

# 强激光辐照下纳米晶体铜薄膜层裂破坏的实验研究\*

王永刚<sup>1,2)</sup> 贺红亮<sup>1)†</sup> Boustie Michel<sup>3)</sup> Sekine Toshimori<sup>4)</sup>

1) 中国工程物理研究院流体物理研究所冲击波物理与爆轰物理实验室, 绵阳 621900)

2) 宁波大学工学院力学与材料科学研究中心, 宁波 315211)

3) Laboratoire de Combustion et de Détonique, 1 Av. Clément Ader, Chasseneuil Cedex 86961, France)

4) Advanced Materials Laboratory, National Institute of Materials Science, Tsukuba 30520044, Japan)

(2007 年 4 月 13 日收到, 2007 年 5 月 23 日收到修改稿)

采用强激光辐照加载技术和激光速度干涉 (VISAR) 测试技术, 对纳米晶体铜薄膜的层裂特性进行实验测量和分析. 基于 VISAR 实测的自由面速度波形, 计算得到纳米晶体铜薄膜在超高拉伸应变率下的层裂强度高达 3 GPa, 明显高于多晶铜的层裂强度, 其原因归结于纳米晶体材料中存在大量晶界阻碍了位错运动.

关键词: 纳米晶体铜薄膜, 层裂, 激光辐照

PACC: 6250, 6220D, 6220F, 6220M

## 1. 引 言

纳米金属是指晶粒的特征尺度在纳米数量级范围内的金属单相或多相材料, 其特点是晶粒细小、缺陷密度高、晶界所占的体积百分数较大. 晶粒大小是影响传统多晶材料(晶粒尺寸在微米以上量级)力学性能的重要因素. 随着晶粒减小, 材料的强度和硬度增大. 但当晶粒减小到纳米量级时材料的力学性能将如何? 上世纪 80 年代, Gleiter<sup>[1]</sup>研究了这一问题. 随后, 纳米金属的力学性能逐渐成为学者们研究的热点<sup>[2-6]</sup>. 由于纳米金属结构上的特殊性, 大量研究结果表明其具有许多传统材料无可比拟的优异力学性能, 以纳米铜为例, 纳米铜具有高强度(屈服强度高达 0.35 GPa)、良好的塑性变形能力<sup>[7]</sup>以及室温条件下超塑延展性<sup>[8]</sup>等. 然而, 目前对纳米金属材料的力学性能研究主要集中在准静态加载条件下. 由于动态加载技术和诊断技术的困难, 人们对纳米金属在高应变率加载条件下的力学特性研究甚少.

近年来, 强激光辐照加载技术已较广泛地应用于研究材料在高应变率下的力学行为<sup>[9,10]</sup>. 相比传统动态加载手段(气体炮和化爆加载), 强激光辐照加载方法具有高加载率, 应变率可达  $10^6 \text{ s}^{-1}$ , 同时还有一个优点是所需要的样品尺寸较小, 这就为研

究难以制备大尺寸的块体材料的动态力学行为研究提供了有效的加载手段. 目前, 制备大块体的纳米金属材料还存在一定的困难, 因此, 本文选择采用强激光辐照加载技术和基于自由面速度观测基础上的 VISAR (velocity interferometer system for any reflector) 诊断技术<sup>[11]</sup>对纳米晶体铜薄膜在高应变率条件下的层裂破坏特性进行了实验研究, 结果显示纳米铜的动态拉伸强度(层裂强度)高达 3 GPa, 明显高于传统的多晶铜.

## 2. 纳米铜层裂实验

### 2.1 样品制备

纳米金属材料的制备方法大致可分为两类: 一类是先制备孤立的纳米颗粒, 然后固结致密化而成块体材料; 另一类是通过外部能量的作用, 使得晶粒细化达到纳米量级. 目前, 已经发展比较成熟的纳米金属制备方法主要有惰性气体冷凝法、机械合金化、非晶晶化法、电解沉积法等. 我们实验中纳米晶体铜的制备方法采用电解沉积法把纳米晶体铜沉积在镍合金基体上. 通过电解沉积法制备的纳米金属具有密度较高、疏松孔洞少以及内应力较小的优点. 图 1 给出了电解沉积法制备的纳米晶体铜薄膜的高分辨

\* 国家自然科学基金(批准号: 10476027)资助的课题.

† E-mail: honglianghe@263.net

率的透射电镜(TEM)照片,结果显示铜的晶粒尺度在纳米量级内.实验中,纳米晶体铜薄膜样品的厚度约为  $35\ \mu\text{m}$ ,而镍合金基体的厚度约为  $235\ \mu\text{m}$ .

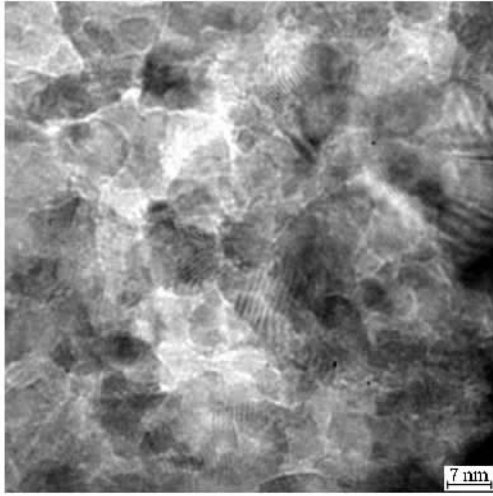


图1 纳米晶体铜薄膜的透射电镜照片

## 2.2 实验方法

实验的原理如图 2(a)(b)所示.当强激光辐照在金属样品前表面时,将发生热-力效应,瞬时能量沉积使材料表层被强烈汽化和电离,产生的等离子体快速向外膨胀喷溅,其反冲作用力产生一强冲击波并进入样品内部,使样品受到冲击加载.由于是脉冲加载,冲击波后面将跟着一束稀疏波,当强冲击波到达样品后表面时将反射一束稀疏波,这两束稀疏波相遇将会在样品中产生拉伸应力.当该拉伸应力超过一定极限值时,材料内部会出现损伤或完全层裂.当后自由面反射的稀疏波到达损伤区或层裂区时,将反射一压缩波使自由面速度回跳,由此我们可以判断材料内部是否产生损伤或层裂.这里值得注意的是,纳米晶体铜薄膜与基体镍合金之间有一个界面,一般来说,界面的抗拉伸强度要远低于材料本身的抗拉伸强度,这会导致层裂(拉伸断裂)容易发生在两种材料之间的界面上.目前,通过激光加载产

生层裂技术已成为一种测量两种材料之间界面的连接强度的有效方法<sup>[12,13]</sup>.但这里我们所要研究的是纳米铜薄膜的抗拉伸强度,应该尽量避免界面对冲击波传播的影响,为此我们采用了阻抗匹配技术,即选择的基体材料镍合金和铜的冲击波阻抗( $Z = \rho_0 C_0$ ,其中  $\rho_0$  和  $C_0$  分别为材料的密度和声速)近似相等( $Z_{\text{Ni alloy}}/Z_{\text{copper}} = 1.07$ ),以保证冲击波在界面处几乎不会产生较强的反射.另外,还需要设计选择好合适的激光脉宽,使得两束稀疏波相遇所产生的拉伸应力在纳米晶体铜薄膜样品中.实验采用 Nd:YAG 固体脉冲激光器,激光波长  $1064\ \text{nm}$ ,激光脉冲的脉宽  $10\ \text{ns}$ ,最大能量  $120\ \text{J}$ ,光斑能量的空间分布为准高斯分布,光斑直径约为  $2\ \text{mm}$ .为了接近 1 维应变加载条件,实验中保证光斑直径达到样品厚度的 4 倍以上.通过改变不同的激光能量输出来获得不同的冲击波载荷强度. VISAR 测量样品自由面粒子速度剖面,采样频率为  $1\ \text{ns}$ .测量中所有信号均由精密数字示波器记录.实验参数与计算结果见表 1.

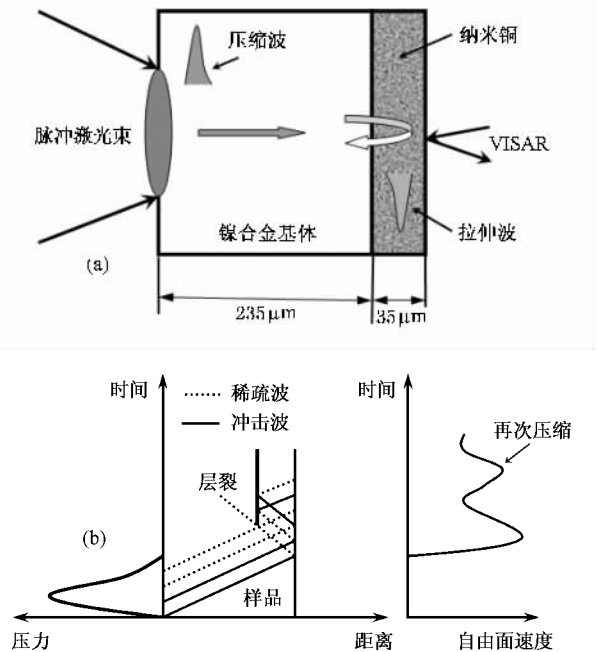


图2 激光与样品的相互作用(a)和样品中波的相互作用(b)

表1 实验参数和计算结果

实验编号	脉宽/ns	激光功率密度/( $\text{GW}/\text{cm}^2$ )	$\Delta u/(\text{m}/\text{s})$	拉伸应变率/ $10^6\ \text{s}^{-1}$	层裂强度/ $\text{GPa}$
403s3	10	305	175	5.8	3.1
403s4	10	282	181	6.2	3.2
403s5	10	268	-	-	-
403s6	10	203	-	-	-
403s7	20	317	-	-	-
403s8	20	361	-	-	-

### 3. 实验结果及讨论

不同的辐照功率密度下,材料将经历不同的损伤演化过程,直到最后发生层裂.图3给出了不同激光功率密度辐照下,测得的纳米晶体铜薄膜样品的自由面速度剖面.比较分析可知,在激光功率密度较低的条件,实测自由面速度剖面是光滑的(403s6),这里速度波形上的“回跳”并不代表层裂信号,后续振荡波形是波在样品前后自由面中来回反射产生的.图4(a)给出的回收样品金相照片(403s6)清楚地显示激光辐照区域的纳米晶体铜薄膜有小变形,但没有发生层裂,局部(方框标识)进行放大后也没有观察到明显的损伤存在(见图4(b)).随着激光功率密度的增加,材料内部产生了损伤,自由面速度剖面表现为速度回跳(图3中403s5,圆圈标识处),其机理是由于损伤的形成导致了材料内部不同位置处波阻抗发生了变化,并对波的相互作用产生了影响.后续的波形振荡从持续时间上判断仍然是冲击波在样品前后自由面来回反射的结果,材料并没有发生完全层裂,处于较低损伤阶段.而当激光功率密度超过 $280 \text{ GW/cm}^2$ 时,纳米晶体铜薄膜发生了完全的层裂破坏,自由面速度剖面见曲线403s4和403s3,图中显示完全层裂发生时,自由面速度剖面上看不到长周期的后续波形振荡现象,仅有微小的波形振荡,究其原因是层裂片非常薄,冲击波在其中来回传播时间非常短.图5(a)给出了回收样品(403s4)的金相照片,从中可以清楚地看到激光辐照区域的纳米晶体铜薄膜变形非常严重,产生了完全层裂片,局部(方框标识)放大后,见图5(b),估测层裂片的厚度约为 $28 \mu\text{m}$ ,离铜镍界面约 $7 \mu\text{m}$ ,这表明了我们所研究和测量的是纳米晶体铜薄膜的层裂特性,而不是铜镍界面的强度.这里,层裂位置距离界面之所以比较接近,可能与我们所选择的激光脉宽有关.在403s7和403s8实验中,我们采用脉宽为 $20 \text{ ns}$ 的激光,从自由面速度剖面上可以判断激光功率密度达到 $361 \text{ GW/cm}^2$ 时,样品都没有发生层裂破坏,初步分析其因为是激光脉宽增加使得拉伸应力区域在镍合金基体内产生,而不是在纳米晶体铜薄膜或界面上.镍合金的层裂强度较大,所以激光功率密度达到 $361 \text{ GW/cm}^2$ 也不能提供足够大的拉伸应力,使得镍合金发生层裂破坏.因此,为了进一步优化实验,使纳米晶体铜薄膜的层裂位置距离界面较

远,在后续实验中需要进一步减小激光的脉宽.

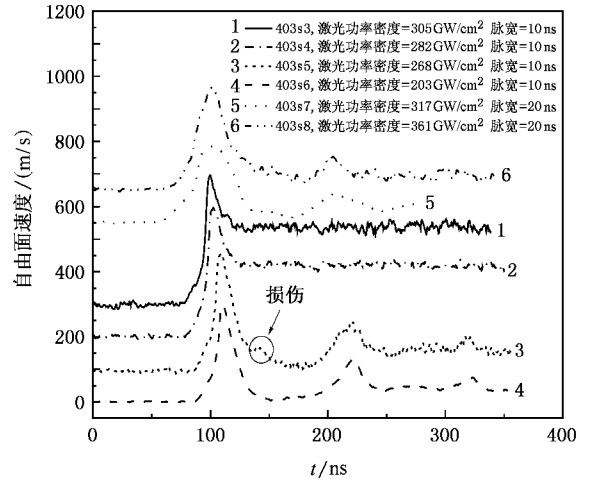


图3 VISAR 实测纳米晶体铜薄膜样品的自由面速度波形

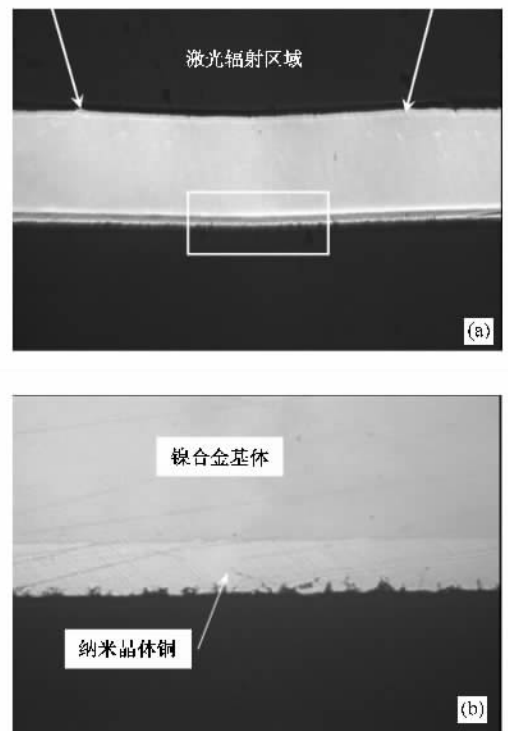


图4 (a)回收样品的金相照片(403s6)(b)回收样品的金相照片的局部放大照片(403s6)

从实测的自由面速度剖面,可以得到激光加载下纳米晶体铜薄膜的动态拉伸强度(层裂强度) $\sigma_s$ ,计算公式采用如下简化形式<sup>[14]</sup>:

$$\sigma_s = \frac{1}{2} \rho_0 C_b \Delta u, \quad (1)$$

式中  $C_b$  为材料体波声速( $3.94 \text{ km/s}$ );  $\Delta u$  为自由面

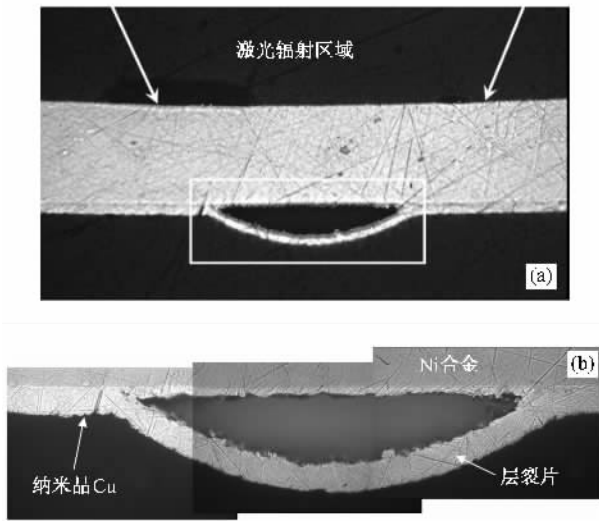


图5 (a)回收样品的金相照片(403s4) (b)回收样品的金相照片的局部放大照片(403s4)

速度最大值与信号第一次反弹时自由面速度值之差. 拉伸应变率是随时间变化的, 我们取一个近似应变率来作为层裂时的拉伸应变率. 采用的应变率计算公式为<sup>[15]</sup>

$$\dot{\epsilon} = \frac{\dot{u}}{2C_b}, \quad (2)$$

式中  $\dot{u}$  分别为卸载段速度变化率. 计算结果见表1, 图6也显示了纳米晶体铜薄膜的动态拉伸强度随拉伸应变率的变化, 同时为了比较分析, 图中也给出了其他人关于多晶铜和单晶铜的动态拉伸强度的实验结果<sup>[16]</sup>. 结果显示: 纳米晶体铜薄膜的层裂强度明显高于多晶铜的层裂强度, 但低于单晶铜的层裂强度.

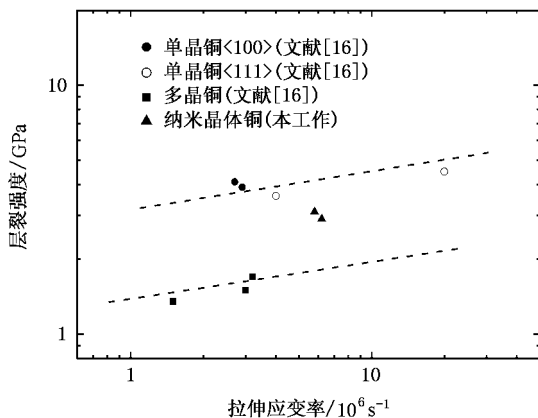


图6 层裂强度随着拉伸应变率的变化

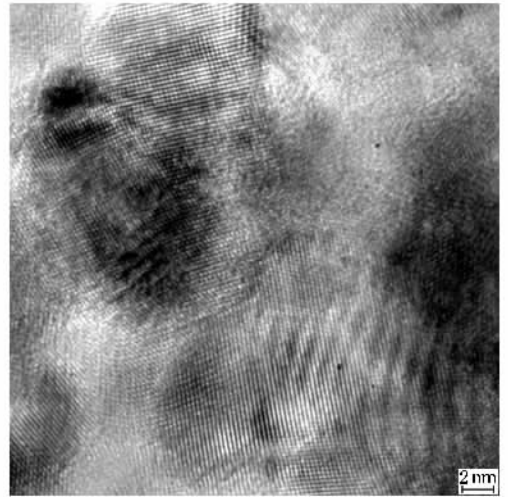


图7 纳米晶体铜的高分辨率透射电镜照片

分数很大, 例如当晶粒小到 5 nm 时, 界面体积百分数可高达 60%, 因此, 晶界对纳米晶体材料的力学性能起着非常重要影响. 图7给出了高分辨率透射电镜下观察到纳米晶体铜薄膜样品中的晶界. 一般认为, 延性金属的层裂破坏的基本物理内涵是在冲击波作用下由于物体中相向而行的稀疏波(卸载波)相互作用, 产生的拉伸应力使材料内部发生了微孔洞成核、长大、聚集及最后导致灾变式断裂的过程<sup>[17]</sup>. 许多研究发现微孔洞成核和长大跟位错运动密切相关<sup>[18, 19]</sup>. 纳米晶体金属中存在的大量晶界是位错运动的有效障碍<sup>[20]</sup>, 这将导致微孔洞在纳米晶体材料较难成核和长大. 因此, 相比多晶铜, 纳米晶体铜薄膜层裂强度的增大可能归功于纳米晶体中的大量晶界. 至于单晶铜层裂强度更高, Kanel 等人<sup>[21]</sup>研究指出其原因是单晶材料中非常少的缺陷集中的影响.

## 4. 结 论

采用强激光辐照加载, 对电解沉积法制备的纳米晶体铜薄膜的层裂特性进行了实验研究. 研究结果表明: (1) VISAR 测得的样品自由面速度波形对材料内部的损伤程度是敏感的; (2) 强激光辐照加载下, 样品中发生层裂的位置与激光脉宽密切相关, 可以通过调节激光脉宽, 使得拉伸应力区域位于纳米晶体铜薄膜内; (3) 利用实测的自由面速度剖面, 计算得到的纳米晶体铜薄膜的层裂强度明显高于多晶铜, 究其原因初步推断是纳米晶体材料中存在的大量晶界有效地阻碍了位错运动.

相比多晶金属, 纳米金属中晶界所占的体积百

本文得到日本科学技术厅 STA Fellowship 的支持,强激光加载与 VISAR 测量实验是在日本物质与材料研究机构物

质研究所完成的,回收样品的透射电镜分析得到了中国工程物理研究院王小英的帮助,在此表示衷心感谢!

- [ 1 ] Gleiter H 1989 *Prog. Mater. Sci.* **33** 223
- [ 2 ] Kumar K S, Swyghoven H V, Suresh S 2003 *Acta Mater.* **51** 5743
- [ 3 ] Schiotz J, Jacobsen K W 2003 *Science* **301** 1357
- [ 4 ] Uchic M D, Dimiduk D M, Florando J N, Nix W D 2004 *Science* **305** 986
- [ 5 ] Lu L, Shen Y F, Chen X H *et al* 2004 *Science* **304** 422
- [ 6 ] Meyers M A, Mishra A, Benson D J 2006 *Prog. Mat. Sci.* **51** 427
- [ 7 ] Champion Y, Langlois C, Guerin-Mailly S 2003 *Science* **300** 310
- [ 8 ] Lu L, Sui M L, Lu K 2000 *Science* **287** 1463
- [ 9 ] Tollier L, Fabbro R, Bartnicki E 1998 *J. Appl. Phys.* **83** 1224
- [ 10 ] Wang Y G, He H L, Wang L L *et al* 2006 *J. Appl. Phys.* **100** 033511
- [ 11 ] Barker L M, Hollenbach R E 1972 *J. Appl. Phys.* **43** 4669
- [ 12 ] Lev L C, Argon A S 1996 *J. Appl. Phys.* **80** 529
- [ 13 ] Zhou M, Zeng D Y, Kan J P 2003 *J. Appl. Phys.* **94** 2968
- [ 14 ] Kanel G I, Fortov V E 1987 *Adv. Mech.* **10** 3
- [ 15 ] Eliezer S, Gilath I, Bar-Noy T 1990 *J. Appl. Phys.* **67** 715
- [ 16 ] Kanel G I, Razorenov S V, Utkin A V 1993 *Dynamic fracture and fragmentation*, High-Pressure Shock Compression of Solids II edited by L. Davison, D. E. Grady and M. Shahinpoor (Springer, New York), Chap. 1.
- [ 17 ] Antoun T, Seaman L, Curran D R *et al* 2003 *Spall Fracture* (New York: Springer-Verlag)
- [ 18 ] Lubarda V A, Schneider M S, Kalantar D H 2004 *Acta Mater.* **52** 1397
- [ 19 ] Gungor M R, Maroudas D 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 113527
- [ 20 ] Bringa E M, Caro A, Wang Y W 2005 *Science* **309** 1838
- [ 21 ] Kanel G I, Rasorenov S V, Fortov V E 1992 *Shock-Wave and High-Strain-Rate Phenomena in Materials* edited by M. A. Meyers, L. E. Murr, K. P. Staudhammer (Marcel Dekker, New York) p775

## Experimental studies of spallation in nanocrystalline copper film by laser irradiation \*

Wang Yong-Gang<sup>1,2)</sup> He Hong-Liang<sup>1)</sup> Boustie Michel<sup>3)</sup> Sekine Toshimori<sup>4)</sup>

1) *Laboratory for Shock Wave and Detonation Physics Research, Institute of Fluid Physics, Mianyang 621900, China*

2) *Mechanics and Materials Science Research Center, Ningbo University, Ningbo 315211, China*

3) *Laboratoire de Combustion et de Détonique, 1 Av. Clément Ader, Chassoneuil Cedex 86961, France*

4) *Advanced Materials Laboratory, National Institute of Materials Science, Tsukuba 30520044, Japan*

(Received 13 April 2007; revised manuscript received 23 May 2007)

### Abstract

The spall behavior of nanocrystalline copper film synthesized by electrodeposition technique is investigated by laser irradiation. The push-pull type VISAR with sub-nanosecond time resolution is used to measure the rear free surface velocity profile of the sample. The spall strength in nanocrystalline copper film is calculated from the measured free surface velocity profile as a function of tensile strain rate. Results show that the dynamic tensile strength of nanocrystalline copper film is about 3 GPa, which is much higher than that of polycrystalline bulk copper, but lower than that of single crystal copper. This difference may be attributed to the effective obstacles to dislocation motion by the presence or more grain boundaries in nanocrystalline copper.

**Keywords:** nanocrystalline copper film, spallation, laser irradiation

**PACC:** 6250, 6220D, 6220F, 6220M