

单晶 Cu(001) 薄膜塑性变形的分子动力学模拟^{*}

何安民[†] 邵建立 王 裴 秦承森

(北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100094)

(2009 年 12 月 15 日收到; 2010 年 5 月 21 日收到修改稿)

使用分子动力学方法, 模拟研究了单晶 Cu(001) 薄膜在双向等轴拉伸应变下的塑性变形行为. 当应变超过一定值时, 样品通过产生位错、层错及孪晶而发生塑性变形. 当应变相对较低时, 不全位错首先在薄膜表面形核并在密排面上滑移, 留下堆积层错; 当应变增加时, 位错在表面与内部同时成核生长, 层错数量也随之增加. 分析了相邻滑移面上的位错之间相互作用形成孪晶的微观过程. 材料内部形成大量堆积层错及孪晶后, 较大孪晶的密排面上的原子也会发生滑移, 形成孪晶内部的层错结构以释放残余应力.

关键词: 分子动力学, Shockley 不全位错, 孪晶

PACC: 7115Q, 6170P, 6170N

1. 引 言

纳米晶体材料具有与粗晶材料不同的力学性质, 包括极佳的超塑性^[1]、高强度^[2, 3]以及高韧性^[4, 5]等, 人们对其进行了大量的实验和理论研究. 纳米材料具有这些特殊的力学性质是因为其变形机制与体材料相比有很大不同^[6-9]. 纳米晶体材料的力学性质与晶体中位错的产生、运动及相互作用密切相关. 因此, 要准确预言它们的力学行为, 有必要从原子尺度去理解材料变形动力学的微观机制. 由于时空尺度的限制, 实验上很难对这些变形机制进行观测, 特别是高应变率下的变形行为. 随着计算机水平的飞速发展, 分子动力学(MD)及其他的原子模拟方法被用来研究纳米材料的变形行为. 使用这些方法, 可以在原子尺度上直接追踪材料的动力学响应行为, 因此可以找出纳米晶体微观结构与力学性质之间的内禀本质, 有助于人们深入对纳米材料的微观结构和性能之间关系的理解^[10, 11].

使用 MD 模拟方法, 人们已经对多种纳米结构在不同加载条件下的变形机制进行了大量的研究^[12-19]. Kolluri 等^[20]在较大的应变范围内研究了双轴应变下单晶 Cu(111) 薄膜的塑性变形行为, 确定了五个不同的力学响应区域. 此外, 他们还模拟了极高应变率下, 表面法向为 $[110]$ 晶向的单晶 Cu

薄膜的马氏体相变行为^[21], 发现相变过程中马氏体相首先在薄膜表面成核, 之后通过堆积层错的传播向薄膜内部生长.

本文使用 MD 方法, 模拟了双向等轴应变下单晶 Cu(001) 薄膜的塑性变形行为, 对不同应变下薄膜变形的机制及稳态结构进行了分析. 研究发现, 当应变超过一定值时, 材料通过产生位错、层错及孪晶而发生塑性变形. 分析了相邻滑移面上的不全位错之间相互作用形成孪晶的过程, 发现当材料内形成大量堆积层错及孪晶后, 仍承受一定的残余应力, 为释放应力, 较大孪晶的密排面上的原子发生滑移, 形成孪晶内部的层错结构. 与 Kolluri 等所研究的表面法向为 $[111]$ 晶向的 Cu 薄膜的塑性变形行为相比, 对于 Cu(001) 薄膜, 在本文所采用的应变方式下材料内的微缺陷主要为不全位错、堆积层错以及孪晶结构, 未观测到 Cu(111) 薄膜中出现的新不全位错在层错内部的形核与生长, 以及随之出现的完整螺型位错、空位、Frank 不全位错、层错四面体等微结构.

2. 模型与分析参数

2.1. 势 函 数

本文采用文献[22]给出的嵌入原子(EAM)势.

^{*} 中国工程物理研究院科学技术发展基金(批准号:2009A0101007, 2008B0101008)资助的课题.

[†] E-mail: he_anmin@iapcm.ac.cn

EAM 势是基于有效介质理论的半经验多体势函数,

$$E = \sum_{j>i} \Phi(q_{ij}) + \sum_i F_i(\rho_i), \quad (1)$$

其中 q_{ij} 是原子 i 与 j 之间的距离. (1) 式等号右端第一项是原子 i 与 j 之间的短程势能, 采用传统的对势形式; $F_i(\rho)$ 为嵌入能, $\rho_i^T = \sum_{i \neq j} \rho_j(q_{ij})$ 是某处没有原子 i 时的电子密度.

2.2. 模拟方法

初始原子构型设为 $70a_0 \times 70a_0 \times 10a_0$ (a_0 为 Cu 在 10 K 时的晶格常数). x, y, z 坐标轴分别对应 $[100], [010]$ 和 $[001]$ 晶向, 沿 x 方向和 y 方向施加周期性边界条件, 沿 z 方向施加自由边界条件, 样品相当于无穷大的薄膜结构, 时间步长为 2 fs. 为降低热涨落的影响, 模拟过程中采用速度标度法^[23] 将系统温度控制为 10 K. 首先将样品弛豫 5 ps, 之后沿 x 方向和 y 方向施加双向等轴拉伸应变, 应变率为 10^{10} s^{-1} . 达到所需应变后, 在等温-等应变条件下样品演化约 50 ps, 达到稳定状态, 此时系统能量及样品内微结构不再发生明显变化. 对不同应变下单晶 Cu 薄膜塑性变形的具体过程以及达到稳定状态后的构型进行了分析. 此外, 我们检查了样品初始尺寸对模拟结果的影响, 当样品沿 x 方向和 y 方向的尺寸各增加一倍时, 模拟结果未发现有明显的变化.

2.3. 中心对称参数

在对数值结果进行分析时, 采用中心对称参数^[24] 对样品中的原子进行标度. 对每一原子, 其中心对称参数 P 的定义如下:

$$P = \sum_{i=1,6} |R_i + R_{i+6}|^2, \quad (2)$$

其中 R_i 和 R_{i+6} 是面心立方 (fcc) 结构中原子和与它最近邻原子所组成的相等和相反的 6 个键. 显然, 处于完整的 fcc 结构或者仅发生弹性变形原子的 $P = 0$; 而对于不同类型缺陷 (表面、位错、堆积层错等) 的 $P \neq 0$, 根据 P 值的大小可以将不同类型的缺陷加以区分. 此外, 根据不同滑移面上层错结构的组合, 还可以将内禀层错、外禀层错及孪晶界加以区分. 两层相邻的层错面结构为内禀层错, 两层堆积层错中间夹着一层 fcc 结构是外禀层错, 单独的一层堆积层错则是孪生晶界.

3. 模拟结果与分析

我们模拟了 7 个不同应变 (2%, 4%, 6%, 7%, 8%, 10%, 12%) 下, Cu (001) 薄膜的塑性变形过程. 在所采用的应变率下, 当应变低于 7% 时, 样品在模拟的 60 ps 时间内只发生弹性变形; 应变为 7% 及更高时, 样品发生塑性变形, 通过产生位错环、层错及孪晶释放应力.

图 1 给出了应变为 7% 和 8% 时, 位错形核、生长并形成层错的过程, 为显示清晰, 图中对模拟样品进行了放大处理. 从图 1 (a) 可以看出, 应变为 7% 时, 位错首先在自由表面形核, 并在 $\{111\}$ 密排面上沿 $\langle 112 \rangle$ 晶向往样品内部滑移, 位错经过的区域为堆积层错. 位错运动到自由面后产生与其 Burgers 矢量相符的台阶, 台阶处具有较高的应力集中, 又成为新位错的形核点. 位错就以这种方式在不同的 $\{111\}$ 面上交互滑移, 留下大量的堆积层错.

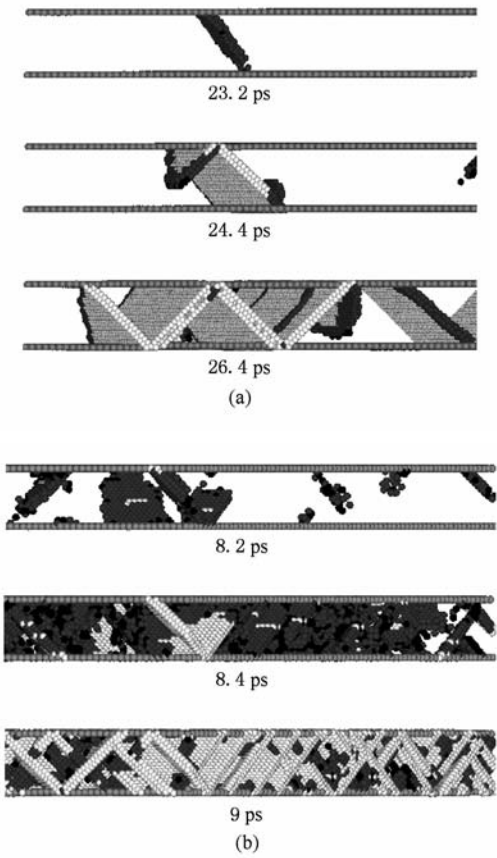


图 1 不同应变下, 位错形核、发展形成层错的过程 浅灰色表示表面原子, 深灰色及黑色表示位错核附近的原子, 白色表示堆积层错, 为了清晰起见, 未给出完整的 fcc 结构. (a) 应变为 7%, (b) 应变为 8%

当应变更高(8%)时,位错形核点的分布相对均匀,且在样品表面与内部同时形核并长大,形成大量的堆积层错结构,如图1(b)所示。

Kolluri 等^[20]在对 Cu(111)薄膜的模拟结果中也发现了类似现象,即较低应变水平时,不全位错在样品表面形核并长大;应变较高时,不全位错在表面与内部同时形核并长大,位错内部为堆积层错。文献[20]指出:在不全位错所包围的层错区域内部,会形成新的不全位错环,该不全位错环扩展并与外部的初始不全位错发生反应,最终生成两段 Burgers 矢量 $\mathbf{b} = \frac{a}{2} [110]$ 方向的完整螺型位错;由于该螺型位错的滑移,造成薄膜内部出现许多空位;在较高应变下,空位数量足够多,会塌缩形成 Frank 不全位错。对于本文所研究的 Cu(001)薄膜,

在我们采用的应变方式下,较大的应变范围内未观测到新不全位错在层错内部形核与生长,因而材料内的微缺陷主要为不全位错、堆积层错以及相邻滑移面上的不全位错之间相互作用形成的孪晶结构。

3.1. 表面形态

图2给出了不同应变下样品达到相对稳定状态时的原子构型。从图2可以看出:随着应变增加,位错及层错数量也随之增加。当运动的位错贯穿样品上下自由表面后,位错所在滑移面两侧样品会发生相对位移,表面也随之起伏。应变为7%时,由于位错数量较少,表面形变不均匀;当应变增加时,位错数量增加且均匀分布,使得表面相对均匀地发生变形。

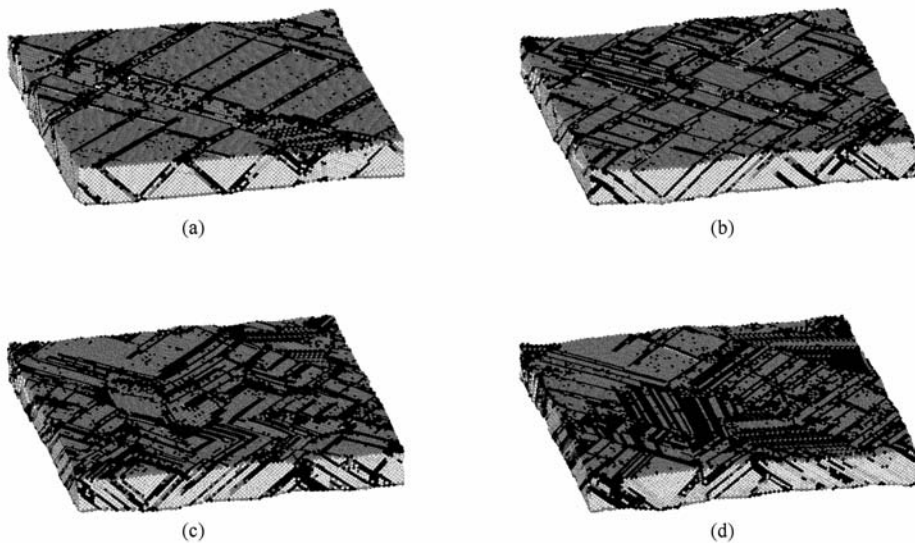


图2 不同应变下,达到稳定状态时样品的构型 灰色表示表面原子,黑色表示堆积层错,白色表示完整的 fcc 结构。(a)应变为7%,(b)应变为8%,(c)应变为10%,(d)应变为12%

当应变为7%和8%时,稳定状态的样品表面形态如图3所示。图3中不同的灰度表示表面原子的不同高度。从图3(a)可以看出,在7%应变下,表面大致可分为一高(深色)、一低(浅色)两个区域,且两部分有较大落差,说明表面粗糙度较高。当应变较高时,位错数量增加且分布均匀,使得表面变形也相对均匀,因而相对光滑,如图3(b)所示。

3.2. 微观结构

对塑性变形过程中微结构的种类及成因进行了分析。图4给出了不同应变下稳态时薄膜中部(001)面上一层原子的构型,浅色表示完整晶格结

构,深色表示堆积层错。仔细观察可以发现,样品内部微结构主要包括内禀层错、外禀层错及孪晶几种类型。这些微结构的形成是不同滑移面上的 Shockley 不全位错之间相互作用的结果。

图5给出了应变为7%时相邻滑移面上的 Shockley 不全位错之间相互作用形成孪晶的过程。图5(a)从左至右依次排列着三组堆积层错,且均为内禀层错。在紧邻中间层错的滑移面上,一个新的 Shockley 不全位错(灰色原子)形核,该不全位错滑移使得内禀层错变为外禀层错结构,见图5(b)的中间区域。在与此外禀层错相邻的滑移面上,又一个新的 Shockley 不全位错形核并生长,其滑移过后外

稟层错变为两原子层的孪晶结构,如图 5(c) 的中间区域所示. 倘若有新的不全位错在靠近孪生晶界的滑移面上形核,则孪晶结构会随着不全位错的连续滑移而不断生长.

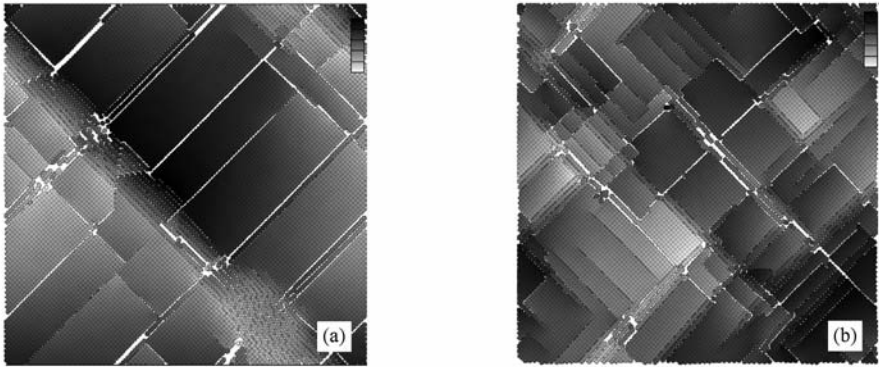


图 3 稳定状态时样品的表面形态 不同的灰度表示不同的原子高度,深色区域最高,浅色区域则相对较低.
(a)应变为 7%,(b)应变为 8%

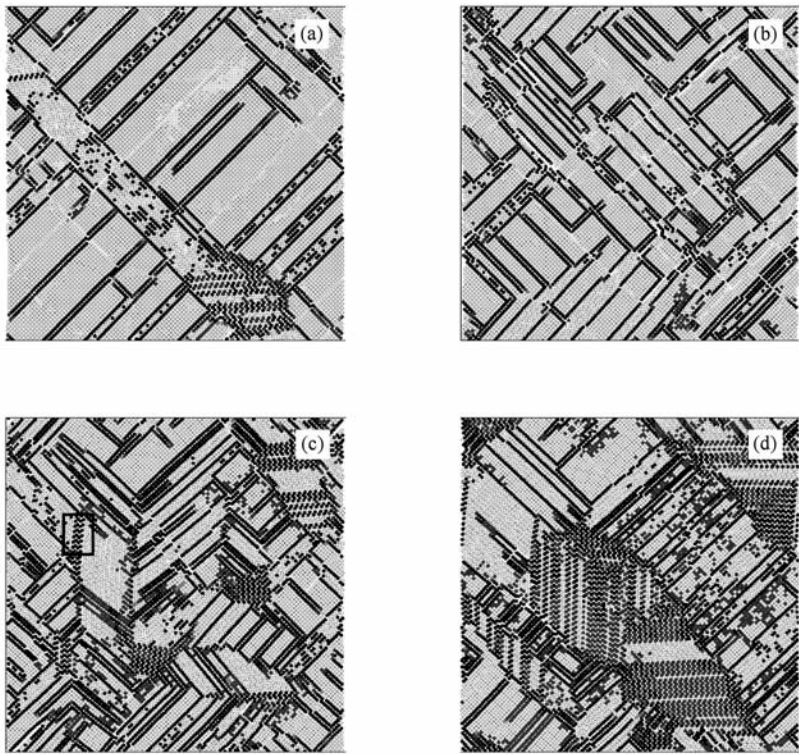


图 4 不同应变下,稳态时薄膜中部(001)面一层原子构型 横向为 $[100]$ 晶向,纵向为 $[010]$ 晶向. 浅色表示完整的 fcc 结构,深色表示堆积层错. (a)应变为 7%,(b)应变为 8%,(c)应变为 10%,(d)应变为 12%

层错所在的 $\{111\}$ 面与样品(001)面的交线为 $\langle 110 \rangle$ 方向,即图 4 中各(001)面的对角线方向. 从图 4 可以看出,许多层错沿着对角线方向分布,这与以上的分析一致. 但除了对角线方向外,在横向的 $[010]$ 方向与纵向的 $[100]$ 方向也出现了层错结构,这些结构在较高应变的情况下(图 4(c),(d))尤为

明显. 此外,仔细观察分析可以看出,这些层错所在的原子面为(010)及(100)面,且层错结构均出现在较大孪晶内部,并终止于孪生晶界处. 图 4(c)中层错所在的(100)面上的部分原子构型如图 6 所示. 从图 6 可以看出,中间及右侧层错区域内的原子(深色)已由初始的 fcc 结构变为六角密排结构,且

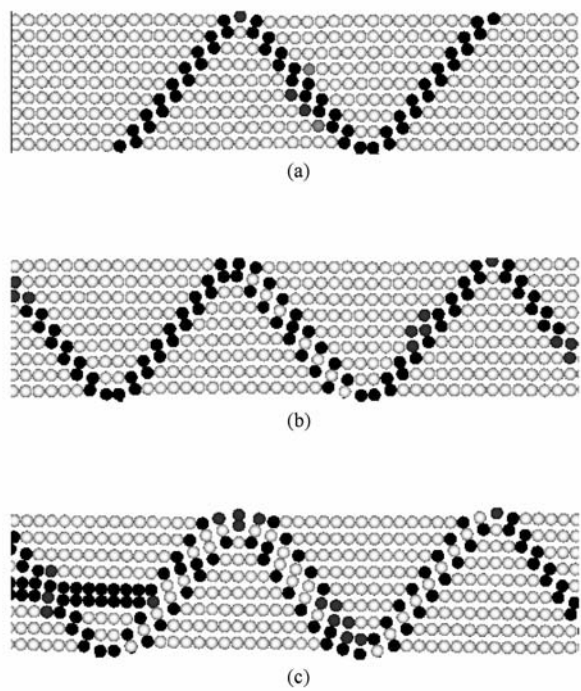


图5 7%应变时,(110)面即切变面(包含孪生方向且垂直孪生面的原子面)上孪晶的形成过程 白色表示 fcc 结构,黑色表示层错,灰色表示位错核附近原子.(a)三组堆积层错均为内禀层错,(b)新的不全位错滑移后使内禀层错变为外禀层错,(c)外禀层错变为两原子层的孪晶结构

这些层错原子位于孪晶内部. 这说明相邻密排面上 Shockley 不全位错连续滑移所形成的孪晶某个 {111} 密排面恰好是基体材料的(100)面. 当材料内部形成大量的堆积层错及孪晶后,仍然承受一定残余应力,为释放这些应力,新生成孪晶的密排面上的原子也发生滑移,形成层错. 由于只有大于一定临界尺寸的位错核才可以长大^[25],因此只在一些较大孪晶内部才出现层错结构. 此外,孪生晶界会阻碍位错的运动,因而该层错结构会终止于孪生晶界处.

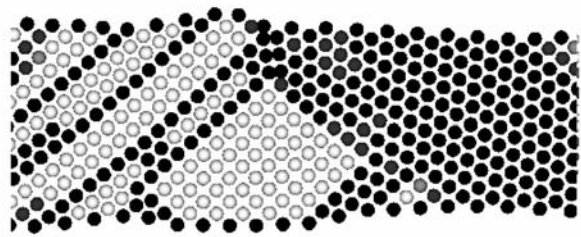


图6 应变为10%时,(100)面上部分原子的构型 白色原子处于完整的 fcc 结构,深色表示位错核附近及层错原子

根据材料科学的基础知识可知,基体中的一个

晶面 $S_M = (U_M, V_M, W_M)$, 在孪生后变成孪晶中的晶面 $S_T = (U_T, V_T, W_T)$, 两者之间具有下列变换关系:

$$S_T = DS_M, \tag{3}$$

其中变换矩阵 D 取决于孪生面法线以及孪生方向与基体晶轴夹角的方向余弦. 在此,基体晶轴为 $[100]_M$, $[010]_M$ 和 $[001]_M$, 若取孪生系统为 $(111)[\bar{1}\bar{1}2]$, 经简单计算可得变换矩阵

$$D = \begin{pmatrix} -1/2 & 1/2 & -1 \\ 1/2 & -1/2 & -1 \\ -1/2 & -1/2 & 0 \end{pmatrix}.$$

若取基体中的一个晶面为 $S_M = (100)$, 将 S_M 与变换矩阵 D 代入(3)式,计算可得孪生后 S_M 变成孪晶中的 $S_T = (\bar{1}\bar{1}\bar{1})$, 即密排面. 同样可知基体中的(010)面在孪生后也成为孪晶中的密排面 $(1\bar{1}\bar{1})$. 这一理论分析验证了我们的模拟结果.

3.3. 统计结果

对不同应变下塑性变形过程中样品内原子结构随时间的演化进行了简单的统计. 图7给出了8%应变下样品中 fcc、层错结构的原子分数以及剪切应力随时间的变化. 从图7可以看出,在很短时间内,处于 fcc 结构的原子数目急剧减少,层错原子数相应突增,同时剪切应力降低,说明样品内部大量的不全位错形核并发展,释放应力. 之后,层错结构的原子数缓慢减少,fcc 结构的原子数则增加,最终均趋于稳定值. 层错原子数的减少是由于新生成的位错在邻近原有层错的滑移面上滑移,使得原有层错结构变为孪晶,孪晶内部原子恢复为 fcc 结构. 图8给出了不同应变下样品塑性变形完成后达到稳态的 fcc 原子及层错原子分数. 从图8可以看出,在我

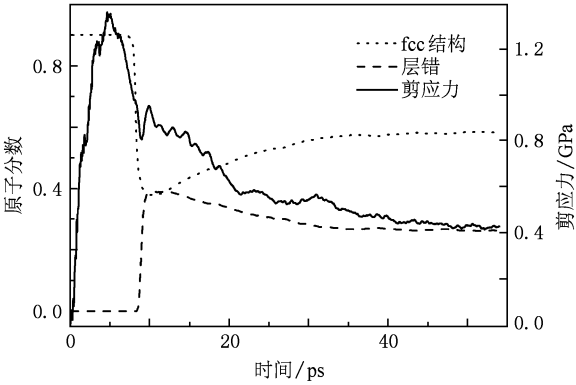


图7 应变为8%时,样品中 fcc 结构与层错的原子分数以及剪应力随时间的变化

们模拟的应变范围内,随着应变的增加,样品内层错原子数也相应增多.

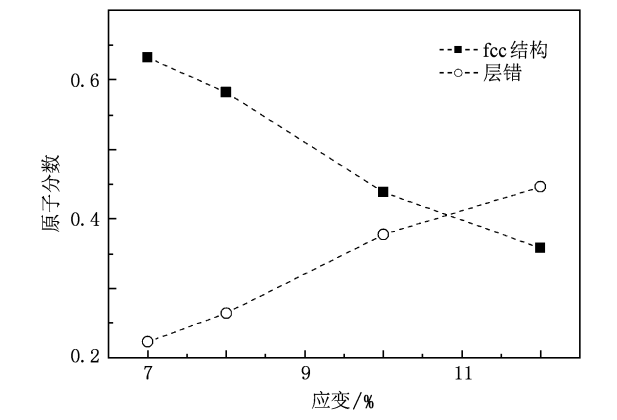


图 8 不同应变下,样品达到稳定状态后的 fcc 结构与层错结构的原子分数

4. 结 论

使用 MD 方法,采用双向等轴拉伸的应变方式,应变率为 10^{10} s^{-1} ,对单晶 Cu(001) 薄膜在不同应变

下的塑性变形行为进行了模拟研究. 研究表明:当应变低于 7% 时,样品只发生弹性变形;当应变高于 7% 时,材料通过产生位错、层错及孪晶而发生塑性变形,释放应力. 当应变为 7% 时,Shockley 不全位错首先在自由表面形核,之后在密排面上沿 $\langle 112 \rangle$ 晶向滑移,留下堆积层错;当应变高于 7% 时,位错形核点分布相对均匀,且在样品表面与内部同时成核并长大,随着应变增加,层错数量也随之增加.

当位错运动到自由表面时,会在表面形成台阶. 当应变较低时,由于位错数量较少,表面形变不均匀,具有较高粗糙度;当应变增加时,位错数量也随之增加且均匀分布,使得表面较均匀地变形,因此相对光滑. 对相邻滑移面上的 Shockley 不全位错之间相互作用形成孪晶的过程进行了分析. 为释放残余应力,一些较大孪晶的密排面上的原子也会发生滑移,形成层错结构,由于孪生晶界对位错运动的阻碍作用,该层错会终止于孪生晶界处.

本文工作有助于我们更加全面地理解纳米薄膜材料在极高应变率下的塑性变形行为. 由于模拟中采用的应变率为固定值,应变率的变化对模拟结果的影响还需做更深入的研究.

[1] McFadden S X, Mishra R S, Valiev R Z, Zhilyaev A P, Mukherjee A K 1999 *Nature* **398** 684

[2] Wang Y M, Ma E 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 2750

[3] Lu L, Chen X, Huang X, Lu K 2009 *Science* **323** 607

[4] Zhang X, Wang H, Scattergood R O, Narayan J, Koch C C, Sergueeva A V, Mukherjee A K 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 823

[5] Wang Y M, Chen M W, Zhou F H, Ma E 2002 *Nature* **419** 912

[6] Schiøtz J, Ditolla F D, Jacobsen K W 1998 *Nature* **391** 561

[7] Kumar K S, Suresh S, Chisholm M F, Horton J A, Wang P 2003 *Acta Mater.* **51** 387

[8] Swygenhoven H V 2002 *Science* **296** 66

[9] Chen M W, Ma E, Hemker K J, Sheng H W, Wang Y M, Cheng X M 2003 *Science* **300** 1275

[10] Abraham F F 2003 *Adv. Phys.* **52** 727

[11] Bulatov V, Abraham F F, Kubin L, Devincere B, Yip S 1998 *Nature* **391** 669

[12] Gungor M R, Maroudas D 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 171913

[13] He A M, Shao J L, Qin C S, Wang P 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 5667 (in Chinese) [何安民、邵建立、秦承森、王 裴 2009 物理学报 **58** 5667]

[14] Kolluri K, Gungor M R, Maroudas D 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 101911

[15] Liu X M, You X C, Liu Z L, Nie J F, Zhuang Z 2009 *J. Phys.* **D 42** 035407

[16] Liu X M, You X C, Liu Z L, Nie J F, Zhuang Z 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1849 (in Chinese) [刘小明、由小川、柳占立、聂君峰、庄 茁 2009 物理学报 **58** 1849]

[17] Xu Z H, Yuan L, Shan D B, Guo B 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4835 (in Chinese) [徐振海、袁 琳、单德彬、郭 斌 2009 物理学报 **58** 4835]

[18] Liu Y L, Zhao X, Zhang Z N, Zhang L, Wang S Q, Ye H Q 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** S246 (in Chinese) [刘永利、赵 星、张宗宁、张 林、王绍青、叶恒强 2009 物理学报 **58** S246]

[19] Chen K G, Zhu W J, Ma W, Deng X L, He H L, Jing F Q 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 1225 (in Chinese) [陈开果、祝文军、马 文、邓小良、贺红亮、经福谦 2010 物理学报 **59** 1225]

[20] Kolluri K, Gungor M R, Maroudas D 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 123517

[21] Kolluri K, Gungor M R, Maroudas D 2008 *Phys. Rev. B* **78** 195408

[22] Mei J, Davenport J W, Fernando G W 1991 *Phys. Rev. B* **43** 4653

[23] Hoffmann K H 1996 *Computational Physics* (Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag) p268

[24] Kelchner C L, Plimpton S J, Hamilton J C 1998 *Phys. Rev. B* **58** 11085

[25] Tanguy D, Mareschal M, Lomdahl P S, Germann T C, Holian B, Ravelo R 2003 *Phys. Rev. B* **68** 144111

Plastic deformation of single-crystalline copper films with surface orientation $[001]$: molecular dynamics simulations^{*}

He An-Min[†] Shao Jian-Li Wang Pei Qin Cheng-Sen

(*Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100094, China*)

(Received 15 December 2009; revised manuscript received 21 May 2010)

Abstract

Molecular dynamics simulations are performed to study the plastic deformation behavior of single-crystalline copper film subjected to biaxial tensile strain. The ultrathin film is oriented normal to the $[001]$ crystallographic direction. Beyond a critical value, the film deforms plastically through nucleation, motion and interaction of dislocations. The progress of twinning formed by the motion of Shockley partial dislocations in successive atomic planes is analyzed. Additional stacking faults bounded by twin boundaries are formed in some large newborn twins to release residual strain.

Keywords: molecular dynamics, Shockley partial dislocation, twinning

PACC: 7115Q, 6170P, 6170N

^{*} Project supported by the Science and Technology Development Foundation of China Academy of Engineering Physics (Grant Nos. 2009A0101007, 2008B0101008).

[†] E-mail: he_anmin@iapcm.ac.cn