

纳米接触过程中黏着规律的变化*

段芳莉[†] 王光建 仇和兵

(重庆大学机械传动国家重点实验室, 重庆 400030)

(2011 年 4 月 28 日收到; 2011 年 6 月 23 日收到修改稿)

本文应用大规模分子动力学方法, 模拟了两种具有不同粗糙形貌的、刚性球形探头与弹性平面基体之间的纳米尺度接触, 计算了探头与基体之间的拉离力和黏着力, 研究了接触过程中界面黏着力随载荷的变化规律, 分析了接触界面原子的法向应力分布. 研究发现, 原子级光滑接触的黏着力随着载荷的增大而线性增大, 而原子级粗糙接触的黏着力-载荷曲线分为以不同斜率增长的两个阶段. 相比于原子级光滑探头, 原子级粗糙探头与基体之间具有较小的拉离力和黏着力, 却在接触过程中形成了较大的黏着力. 因此, 拉离力和黏着力不能表征出纳米接触过程中原子吸引作用对界面法向力的贡献大小.

关键词: 纳米接触, 黏着力, 拉离力, 原子级粗糙形貌

PACS: 68.35.Np, 46.55.+d

1 引言

由于微/纳器件的日益微型化, 导致比表面积的增大, 表面间吸引作用已成为决定微/纳器件性能和寿命的重要因素. 若仅限于考虑范德华力导致的吸引作用, 已经发展出宏观物体之间范德华能量和力随距离变化的计算公式^[1]. 其中, 球体与平面之间的范德华能量和力计算公式分别为 $W(D) = -\frac{AR}{6D}$ 和 $F(D) = -\frac{AR}{6D^2}$, 这里 A 为 Hamaker 常数, R 为球体半径, D 为两者之间的距离. 基于这些针对光滑表面的能量和力表达式, 人们研究了粗糙表面之间的范德华吸引作用. 例如, Delrio 等^[2] 采用了试验和理论计算相结合的方法对真实形貌粗糙表面进行了研究.

拉离力和黏着力常用于表征接触表面的黏着特性^[3,4]. 对于仅由范德华作用导致表面黏着的情形, 拉离力和黏着力即是上述范德华计算公式在某个距离 D_0 下的函数值, D_0 是刚好发生接触时两个表面之间的距离^[5]. 范德华计算公式只适用于接触体没有发生变形的情形, 也就是表面间距离大于 D_0

的情形. 当表面之间的距离小于 D_0 时, 例如在施加一系列正载荷的接触过程中, 这时接触体将发生变形, 范德华计算公式将不再适于描述其表面吸引力的变化规律.

关于球体与平面之间的弹性黏着接触行为研究, 已经有 JKR, DMT, Maugis-Dugdale (M-D)^[6-8] 等基于连续力学的接触模型, 它们都是通过黏着力来描述表面吸引作用的影响. 其中, JKR 推导出了显式的接触半径与载荷的计算公式. 在代数形式上, 这个计算公式是在 Hertz 模型的基础上, 添加了一个黏着修正项, 即 $3\pi WR + \sqrt{6\pi WRP + (3\pi WR)^2}$, 这里 P 是载荷, W 为黏着力, R 为球体半径. 但是, 没有研究讨论过它们与接触界面黏着力的关系. 实际上, 在这些连续力学接触模型的研究中, 并没有关心接触过程中黏着力随载荷的变化规律. 另外, 在分子动力学模拟研究方面, 尽管已经有了大量的关于纳米接触行为与摩擦机理的文献^[9-12], 但尚未看到针对接触过程中黏着特性的研究. 这里的一个技术难点是, 需要将原子势函数表示为相互独立的两项: 排斥力项和吸引力项^[12,13].

本文应用大规模分子动力学方法, 模拟了刚性

* 国家自然科学基金 (批准号: 50875271), 重庆市自然科学基金 (批准号: CSTC 2009BB4200) 和中央高校基本科研业务费 (批准号: CDJZR11 28 00 01) 资助的课题.

[†] E-mail: flduan@cqu.edu.cn

球形探头与弹性平面基体之间的纳米尺度接触,研究了接触过程中界面黏着力随载荷的变化规律;通过比较两种不同粗糙形貌探头与基体的接触行为,揭示了原子级粗糙形貌对黏着力变化规律的影响. 研究表明,通常用于表征黏着特性的拉离力和黏着功,不能表征出纳米接触过程中原子吸引作用对界面法向力的贡献.

2 模拟方法

为了模拟出探头与基体表面之间不同程度的黏着作用,我们采用了截断 Lennard-Jones(L-J)势函数

$$E = 4\epsilon_i \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right], \quad r < r_{\text{cut}}, \quad (1)$$

将描述基体原子之间作用的 L-J 势能量参数,长度参数和截断半径,分别取为 1.0ϵ , 1.0σ , 1.5σ . 对于探头原子与基体原子之间的作用,其长度参数和截断半径与基体原子势函数的设置相同,但是将通过调整能量参数的取值 (ϵ_i/ϵ 分别取为 0.2, 0.5, 1.0), 来模拟表面间不同程度的黏着作用.

基体表面由面心立方晶体的 (001) 面构成,晶体原子的最近邻间距为 $2^{1/6}\sigma$. 基体尺寸为 $79.4\sigma \times 79.4\sigma \times 47.6\sigma$, 共 305000 个原子. 为了消除系统边界对模拟结果的影响,在基体的接触表面采用自由边界条件,而在基体四周表面上采用周期性边界条件. 我们模拟了具有相同名义半径(半径为 23.8σ , 约 7.1 nm) 的两种探头: 原子级光滑探头和原子级粗糙探头,它们的原子构型示于图 1. 原子级光滑探头是将一块面心立方晶体弯曲成球形得到; 原子级粗糙探头则是从非晶态体块中切割出球形得到.

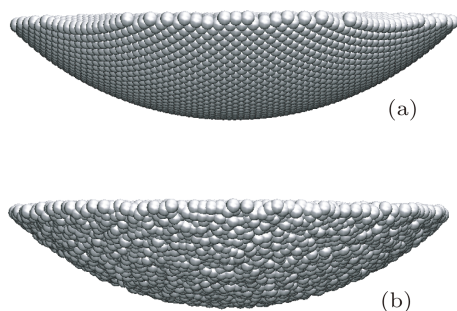


图1 探头的原子构型 (a) 原子级光滑探头; (b) 原子级粗糙探头

在模拟中,首先让探头与基体的距离大于 r_{cut} .

然后,给探头施加一个很小的载荷,并保持探头在水平方向的位置不变. 逐次增加施加在探头上的载荷,使系统在每个载荷下充分弛豫,在达到平衡态之后,提取出各个载荷下的压入深度、接触面积和表面作用力,从而模拟得到探头与基体之间的接触过程. 采用了 Langevin 方法进行控温,使控温层温度保持在 $0.0001\epsilon/k_B$ 附近,其中 k_B 是波尔兹曼常数. 模拟使用的是由美国 Sandia 国家实验室开发的大规模分子动力学开源代码软件 LAMMPS^[14,15].

3 结果与讨论

3.1 拉离力与黏着功

黏着表面间的拉离力可直接通过载荷-位移曲线获得,也可通过载荷-接触面积曲线经拟合参数得到. 由于这两种方法得到的拉离力有一定的差异^[16],我们将给出两种方法计算的拉离力. 首先,通过接触面积随载荷的变化曲线获得模拟算例的拉离力和黏着功. 因为 M-D 黏着接触模型能够描述 JKR 模型和 DMT 模型之间的转变状态,我们将应用 M-D 模型对模拟数据进行分析. 黏着参数的获取分为两步. 第一步是应用 M-D 模型的理论公式,对载荷-接触面积曲线进行拟合,得到拉离力. 由于 M-D 模型缺乏接触面积与载荷之间的显式表达式,我们应用了由 Carpick, Ogletree 和 Salmeron(COS) 发展的插值公式^[17,18]. 第二步是根据拉离力与黏着功的关系计算黏着功. 在 M-D 模型中,拉离力 P_c 和黏着功 W 的关系为 $W = \frac{P_c}{\chi\pi R}$, 其中 χ 表示从 JKR 模型到 DMT 模型的转变因子, R 为探头半径. 图 2 分别是在 ϵ_i/ϵ 为 1 时两种探头与基体之间的真实接触面积随载荷的变化. 图中实线是对模拟数据的 COS 拟合,拟合得到光滑接触和粗糙接触的拉离力分别为 $65.5\epsilon/\sigma$ 和 $39.5\epsilon/\sigma$, Maugis 转变参数分别为 0.06 和 0.03. 进而,计算得到两种接触的 χ 转变因子分别为 1.98 和 1.96,光滑接触和粗糙接触的黏着功分别为 $0.45\epsilon/\sigma^2$ 和 $0.27\epsilon/\sigma^2$. 可以看到,粗糙接触的拉离力和黏着功都为光滑接触的 60%.

在第二种方法中,拉离力即是载荷-位移曲线中的最大负载荷,而总黏着功是载荷-位移曲线从载荷为零处到无穷远的积分. 这里的总黏着功没有除以接触面积,不同于前述的单位面积黏着功.

图3分别是在 $\varepsilon_i/\varepsilon$ 为1时两种接触的载荷-位移曲线. 由图3可知, 光滑接触和粗糙接触的拉离力分别为 $71.9\varepsilon/\sigma$ 和 $36.5\varepsilon/\sigma$, 它们的总黏着力分别为 29.9ε 和 17.7ε . 这里, 粗糙接触的拉离力和总黏着力分别是光滑接触的51%和59%. 我们的结果与文献[16,19]的结果很好地一致, 表明即使是原子尺度的表面粗糙化也显著地减少了界面拉离力和黏着力.

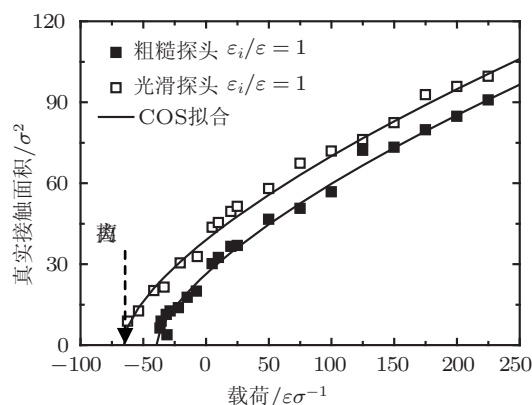


图2 真实接触面积与载荷的关系

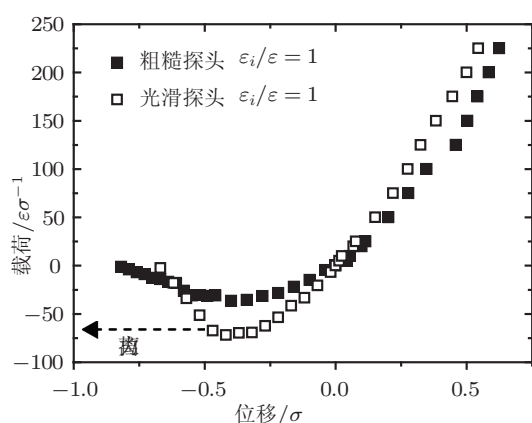


图3 载荷-位移曲线

3.2 接触过程中的黏着力变化

为了考察接触过程中黏着力的变化, 我们将表面力分解为排斥力和吸引力. 表面力的分解借鉴了Mo和Szulufarska的方法^[12,13], 通过下述计算得到: 首先, 得到有黏着条件下的系统平衡态原子构型; 将L-J势函数的 r_{cut} 减小为 $2^{1/6}\sigma$, 重新计算该平衡态构型的表面作用力. 这时的表面力就是有黏着条件下接触界面上的排斥力. 排斥力与黏着力的绝对值之差就是外载荷的大小, 由此可以计算出表面黏着力.

图4给出了三种黏着强度下($\varepsilon_i/\varepsilon = 0.2, 0.5, 1.0$)界面黏着力随载荷的变化. 光滑接触的黏着力与载荷之间呈现出很好的线性关系, 如图中虚线所示. 直线斜率随着黏着强度的增大而增大, 当 $\varepsilon_i/\varepsilon$ 为0.2, 0.5和1.0时, 斜率分别为0.12, 0.31和0.79. 对于粗糙接触, 我们对模拟数据进行了多项式拟合(见图中实线). 在粗糙接触中, 黏着力随载荷的单调增大过程分为两个阶段, 即较大斜率的快速增大和较小斜率的慢速增大, 两个阶段转变的临界点约在 $150\varepsilon/\sigma$ 附近. 与光滑接触的线性增长趋势相比, 在临界点之前, 粗糙接触具有比光滑接触更大的增长斜率; 但在临界点之后, 粗糙接触的增长斜率或与光滑接触的相差无几(当 $\varepsilon_i/\varepsilon$ 为0.2和0.5时), 或明显地小于光滑接触的线性斜率(当 $\varepsilon_i/\varepsilon$ 为1.0时).

在几乎整个施加正载荷的接触过程中, 粗糙接触都比光滑接触具有更大的黏着力. 当 $\varepsilon_i/\varepsilon$ 为0.5时, 粗糙接触的黏着力是光滑接触的0.95—1.35倍. 其中, 粗糙接触具有较小黏着力情形, 仅发生在零载荷附近的几个数据点. 当 $\varepsilon_i/\varepsilon$ 为1.0时, 粗糙接触的黏着力是光滑接触的1.25—1.68倍. 除了两种接触之间黏着力的比较, 我们还关心接触过程中黏着力与拉离力的比较. 这里, 以 $\varepsilon_i/\varepsilon = 1$ 为例. 当载荷为0和 $200\varepsilon/\sigma$ 时, 光滑接触的黏着力分别是拉离力的1.8和4.4倍, 而粗糙接触的黏着力分别是其拉离力的4.1和9.2倍.

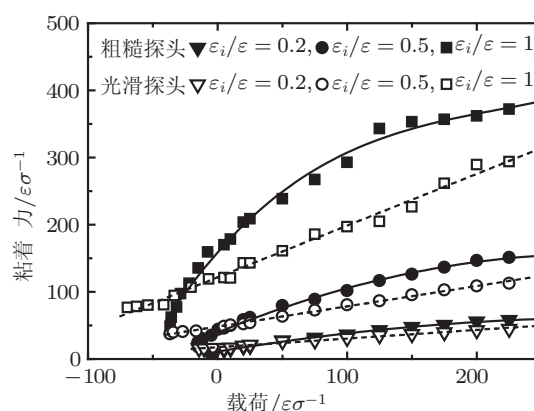


图4 接触过程中的黏着力随载荷的变化

粗糙接触的拉离力只是光滑接触的50%—60%, 但是, 在接触过程中粗糙接触却具有比光滑接触更大的黏着力, 这两者是如何统一起来的? 在黏着表面所能承受的最大负载荷处, 这时的黏着力

就是拉离力. 从最大负载荷到前述两个增长阶段的临界点之间, 相比于光滑接触, 粗糙接触的黏着力-载荷曲线具有更大的增长斜率. 因此, 尽管在最大负载荷处, 粗糙接触具有较小的黏着力(拉离力), 随着载荷的增大, 更大的增长斜率导致粗糙接触界面上形成了较大的黏着力. 由此可以看到, 通常用于表征黏着特性的拉离力和黏着功, 不能表征出在纳米接触过程中黏着力对界面法向力的贡献大小.

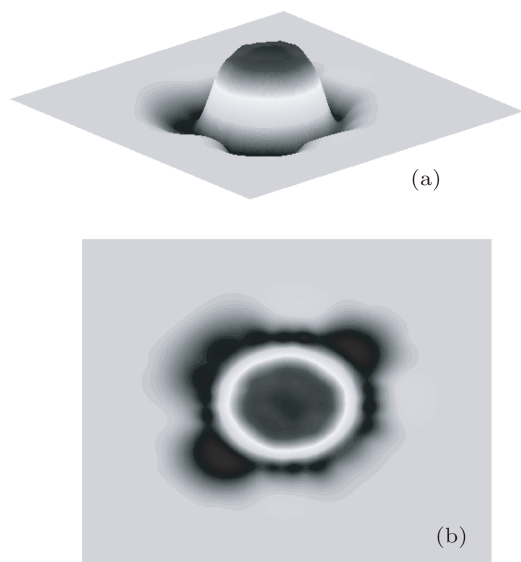


图5 原子级光滑探头与基体之间的法向接触应力 (a) 应力轮廓; (b) 应力分布区域

3.3 接触应力分布

我们尝试通过比较接触界面的法向应力分布, 来理解不同形貌接触的黏着特性差异. 以 $\varepsilon_i/\varepsilon$ 为 1.0, 载荷为 $200\varepsilon/\sigma$ 为例, 图 5 和图 6 分别给出了两种接触界面上表层原子的法向接触应力分布. 这时, 光滑接触和粗糙接触的界面黏着力分别是 $289.2\varepsilon/\sigma$ 和 $361.9\varepsilon/\sigma$, 它们的排斥力分别是 $489.2\varepsilon/\sigma$ 和 $561.9\varepsilon/\sigma$, 后者的黏着力和排斥力分别是前者的 1.25 和 1.15 倍. 在图中, 绝对值较大的应力值(无论是压缩应力还是拉伸应力)都采用深灰度表示, 浅灰度表示了过渡于压缩应力和拉伸应力之间的应力状态, 它们的应力绝对值相对较小. 对于光滑接触, 在接触区域的中部形成了一个压缩应力峰, 它随着原子的水平位置而光滑地变化. 在压缩应力峰的外围, 存在一个环形的拉伸应力区域, 如图 5 所示. 在图 6 中, 在粗糙表面的接触区域内形成了多个压缩应力峰, 它们具有不

同大小的最大峰值. 在这些压缩应力峰之间是拉伸应力区域, 压缩区域和拉伸区域两者交杂地分布在一起, 在接触区域的外围不存在明显的环形拉伸区域. 除了接触应力分布形态和区域的不同, 光滑接触和粗糙接触之间还具有相差较大的最大应力峰值. 粗糙接触的最大拉伸应力和最大压缩应力分别是 $-1.6 \times 10^{-5}\varepsilon/\sigma^3$ 和 $5.5 \times 10^{-5}\varepsilon/\sigma^3$, 它们分别是光滑接触的 1.5 倍和 2.6 倍. 可见, 即使仅是原子尺度的形貌差异, 也导致了相差很大的界面接触状态, 粗糙接触具有复杂的接触应力分布形态, 无法由此对两种接触的黏着力差异给出明确的解释.

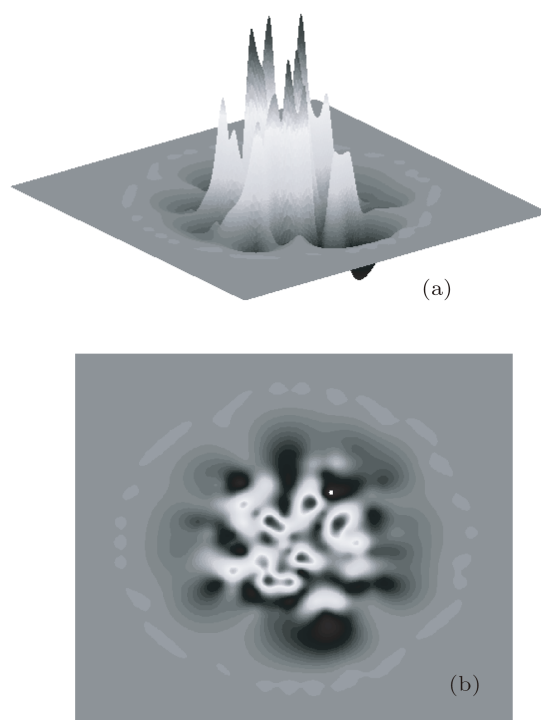


图6 原子级粗糙探头与基体之间的法向接触应力 (a) 应力轮廓; (b) 应力分布区域

4 结论

本文应用大规模分子动力学方法, 模拟了两种不同原子级粗糙形貌的、刚性球形探头与弹性平面基体之间的纳米尺度接触, 计算了探头与基体之间的拉离力和黏着功, 研究了接触过程中界面黏着力随载荷的变化规律, 分析了接触界面表层原子的法向应力分布.

模拟表明, 原子级粗糙探头与基体之间的拉离力和黏着功, 两者都仅为原子级光滑探头接触的 50%—60%. 在接触过程中, 光滑接触的黏着力

与载荷之间呈现出很好的线性增长关系, 而粗糙接触的黏着力 - 载荷曲线分为两个阶段. 在较小载荷下, 粗糙接触具有比光滑接触更大的增长斜率; 而在较大载荷下, 两者的增长斜率将相差无几或粗糙接触的增长斜率明显地小于光滑接触. 在几乎整个施加正载荷的接触过程中, 粗糙接触都比光滑接触具有更大的黏着力, 前者是后者的 1 倍多. 此外, 仅仅原子级的粗糙度就导致粗糙表面形成了复杂的接触应力分布, 其拉伸应力区离散地分布在接触区

域内, 与压缩应力区交杂地在一起. 两种形貌接触之间的拉伸应力 (吸引力) 分布区域和轮廓形态的不同, 共同决定了两者之间的黏着特性差异. 我们的研究表明, 相比于原子级光滑探头, 原子级粗糙探头与基体之间具有较小的拉离力和黏着功, 却在接触过程中形成了较大的黏着力. 因此, 拉离力和黏着功不能表征出纳米接触过程中表面吸引作用对界面法向力的贡献大小.

-
- [1] Israelachvili J N 1992 *Intermolecular and Surface Forces* (San Diego: Academic Press) p176
 - [2] Delrio F W, De Boer M P, Knapp J A, Reedy E D, Clews P J, Dunn M L 2005 *Nat. Mater.* **4** 692
 - [3] Moore N W, Houston J E 2010 *J. Adhesion Sci. Technol.* **24** 2531
 - [4] Brunner R, Tyndall G W, Waltman R J, Talke F E 2010 *Tribol. Lett.* **40** 41
 - [5] Mate C M 2008 *Tribology on the Small Scale* (New York: Oxford University Press) p151
 - [6] Zhao Y P, Wang L S, Yu T X 2003 *J. Adhesion Sci. Technol.* **17** 519
 - [7] Barthel E 2008 *J. Phys. Appl. Phys.* **41** 163001
 - [8] Hill I J, Sawyer W G 2010 *Tribol. Lett.* **37** 453
 - [9] Luan B, Robbins M O 2005 *Nature* (London) **435** 929
 - [10] Akarapu S, Sharp T, Robbins M O 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 204301
 - [11] Yang C, Persson B N J 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 024303
 - [12] Mo Y, Turner K, Szlufarska I 2009 *Nature* (London) **457** 1116
 - [13] Mo Y, Szlufarska I 2010 *Phys. Rev. B* **81** 035405
 - [14] <http://www.cs.sandia.gov/sjplimp/lammps.html>
 - [15] Plimpton S 1995 *J. Comp. Phys.* **117** 1
 - [16] Piotrowski P L, Cannara R J, Gao G T, Urban J J, Carpick R W, Harrison J A 2010 *J. Adhesion Sci. Technol.* **24** 2471
 - [17] Carpick W, Ogletree D F, Salmeron M 1999 *J. Colloid Interface Sci.* **211** 395
 - [18] Schwarz U D 2003 *J. Colloid Interface Sci.* **261** 99
 - [19] Luan B, Robbins M O 2006 *Phys. Rev. E* **74** 026111

Variation of adhesive force in the nanoscale contact*

Duan Fang-Li[†] Wang Guang-Jian Qiu He-Bing

(State Key Laboratory of Mechanical Transmissions, Chongqing University, Chongqing, 400030 China)

(Received 18 April 2011; revised manuscript received 23 June 2011)

Abstract

Intermolecular attractive forces lead to the adhesion problem in M/NEMS. The Van der Waals formula for the interaction between macroscopic objects can be used only in the situation with no deformation. As to the adhesive contact between elastic bodies it is still unknown how the attractive force contributes to the normal force on the interface. In this paper large-scale molecular dynamics simulation is performed to study the adhesive contact between a rigid spherical tip and an elastic flat substrate. We study the effect of atomic-scale surface roughness on the adhesive properties, including pull-off force between tips and substrate, the variation of adhesive force with applied load, and the distribution of contact stress. The results show that the adhesive force varies linearly with the applied load for the atomic-scale smooth contact. But for the atomic-scale rough contact the variation of adhesive force with applied load can be divided into two phases, which are distinguished by different increasing slopes. Compared with the smooth contact, the rough contact has a small pull-off force, but exhibits a large adhesive force during the contacting process. Our simulations indicate that the pull-off force cannot characterize the contribution of attractive interaction to the normal force on the interface in the case of an elastic adhesion contacting.

Keywords: nanoscale contact, adhesive force, pull-off force, atomic-scale roughness

PACS: 68.35.Np, 46.55.+d

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50875271), the Natural Science Foundation of Chongqing, China (Grant No. CSTC 2009BB4200), and the Fundamental Research Funds for the Central Universities (Grant No. CDJZR11 28 00 01).

[†] E-mail: flduan@cqu.edu.cn