HAL
open science

Étude des instabilités à l'échelle atomique du graphène par la méthode asymptotique numérique

Yu Cong, Julien Yvonnet, Hamid Zahrouni

▶ **To cite this version:**

Yu Cong, Julien Yvonnet, Hamid Zahrouni. Étude des instabilités à l'échelle atomique du graphène par la méthode asymptotique numérique. CFM 2011 - 20ème Congrès Français de Mécanique, Aug 2011, Besançon, France. hal-03422485

HAL Id: hal-03422485

https://hal.science/hal-03422485v1

Submitted on 9 Nov 2021

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

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

Etude des instabilités à l'échelle atomique du graphène par la méthode asymptotique numérique

Yu Cong[a], Julien Yvonnet[b], Hamid Zahrouni[a]

a. *Laboratoire d'Etude des Microstructures et de Mécanique des Matériaux (LEM3), CNRS UMR 7239, Université Paul Verlaine - Metz, Ile du Saulcy, 57045 Metz cedex 1 (France)*

b. *Laboratoire Modélisation et Simulation Multi-échelles (MSME), CNRS UMR 8208, Université Paris-Est, 5 Boulevard Descartes, 77454, Marne-la-Vallée (France)*

Résumé :

Dans ce travail nous proposons une technique de résolution des problèmes non linéaires quasi-statiques à l'échelle atomique en présence d'instabilités par la méthode asymptotique numérique. La démarche consiste à transformer les équations d'équilibre non linéaires incluant les forces inter-atomiques en une suite récurrente de problèmes linéaires. Une meilleure efficacité a été observée par comparaison avec des méthodes classiques de résolution telle que Newton-Raphson ou de type gradient conjugué. Des applications à des structures de type feuilles de graphène sont présentées.

Abstract :

In this study, we present a numerical technique based on the Asymptotic Numerical Method (ANM) to deal with instability phenomena in the context of molecular mechanics simulation. Systems investigated consist of atomic-scale single walled lattice structures (such as graphene sheets) and are subjected to quasi-static tensile loading. The presence of instabilities within the structure brings about significant influence on the mechanical behaviors at a larger scale. Better computational efficiency can be observed compared to classical methods such as Newton-Raphson and those that use conjugate gradient.

Mots clefs : Méthode asymptotique numérique ; graphène ; instabilité

1 Introduction

Le graphène est une structure bidimensionelle constituée d'une seule couche d'atomes de carbone régulièrement disposés sur un réseau hexagonal. Ses propriétés particulières ont motivé de nombreuses études expérimentales et de modélisation. Dans le cadre mécanique, deux méthodes peuvent être distinguées : La première, souvent appelée 'mécanique atomistique', consiste à modéliser directement les interactions interatomiques en recherchant l'équilibre du système par minimisation de l'énergie. Cette méthode est capable de prédire la réponse de chaque atome individuellement mais présente un coût de calcul excessif pour traiter des modèles de grande taille. La deuxième méthode vise à établir un modèle équivalent continu afin de l'analyser par des méthodes classiques de résolution telle que la méthode des éléments finis. Elle s'avère plus intéressante en terme de l'efficacité du calcul mais nécessite des modèles particuliers prenant en compte les effets physiques liés aux petites échelles (voir par exemple les travaux d'Arroyo *et al.* [1],[2] visant à développer un modèle de membrane en déformation finie par une loi exponentielle de type Cauchy-Born. Dans ce travail, nous cherchons à résoudre les problèmes non linéaires à l'échelle atomique pouvant présenter des instabilités. La méthode asymptotique numérique (MAN) est utilisée. La MAN [3] est basée sur un développement des différentes variables du problème non linéaire à résoudre sous la forme de séries tronquées à des ordres relativement élevés. Cela permet de transformer les équations non linéaires en une séquence d'équations linéaires qui admettent le même opérateur tangent. La MAN peut être considérée comme un prédicteur d'ordre élevé [4][5], qui n'a

généralement pas besoin de phase de correction. Une procédure de continuation est utilisée pour parcourir toute la branche solution du problème posé. Les principaux avantages de la MAN par rapport à Newton-Raphson sont les suivants : a) une réduction importante du nombre de décompositions de la matrice tangente ; b) une très bonne efficacité pour les problèmes présentant des instabilités ou des points limites [6].

2 Formulation du problème et résolution avec la MAN

Dans notre travail, on se place dans le cadre de la mécanique atomistique quasi-statique, où les effets thermiques (dynamiques) ne sont pas pris en compte. Dans ce cadre, la configuration d'équilibre s'obtient en minimisant l'énergie du système. Cette dernière correspond à la différence entre la somme des potentiels interatomiques calculée sur tout le domaine et le travail des forces extérieures. Nous appliquons dans cette étude le potentiel de Morse modifié [8] pour modéliser l'énergie interne interatomique du système. En notant $\mathbf{x}_i$ la position de l'atome i, Γ_1 l'ensemble des paires d'atomes liés par une liaison covalente et Γ_2 pour les triplets d'atomes formant des liaisons adjacentes, on a :

$$E_{interne} = E_{stretch} + E_{angle} = \sum_{(i,j)\in\Gamma_1} E_{stretch}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j) + \sum_{(i,j,k)\in\Gamma_2} E_{angle}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j, \mathbf{x}_k) \tag{1}$$

où

$$E_{stretch}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j) = D_e \left\{ \left[1 - e^{-\beta(r(\mathbf{x}_i,\mathbf{x}_j)-r_0)}\right]^2 - 1 \right\} \tag{2}$$

$$E_{angle}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j, \mathbf{x}_k) = \frac{1}{2} K_\theta \left(\cos\theta(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j, \mathbf{x}_k) - \cos\theta_0\right)^2 \tag{3}$$

Ce modèle prend en compte l'énergie $E_{stretch}$, liée à l'extension de la liaison colavente ij, ainsi que celle notée par E_{angle}, dûe à la variation de l'angle ijk. Dans (2) et (3), r représente la longueur de la liaison et θ correspond à l'angle que font les liaisons adjacentes ij et ik. Les deux énergies sont exprimées dans la configuration actuelle. Notons que la représentation trigonométrique de E_{angle} a été adoptée car elle évite le calcul de *acos* et ses dérivées et améliore l'efficacité du calcul. En effet, quand l'angle θ tend vers θ_0, cette représentation est équivalente à celle formulée à base d'angle, appelé « formulation harmonique ».

Les paramètres utilisés pour le graphène sont : $r_0 = 1.39 \times 10^{-10}m$, $D_e = 6.03105 \times 10^{-19}Nm$, $\beta = 2.625 \times 10^{10}m^{-1}$, $\theta_0 = 2.094rad$, $k_\theta = 0.9 \times 10^{-18}Nm/rad^2$, $k_{sextic} = 0.754rad^{-4}$. Remarquons que l'énergie E_{angle} est indépendante de $E_{stretch}$ et ne contribue nullement à cette dernière. En effet, E_{angle} a pour rôle d'enrichir le modèle et de le rendre stable. Les positions des atomes individuels sont déterminées en minimisant l'énergie du système. Cette énergie doit prendre en compte les énergies internes, c'est à dire $E_{stretch}$ et E_{angle} stockées dans l'ensemble des liaisons atomiques du domaine, et équilibrées par le travail issu des forces extérieures. Pour un système composé de N atomes :

$$E_{total} = \left(\sum_{(i,j)\in\Gamma_1} E_{stretch}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j) + \sum_{(i,j,k)\in\Gamma_2} E_{angle}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j, \mathbf{x}_k) \right) - \lambda \sum_{i=1}^{N} \mathbf{F}_i \cdot d\mathbf{x}_i \tag{4}$$

où $\mathbf{F}_i$ est la force extérieure exercée sur l'atome i. Ainsi, la configuration de l'énergie mimimale correspond à :

$$\frac{\partial E_{total}}{\partial \mathbf{x}} = \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}} \left(\sum_{(i,j)\in\Gamma_1} E_{stretch}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j) \right) + \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}} \left(\sum_{(i,j,k)\in\Gamma_2} E_{angle}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j, \mathbf{x}_k) \right) - \lambda \mathbf{F} = \mathbf{0} \tag{5}$$

Notons que $\mathbf{x} = (\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \ldots, \mathbf{x}_N)^T$ et $\mathbf{F} = (\mathbf{F}_1, \mathbf{F}_2, \ldots, \mathbf{F}_N)^T$. On y distingue les forces exercées sur l'atome i : $\mathbf{F}_{\mathbf{s}i}$ et $\mathbf{F}_{\mathbf{a}i}$, dérivées respectivement de $E_{stretch}$ et de E_{angle}. Il est à noter que pour calculer $\mathbf{F}_{\mathbf{s}i}$, seules les liaisons directement « attachées »à l'atome i sont considérées et que pour $\mathbf{F}_{\mathbf{a}i}$, on

considère tous les angles où l'atome i est impliqué. Ainsi, on décompose le problème complet en deux problèmes élémentaires à résoudre parallèlement : la résolution de $\mathbf{F}_{\mathbf{s}i}$ à partir de la liaison (i, j), et celle de $\mathbf{F}_{\mathbf{a}i}$ issue de l'angle (i, j, k) :

$$\mathbf{F}_{\mathbf{s}i}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j) = \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}_i}(E_{stretch}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j)) \tag{6}$$

$$\mathbf{F}_{\mathbf{a}i}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j, \mathbf{x}_k) = \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}_i}(E_{angle}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j, \mathbf{x}_k)) \tag{7}$$

En reprenant les expressions de $E_{stretch}$ et de E_{angle} (2) (3), on résume par les équations suivantes les deux problèmes élémentaires, dont le premier, défini pour une paire d'atomes (i, j)

$$\begin{cases} \mathbf{F}_{\mathbf{s}i}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j) = \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}_i}(E_{stretch}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j)) \\ E_{stretch}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j) = D_e \left\{ \left[1 - e^{-\beta(r(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j) - r_0)}\right]^2 - 1 \right\} \\ r(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j) = \sqrt{(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j)^2} \end{cases} \tag{8}$$

et le deuxième, défini pour un triplet d'atomes (i, j, k) :

$$\begin{cases} \mathbf{F}_{\mathbf{a}i}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j, \mathbf{x}_k) = \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}_i}(E_{angle}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j, \mathbf{x}_k)) \\ E_{angle}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j, \mathbf{x}_k) = \frac{1}{2} K_\theta \left(\cos\theta(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}_j, \mathbf{x}_k) - \cos\theta_0\right)^2 \\ \cos\theta = \frac{(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j) \cdot (\mathbf{x}_k - \mathbf{x}_j)}{\sqrt{(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j)^2}\sqrt{(\mathbf{x}_k - \mathbf{x}_j)^2}} \end{cases} \tag{9}$$

Rappelons que $\mathbf{x}_i$ est le vecteur position de l'atome i en configuration actuelle et peut se décomposer comme suit : $\mathbf{x}_i = \mathbf{x}_{(0)i} + \mathbf{u}_i$ où $\mathbf{u}_i$ représente le vecteur déplacement associé au point i. Ainsi, la relation est établie entre les forces internes dues à l'énergie interatomique, et les déplacements de chaque atome. La suite du travail consiste à résoudre ces relations par application de la méthode asymptotique numérique (MAN). Cependant, ces relations étant fortement non linéaires, l'application directe de la MAN à ces modèles est difficile. La solution consiste à remplacer ces équations par des relations quadratiques. La technique a été présentée dans [7]. Ceci permet de générer les formules de récurrence pour les différents ordres de troncature avec une addition simple et efficace.

Afin de transformer les équations (8)(9) sous forme quadratique, nous allons introduire des variables supplémentaires qui auront vocation de décomposer les expressions fortement non linéaires, en une suite de relations simples à résoudre par récurrence. Il est important que toutes ces variables introduites soient également développées sous forme quadratique. Prenons l'exemple du problème (8), celui-ci se condense sous la forme suivante en prennant en compte les trois expressions de ses composantes :

$$\mathbf{F}_{\mathbf{s}i} = 2D_e\beta \frac{\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j}{\sqrt{(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j)^2}} e^{-\beta(r - r_0)} \left[1 - e^{-\beta(r - r_0)}\right] \tag{10}$$

Par introduction des variables supplémentaires : $\alpha = e^{-\beta(r-r_0)}$, $A = \frac{\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j}{\sqrt{(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j)^2}}$ et $B = \alpha(1 - \alpha)$, on obtient la forme quadratique de l'expression (10) :

$$\mathbf{F}_{\mathbf{s}i} = 2D_e\beta \cdot A \cdot B \tag{11}$$

Remarquons que la variable B est déjà quadratique, mais les variables α et A ne le sont pas. Etant donné que $r^2 = (\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j)^2$, on peut traiter A de la façon suivante :

$$r \cdot A = \bar{\mathbf{u}} \tag{12}$$

avec $\bar{\mathbf{u}} = \mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j$. La variable α, définie comme une fonction exponentielle, peut être traitée en utilisant une forme différentielle. Sachant que $\frac{\partial \alpha}{\partial r} = -\beta e^{-\beta(r-r_0)}$, ce qui permet d'écrire :

$$-\beta\alpha \mathrm{d}r = \mathrm{d}\alpha \tag{13}$$

Jusqu'ici, nous avons transformé sous forme quadratique le premier problème non linéaire lié à $\mathbf{F}_{\mathbf{s}i}$, que l'on résume par le système suivant :

$$\begin{cases} \mathbf{F}_{\mathbf{s}i} = 2D_e\beta \cdot A \cdot B \\ r \cdot A = \bar{\mathbf{u}} \\ B = \alpha(1-\alpha) \\ -\beta\alpha \mathrm{d}r = \mathrm{d}\alpha \\ \bar{\mathbf{u}} = \mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j \\ r^2 = (\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j)^2 \end{cases} \tag{14}$$

Ce système quadratique est prêt pour l'application du développement asymptotique. Par la suite, on va développer toutes les variables du problème, y compris celles intermédiaires, sous forme de séries entières :

$$\begin{cases} \bar{\mathbf{u}}(a) = \bar{\mathbf{u}}_0 + \sum_{k=1}^{n} a^k \bar{\mathbf{u}}_k \\ \lambda(a) = \lambda_0 + \sum_{k=1}^{n} a^k \lambda_k \\ \alpha(a) = \alpha_0 + \sum_{k=1}^{n} a^k \alpha_k \\ A(a) = A_0 + \sum_{k=1}^{n} a^k A_k \\ B(a) = B_0 + \sum_{k=1}^{n} a^k B_k \end{cases} \tag{15}$$

où n représente l'ordre de troncature des séries et $\bar{\mathbf{u}}, \lambda, \alpha, A, B$ sont les variables du problème. La substitution de ces développements dans le problème non linéaire permet d'obtenir la suite récurrente de problèmes linéaires, écrite à l'ordre k $(1 \leq k \leq N)$:

$$\begin{cases} \mathbf{F}s_{i_k} = 2D_e\beta \cdot (A_0 \cdot B_k + A_k B_0) + 2D_e\beta \cdot \sum_{i=1}^{k-1} A_i B_{k-i} \\ A_k = \frac{1}{r_0}(\bar{\mathbf{u}}_k - A_0 r_k) - \frac{1}{r_0} \cdot \sum_{i=1}^{k-1} r_i A_{k-i} \\ B_k = \alpha_k - 2\alpha_k\alpha_0 - \sum_{i=1}^{k-1} \alpha_i \alpha_{k-i} \\ \alpha_k = -\beta\alpha_0 r_k - \frac{\beta}{k} \cdot \sum_{i=1}^{k-1} (k-i)\alpha_i r_{k-i} \\ r_k = \frac{1}{r_0}\bar{\mathbf{u}}_k \bar{\mathbf{u}}_0 + \frac{1}{2r_0} \cdot \sum_{i=1}^{k-1} \bar{\mathbf{u}}_i \bar{\mathbf{u}}_{k-i} \end{cases} \tag{16}$$

La condensation des différentes équations de (16) dans (16_1) permet d'établir l'expression de $\mathbf{F}s_{i_k}$ à partir du vecteur déplacement.

De façon similaire, on applique le même développement au deuxième problème élémentaire défini par (9). Comme pour le premier problème, on obtiendra un système d'équations, tel que (16) pour $\mathbf{F}_{\mathbf{s}i}$, dont la condensation permettra d'exprimer $\mathbf{F}_{\mathbf{a}i}$ aussi en fonction du vecteur déplacement. En tenant compte de (5), où la force interne est la somme de $\mathbf{F}_{\mathbf{s}i}$ et de $\mathbf{F}_{\mathbf{a}i}$, nous pouvons établir la relation d'équilibre sous la forme suivante :

$$\mathcal{L}_0 \bar{\mathbf{u}}_k = \lambda_k \mathbf{F} + \mathcal{F}_k^{nl} \tag{17}$$

où $\mathcal{L}_0$ est un opérateur tangent qui dépend uniquement de la solution initiale. Il est le même pour tous les ordres de la série. $\mathcal{F}^{nl}$ est un terme résiduel qui dépend des ordres inférieurs à k et nul pour l'ordre 1, et λ le coefficient du chargement. La technique présentée dans cette étude permet d'obtenir une bonne partie de la branche solution en décomposant une seule matrice tangente. Rappelons qu'aucune itération n'est nécessaire dans le cadre de la MAN, malgré la présence de la relation non linéaire de comportement. La solution complète du problème est obtenue en utilisant une technique de continuation asymptotique qui est assez simple à mettre en œuvre. Elle consiste à comparer des solutions à des ordres consécutifs et d'exiger que la différence relative entre ces deux solutions reste petite par rapport à un paramètre de précision δ (exemple $\delta = 10^{-5}$).

3 Exemples numériques

La précision de notre algorithme a été testée dans ce premier exemple, qui consiste à charger une feuille de graphène par des efforts de traction. Les résultats sont comparés avec ceux issus d'un code de référence, réalisé à l'aide de la méthode Newton-Raphson avec un pilotage en longueur d'arc. On

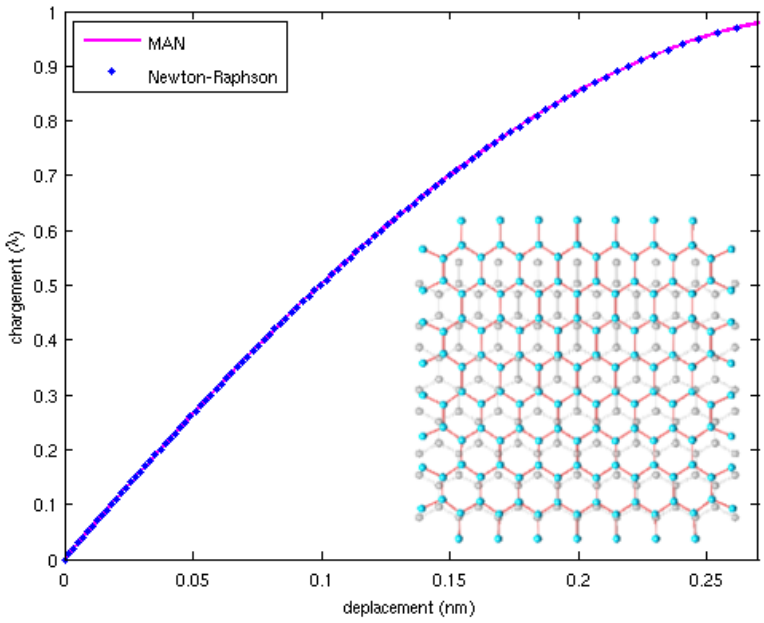

FIGURE 1 – Essai de traction : *comparaison avec la méthode Newton-Raphson*

relève au cours du chargement le déplacement d'un atome situé sur le bord chargé (Voir Fig 1). La cohérence entre les deux courbes montre la validité de l'algorithme.

La comparaison effectuée sur le temps de calcul montre l'efficacité de la Méthode Asymptotique Numérique par rapport à la méthode Newton-Raphson (Voir Table 1). Dans notre exemple comprenant $450\,ddl$, le calcul avec la MAN a été réalisé en prenant un développement asymptotique à l'ordre 25. Ceci a exigé 9 pas de calcul, et par conséquent 9 décompositions de la matrice tangente pour parcourir la même courbe solution, que l'on a pu décrire avec la méthode Newton-Raphson en 98 pas et un nombre total de 196 itérations, ce qui correspondait à 196 inversions de la matrice tangente.

TABLE 1 – Comparaison Vitesse de Calcul - *Traction Simple*

	N.R.	M.A.N.
temps de calcul	$3\,min\,43\,s$	$31\,s$

Le deuxième exemple a pour objectif d'étudier le potentiel de notre approche pour traiter des problèmes incluant des instabilités globales. La structure étudiée est représentée par une feuille de graphène de forme élancée au cours d'un chargement en compression. Un défaut a été introduit au milieu de la structure afin de déclencher le phénomène d'instabilité.

La figure 2 montre les réponses de la structure sous compression en présence de défauts. La structure présente un comportement plus rigide avec un défaut plus faible, ce qui est cohérent avec la physique du problème.

4 Conclusions

Dans ce travail, nous avons présenté les formulations permettant de résoudre des problèmes statiques non-linéaires des structures à l'échelle atomique en utilisant la méthode asymptotique numérique. En utilisant cette méthode, le problème non linéaire à résoudre est transformé en une séquence de problèmes linéaires. Par conséquent, la matrice tangente est calculée une seule fois pour chaque pas asymptotique, ce qui permet de réduire le temps de calcul de façon significative par comparaison aux méthodes classiques de type Newton-Raphson et permet de simplifier le pilotage en présence d'instabilités. Nous travaillons actuellement sur des applications qui présentent des modes d'instabilité

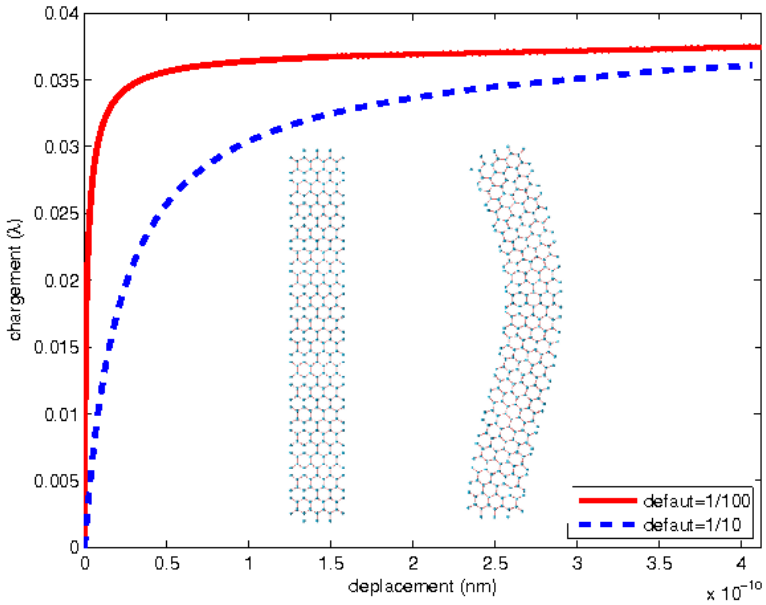

FIGURE 2 – Simulation d'une instabilité globale : *compression dans le plan du graphène incluant un défaut*

beaucoup plus complexes avec de petites longueurs d'onde.

Références

[1] M.Arroyo, T.Belytshko 2002 An atomistic-based finite deformation membrane for single layer crystalline films. *Physical Review* **69** 115415

[2] M.Arroyo, T.Belytshko 2004 Finite crystal elasticity of carbon nanutubes based on the exponential Cauchy-Born rule *Journal of Mechanics and Physics of Solids* **50** 1941-1977

[3] B.Cochelin, N.Damil, M.Potier-Ferry 2007 Méthode asymptotique numérique. *Hermès science publications* 2007

[4] H.Lahmam, J.M.Cadou, H.Zahrouni, N.Damil and M.Potier-Ferry 2002 High-order predictor-corrector algorithms *International Journal of Numerical Methdods* **55** 685-704

[5] W.Aggoune, H.Zahrouni, M.Potier-Ferry 2004 High-order prediction-correction algorithms for unilateral contact problems *Journal of Computational and Applied Mathematics* **168** 1-9

[6] E.H.Boutyour, H.Zahrouni, M.Potier-Ferry and M.Boudi 2004 Bifurcation points and bifurcated branches by an asymptotic numerical method and Padé approximants *International Journal of Numerical Methods in Engineering* **60** 1987-2012

[7] S.Nezamabadi, H.Zahrouni, J.Yvonnet 2011 Solving hyperelastic material problems by Asymptotic Numerical Method *Computational Mechanics, Springer* **47** 77-92

[8] T.Belytshko, S.P.Xiao, G.C.Schatz,and R.S.Ruoff 2002 Atomistic simulation of nanotube fracture *Physical Review B* **65** 235430