ainsi, pour durcir les alliages Al/Mg/Si et améliorer leur ductilité, il est nécessaire d'augmenter la présence de la phase β -Al₃Mg₂Si₆.

- ✓ Cependant, la nature des précipitations, qui dépend de la composition chimique et de l'historique thermique, influence les propriétés mécaniques de ces alliages binaires Al-Mg et ternaires Al-Mg-Si.

Les nombreuses investigations réalisées dans cette thèse ont permis de dégager de nombreuses relations entre les phases présentes dans les alliages d'Aluminium et les mécanismes d'endommagement durant la compression des phases existantes dans les alliages d'Al. Nous avons pu réaliser une étude des propriétés structurales et dynamiques des phases d'alliages d'aluminium pour des compositions couvrant une large partie du diagramme de phase binaire et ternaire. En conséquence, pour améliorer les propriétés mécaniques des alliages d'Aluminium, les recommandations suivantes peuvent être suivies :

- L'ajout des éléments d'addition à l'Aluminium pur.
- Dans les alliages binaires, favoriser la présence des phases β -Al₃Mg₂ et γ -Al₁₂Mg₁₇.
- Dans les alliages ternaires avec Mg et Si principaux éléments d'addition, favoriser la présence de la phase β -Al₃Mg₂Si₆.
- Prendre en compte de manière encore plus précise l'évolution de la précipitation dans les alliages d'Aluminium.

Perspectives

Nous envisageons comme perspective de ce travail de simulation faire l'extension d'étude des propriétés mécaniques et microstructurales d'autres alliages d'Aluminium contenant plus que trois éléments d'addition, par différents essais mécaniques, on visant la micro dureté, on se basant sur la méthode de la dynamique moléculaire.

- Des simulations similaires des phases binaires Al/Si (article en cours).

Productions scientifique

➤ Articles :

- CHABBA H., LEMAALEM, M., DEROUICHE, A., & DAFIR D., **Modeling Aluminum using molecular dynamics simulation**, J. Mater. Environ. Sci, 9, 2017, 93-99.
- CHABBA, H., et al., **Influence of heat treatment on microstructural evolution and mechanical characteristics of AA 6061 Aluminum alloys**, Science-future of Lithuania, 11, 2019.
- CHABBA, H., & Dafir D., **Compression behavior of Al-Mg phases, molecular dynamics simulation**, International journal of engineering research in Africa, 46, 2020: 15-1.
- CHABBA, H., & Dafir D., **Atomistic Simulation Study of Mechanical Deformation of Al-Mg-Si Alloys**. (Accepted with minor revisions).

➤ Communications :

- Conférence 'Sciences et technologies au service de l'environnement', ENSA Tétouan, 'L'effet de la présence du Mg et Si sur les propriétés mécanique des alliages d'aluminium', 23 mars 2016.
- International meeting on Nano and Smart Materials for Renewable Energy, faculté des Sciences Ben M'Sik Casablanca, 'Modélisation de l'influence du traitement thermique des alliages Al-Mg-Si sur leurs propriétés mécanique', 28-29 Avril 2016.
- 20^{ème} conférence de "SCIENCE-FUTURE OF LITHUANIA. Mechanics, Materials Engineering, Industrial Engineering and Management, Vilniaus Gedimino Technikos universitetas Mechanikos fakultetas, Lithuania", 'Atomistic simulation study of mechanical deformation of aluminum alloys', 27 Avril 2017.

- 13^{ème} conférence internationale "Mechatronic Systems and Materials", Mechanikos fakultetas, Lithuania, '**Influence of heat treatment on microstructural evolution and mechanical characteristics of the Al-6061 alloys**' 03-05 juillet 2017.
- 2^{ème} édition de la conférence internationale en 'Matériaux fonctionnels et leurs Applications Technologiques' université Hassan II Casablanca, '**microstructural evolution and mechanical characteristics of the Al-6061 alloys after a heat treatment**', 13 Octobre 2017.
- 1^{ère} édition de la conférence internationale 'Modélisation et Optimisation des Systèmes Mécaniques' faculté of sciences & technologies Fez, '**Modeling aluminum using molecular dynamics simulation**', 5-6 Décembre 2017.
- Conférence internationale en 'advanced materials, Nanosciences and applications (ICAMANA@2019) & training school in spectroscopies for environment and Nano chemistry', Faculté des sciences d'Oujda. '**Mechanical properties of Al/Mg alloys: a molecular dynamics study**', 10-13 Décembre 2019.