

纳米多晶铜中冲击波阵面的分子动力学研究*

马文[†] 陆彦文

(国防科学技术大学理学院物理系, 长沙 410073)

(2012年6月28日收到; 2012年8月17日收到修改稿)

冲击波阵面反映材料在冲击压缩下的弹塑性变形行为以及屈服强度、应变率条件等宏观量, 还与冲击压缩后的强度变化联系. 本文使用分子动力学方法, 模拟研究了冲击压缩下纳米多晶铜中的动态塑性变形过程, 考察了冲击波阵面和弹塑性机理对晶界存在的依赖, 并与纳米多晶铝的冲击压缩进行了比较. 研究发现: 相比晶界对纳米多晶铝的贡献而言, 纳米多晶铜中晶界对冲击波阵面宽度的影响较小; 并且其塑性变形机理主要以不全位错的发射和传播为主, 很少观察到全位错和形变孪晶的出现. 模拟还发现纳米多晶铜的冲击波阵面宽度随着冲击应力的增加而减小, 并得到了冲击波阵面宽度与冲击应力之间的定量反比关系, 该定量关系与他人纳米多晶铜模拟结果相近, 而与粗晶铜的冲击压缩实验结果相差较大.

关键词: 冲击波阵面, 纳米多晶铜, 塑性变形, 分子动力学

PACS: 62.50.Ef, 62.20.F-, 61.72.Mm, 02.70.Ns

DOI: 10.7498/aps.62.036201

1 引言

金属材料在一维平面冲击加载下, 先经历弹性压缩阶段, 然后屈服, 进入不可逆的塑性阶段, 最后达到应力、温度和密度稳定的波后状态. 通过实验可以测量出整个过程中沿冲击加载方向的应力剖面或者自由面速度历史剖面, 如图 1 所示. 冲击波阵面 (shock front) 指的是上述波剖面中从初始状态上升波后平台之间的部分, 如图 1 所示 0 到 2 之间的部分. 冲击波阵面是金属材料经历冲击压缩的力学响应过程宏观反映. 冲击波阵面的斜率变化可以反映出金属材料弹塑性转变的屈服强度. 冲击波阵面的宽度 (或上升时间) 不仅反映出材料在冲击加载下的应变率条件, 还反映金属材料弹塑性变形的具体过程^[1]. 实验研究已经发现, 在相同的冲击加载条件下, 金属材料的强度会随晶粒度的减小而增强, 而不同的晶粒度会造成冲击波阵面宽度不同^[2]. 这说明冲击波阵面的结构不仅与金属的塑性变形机理密切相关, 还与冲击加载后材料的强度变化紧密联系.

由于当前实验条件的限制, 无法直接观察冲击加载下塑性变形的微细观过程, 只能获得冲击波阵面宽度与金属材料晶粒度以及波阵面后强度的唯象关系. 无法了解形成这种关系的机理^[3]. 在理论方面, 分子动力学 (molecular dynamics, MD) 模拟为在微细观尺度上研究冲击加载下的塑性行为提供了一种重要手段, 随着近年来大规模并行计算的实现, MD 方法可以模拟上千万原子在亚纳秒时间尺度上的物理过程, 可以对纳米尺寸的材料开展冲击波阵面结构的模拟研究. 利用 MD 方法研究纳米金属冲击加载下的过程, 不仅可以获得冲击波阵面的精细结构, 还可得到该波阵面结构所反映的弹-塑性变形所对应的微观结构演化过程 (位错的发射、演化和晶界的变形), 以及偏应力演化过程, 有助于从机理上了解纳米金属冲击波阵面结构形成的原因和冲击加载波后状态的强度变化原因^[4]. 同时, 纳米金属包含了金属材料塑性变形的典型载体: 位错和晶界, 从中获得的认识对于深入研究金属材料的本构关系有重要意义.

纳米金属动态塑性变形的 MD 模拟研究是美国洛斯阿拉莫斯国家实验室 (LANL) 的 Holian 研

* 国家自然科学基金 (批准号: 11202238, 11102194) 和冲击波物理与爆炸物理国防科技重点实验室基金 (批准号: 9140C6702011104) 资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: wenma@nudt.edu.cn

究组最早开始的, 他们对冲击加载下纳米单晶金属中晶向对冲击波结构和塑性变形过程的影响及铁的冲击相变等做了系统的研究^[5-7]. 但早期的研究对象主要是单晶, 对多晶的研究不多. 加州大学的 Meyers 研究组在 MD 模拟研究冲击加载下纳米多晶金属的塑性变形机理中取得了一些进展^[8,9], 但对其与冲击波阵面结构的关注不多. Bringa 等^[10]采用 MD 方法对纳米多晶铜中的冲击波阵面宽度与晶粒尺寸、冲击加载强度和时间的依赖关系做了比较系统的研究, 但在建立物理模型时仍只是考虑了晶粒中弹性波各向异性的影响, 而认为纳米多晶中的晶界对冲击波阵面的影响可以忽略, 也没有重点考虑微观塑性变形过程对冲击波阵面的影响. 然而实验和准静态 MD 模拟都已经证明^[11,12], 随着纳米多晶晶粒尺寸的减小, 晶界原子所占的比例越来越大, 晶界对纳米多晶的塑性变形机理的影响也不可忽略. 所以在冲击波引起的塑性变形过程中晶界的影响也不应忽略, 从而可以推断晶界对冲击波阵面的影响也不可忽略. 我们在对带

织构纳米多晶铜和纳米多晶铝的冲击压缩模拟研究中也验证了这一推断^[13,14], 由于晶界缺陷的存在导致晶界和位错两种塑性过程在波阵面上出现时序性从而使冲击波阵面宽度增加, 其对应的塑性过程可以分为晶界引起的塑性和位错引起的塑性两部分^[15].

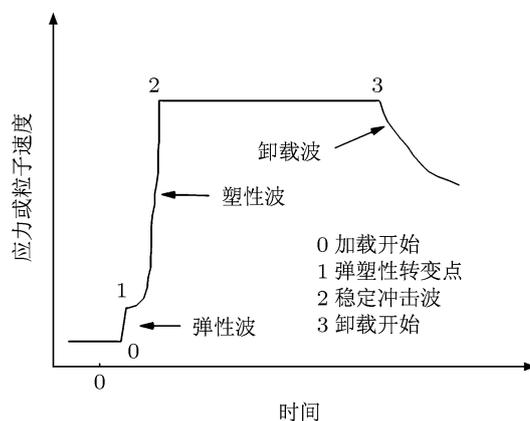


图1 受冲击加载的样品应力历史剖面 and 自由面速度历史剖面示意图

表1 本文模拟样本的详细参数

样本	晶粒数	平均晶粒大小/nm	总原子数	密度/%	尺寸/nm×nm×nm
1	16×2×2	9.0	3902745	96.0	144.0×18.0×18.0
2	16×4×4	8.0	10384104	96.9	128.0×32.0×32.0

本文通过分子动力学的方法, 研究了随机晶粒取向的纳米多晶铜在不同冲击加载强度下的冲击波阵面结构及其对应的微观塑性变形机理. 重点分析了冲击波阵面宽度及应变率与冲击加载应力间的定量关系.

2 计算模拟方法

本文中的纳米多晶铜样本的初始结构参照文献^[16]提供的 Voronoi 方法得到, 模拟使用的两个样本的详细参数见表 1. 铜原子间的相互作用采用 Mishin 等^[17]发展的嵌入原子 (embedded atom method, EAM) 势描述, 此势适用性已得到大量 MD 模拟的验证^[13,18], 能准确地得到物态方程等冲击下的性质. 设置样本左边界上 4 层原子作为活塞实现设定活塞速度 U_p 的冲击加载, 沿冲击方向采用自由边界条件, 垂直冲击方向使用周期性边界条件. 纳米多晶铜的初始结构需要经过弛豫退火使样本的原子能量和内应力尽量接近真实的实验样品, 之

后才能进行冲击压缩模拟, 我们在先前的研究中做了详细的介绍^[19], 在此不再赘述. 文中使用键对分析方法^[20]来区分面心立方 (FCC), 六角密排 (HCP) 和晶界或位错核 (无规则) 原子, 依照 Cormier 提出的微应力分析方法来分析体系的应力^[21]. 由于碰撞过程十分短暂, 可以认为整个样本是绝热的, 初始温度设为 0 K. 本工作的模拟使用自行开发的大规模并行 MD 程序进行^[22], 模拟步长全部为 1 fs.

3 计算结果与讨论

图 2 和图 3 分别显示了纳米多晶铜样本 1 和 2 在 1 km/s 的活塞速度冲击下不同时刻粒子速度和应力剖面, 冲击波传播方向由黑色箭头表示. 应力和粒子速度由沿冲击方向上 2 倍晶格常数宽盒子内所有原子的速度和应力值的统计平均后得到. 从图 2(a) 和图 3(a) 可以看出模拟得到的冲击应力与虚线表示的实验值^[23]符合得非常好, 但 Hugoniot 弹性极限 (HEL) 却高出实验值约一个量级. 这可

能是因为此处我们模拟的样本除了晶界缺陷外不像实验使用的样本那样存在各种各样的缺陷; 另外一方面可能是因为我们模拟的冲击加载过程应变率(达到 10^9s^{-1} 以上) 远高于传统的冲击加载实验(除激光加载外都低于 10^7s^{-1}), 而 HEL 却是应变率相关的, 不同于冲击应力的应变率无关. 冲击压缩后的流应力使用剪切应力 σ_{shear} 和 von Mises 应力 σ_{VM} 来表示, 其计算公式分别为

$$\sigma_{\text{shear}} = \frac{1}{2} \left[\sigma_{XX} - \frac{\sigma_{YY} + \sigma_{ZZ}}{2} \right] \quad \text{和} \quad \sigma_{\text{VM}} = \sqrt{\frac{[(\sigma_{XX} - \sigma_{YY})^2 + (\sigma_{XX} - \sigma_{ZZ})^2 + (\sigma_{ZZ} - \sigma_{YY})^2]}{2}}.$$

我们定义冲击波阵面宽度为粒子速度从 0 到 95% 最大粒子速度之间的距离, 如图 2 和图 3 中箭头之间的区域. 图 2 和图 3 给出的冲击波剖面反映了纳米多晶铜对冲击压缩加载的响应, 首先产生弹性形变(冲击应力、流应力和粒子速度线性上升), 达到 HEL 时发生材料开始屈服产生塑性变形, 在流应力达到最大值时屈服过程完成, 直到流应力和冲击应力达到稳定值后塑性变形完成而形成稳定的冲击波. 与纳米多晶铝的冲击波阵面 [14,15] 相比, 纳米多晶铜在塑性变形时晶界引起的塑性和位错产生的塑性之间的区别不是很明显, 所以在冲击波阵面上没有明显的拐点出现. 产生这种差异的原因有多种, 一方面材料的本征参数会影响到晶界塑形与位错成核发射之间的临界分切应力, 主要可能参数是铝的层错能 (stacking fault energy, SFE) 比铜的层错能高 2—3 倍 [17,24], 对铜而言位错更容易从晶界处发射, 不需要很大的晶界变形调整来发射位

错. 另一方面晶界的构型和性质也会影响到临界分切应力. 由于本文模拟的纳米多晶铜样本和文献 [14, 15] 中的纳米多晶铝样本晶界构型完全不同, 因此很难分清是哪种因素占主导, 仍需要设计合理的样本来进一步研究. 图 4 给出了样本 2 经过 20 ps 冲击压缩后的原子结构图, 浅灰色为具有正常 FCC 结构的原子, 黑色表示无规则结构原子 (晶界和位错核), 深灰色表示 HCP 原子 (堆垛层错). 在图 4 中显示了大量不全位错, 而很少能观察到没有位错参与的晶界变形, 全位错和形变孪晶. 这说明纳米多晶铜响应冲击压缩的主要塑性变形机理为不全位错的产生和发射, 原因仍然是铜的层错能比较低, 不全位错容易从晶界发射而不需要晶界变形调整来释放应力.

比较图 2 和图 3, 可以发现相同加载强度 (活塞速度) 下样本 1 和样本 2 的冲击波阵面及波后剖面基本没有区别, 也就是说两个样本的差异 (平均晶粒尺寸和垂直于冲击方向样本宽度) 冲击波剖面的影响很小. 这是由于样本 1 和 2 的平均晶粒尺寸相差只有 1 nm, 并且都小于发生位错主导塑性变形向晶界主导塑性变形的临界尺寸 (d_c , 也即纳米多晶金属正反 Hall-Petch 关系的转折点, 此时屈服强度达到最大. 对纳米多晶铜的 MD 模拟研究发现准静态加载下 [25] d_c 约为 10—15 nm, 冲击加载下 [26] d_c 约为 20—30 nm); 另一方面垂直于冲击方向使用了周期性边界条件而消除了边界效应. 所以在下文我们对样本 2 的冲击压缩模拟进行讨论分析, 样本 1 的相关模拟结论是基本相同的.

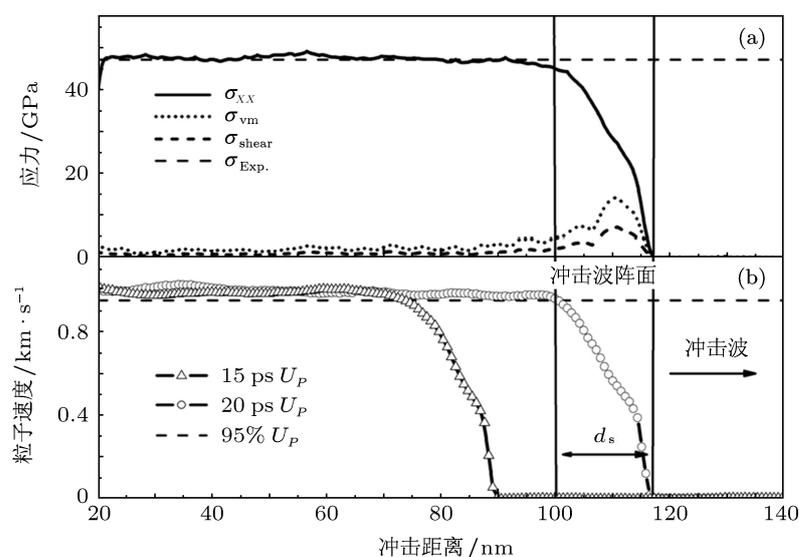


图 2 (a) 样本 1 在活塞速度 1 km/s 冲击加载 20 ps 后样本中应力(冲击应力 σ_{XX} 和流应力)波剖面图, 实验确定的冲击波后应力值 σ_{Exp} 用虚线表示; (b) 冲击波由左向右传播 15 ps 和 20 ps 后样本 1 中的粒子速度剖面图, d_s 表示两条黑线确定的冲击波阵面宽度

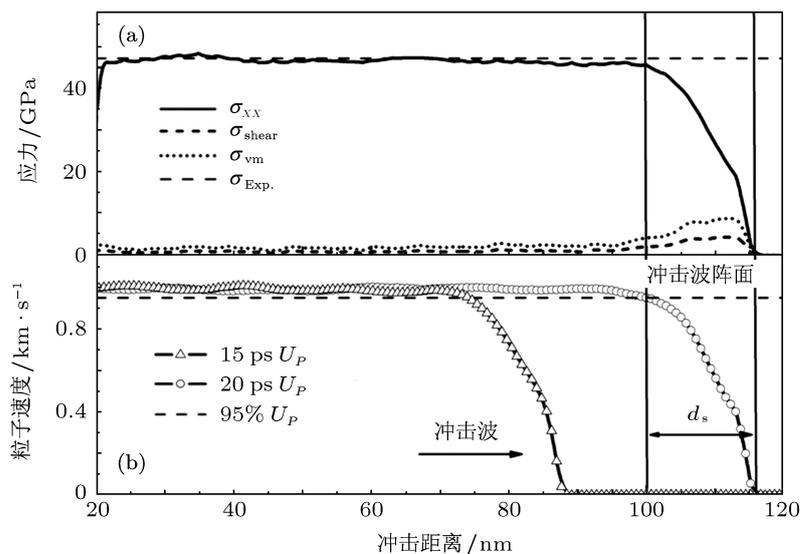


图3 (a) 样本2在活塞速度1 km/s冲击加载20 ps后样本中应力(冲击应力 σ_{xx} 和流应力)波剖面图; (b) 冲击波由左向右传播15 ps和20 ps后样本2中的粒子速度剖面图; 其他说明同图2

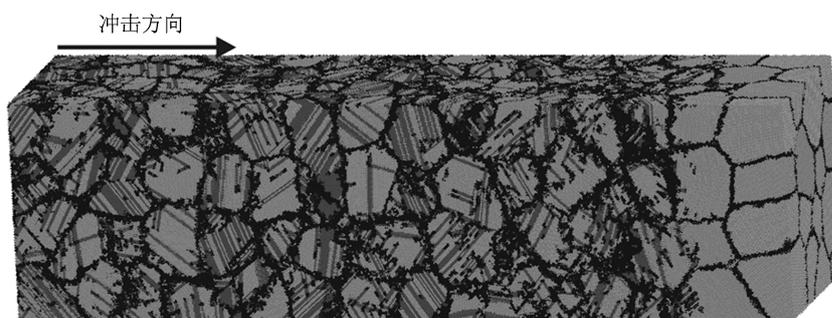


图4 样本2经过20 ps冲击压缩 ($U_p = \text{km/s}$) 后的原子结构图, 浅灰色为具有正常FCC结构的原子, 黑色表示不规则结构原子(晶界和位错核), 深灰色表示HCP原子(堆垛层错)

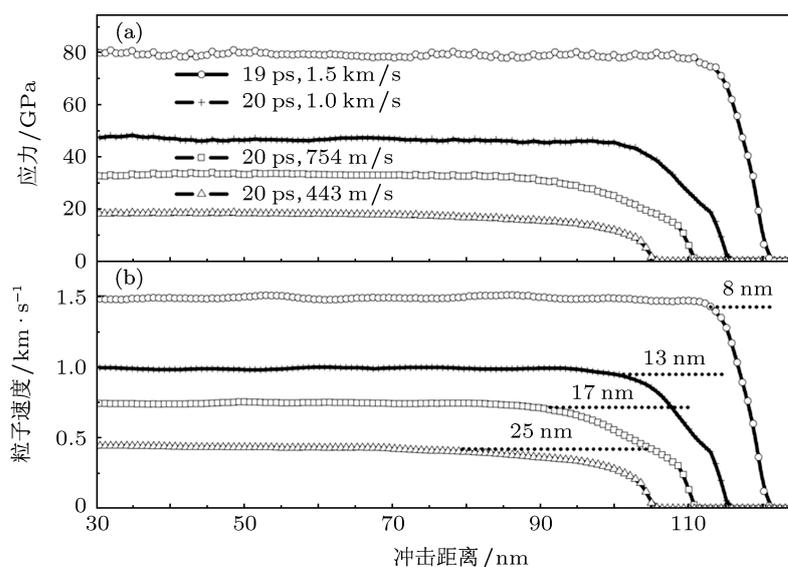


图5 样本2在活塞速度0.443, 0.754, 1.0 km/s冲击加载20 ps后和1.5 km/s冲击加载19 ps后的(a) 应力和(b) 粒子速度波剖面图; (b) 中的点线标明了冲击波阵面的位置及宽度

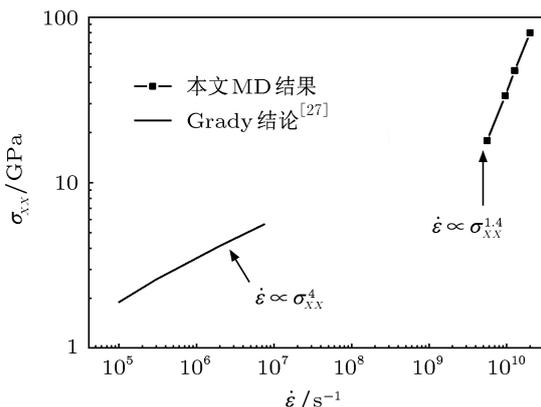


图6 MD模拟得到的冲击应力应变率关系及Grady总结的冲击应力应变率实验关系^[27]

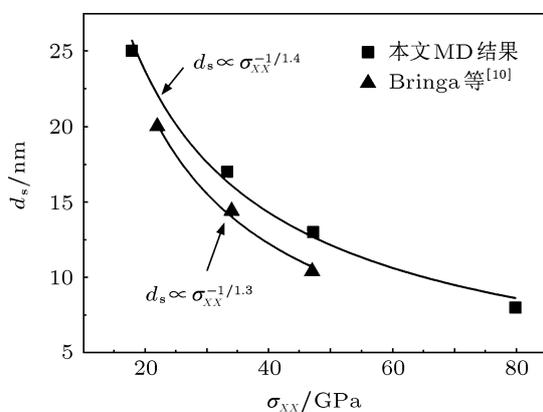


图7 MD模拟得到的冲击应力与冲击波阵面宽度关系及Bringa等^[10]的MD模拟结果

Grady等^[27-29]总结了大量的实验数据并结合理论分析发现金属的冲击波导致的塑性变形应变率($\dot{\epsilon}$)与冲击应力(σ_{xx})的4次方成正比,而冲击应变率又直接决定冲击波阵面宽度或冲击波上升时间(rise time),因此由Grady的总结可以推断冲击波阵面宽度与冲击应力之间也存在相应的4次方关系.在MD模拟中冲击应力和应变可直接得到,并且应变和活塞速度之间的关系为 $\epsilon = U_p/c_0$,其中 c_0 为常态下的材料中的声速(铜中有 $c_0 = 3.94 \text{ km/s}$);应变率可以由冲击产生的应变和传播时间来确定.为了得到纳米多晶铜中冲击波阵面与冲击应力的关系,以及冲击应力对塑性变形过程的影响.我们分别模拟了样本1和2在 $U_p = 0.443, 0.754, 1.0$ 和 1.5 km/s 冲击压缩下的塑性变形过程,样本2的应力和粒子速度波剖面如图5所示.图5(b)中的点线给出了不同冲击加载条件下冲击波阵面的位置

和宽度,很容易发现随着活塞速度的增大,对应着冲击应力增加,冲击波阵面变得越来越陡,宽度减小.也即随着冲击应力的增加,塑性变形完成需要的时间更短,更容易达到稳定的冲击波后平衡态,这与我们对冲击波的直观理解是一致的.图6和图7分别给出了样本2冲击加载时冲击应力与应变率及冲击波阵面宽度间的关系以及实验上总结的冲击应力和应变率关系和他人MD模拟得到的冲击应力与冲击波阵面宽度关系.从图6中我们可以看出,MD模拟得到冲击应力应变率关系与实验得到的4次方定律^[27]相差较大.这一方面是由于早期的冲击加载实验都是在轻气炮上进行的,所得到的应变率都在 10^7 s^{-1} 以下,而MD模拟中的应变率都在 10^9 s^{-1} 以上(对应激光加载产生冲击波实验),Grady总结的4次方定律能否在高应变率条件下适用是一个未知数.另外一方面,MD模拟除了能很好地模拟出冲击加载中的波后冲击应力外,却不能得到与实验中一致的HEL,所以MD模拟在计算冲击加载过程中的宏观物理量的可靠性上仍然需要进一步的检验.图7所示的Bringa等^[10]从MD模拟得到的冲击应力与波阵面宽度关系与我们MD模拟得到的基本一致也充分的说明了这个问题.

4 结论

本文通过MD模拟研究了纳米多晶铜在不同冲击加载条件下的冲击波阵面及其对应的塑性变形过程.研究表明,纳米多晶铜的塑性变形过程与纳米多晶铝的不同,主要以不全位错的发射为主,这主要是由于铜的层错能比较低的原因.同时导致晶界引起的塑性变形对冲击波阵面的贡献减小.尽管此前国内外大多MD模拟冲击压缩过程研究都集中在纳米单晶或多晶铜上,但却没有认识到铜塑性机理与其他材料相比的独特性.本文还定量地分析了纳米多晶铜的冲击应力与应变率关系,发现与前人总结的低应变率下的关系差异较大,而本文总结的冲击应力与冲击波阵面宽度间的关系却和先前的MD模拟研究结果一致.其中可能的原因有:冲击应力与应变率关系是应变率相关的,或者由于MD模拟对冲击过程中相关物理量描述的不准确(例如HEL和屈服强度)导致,准确的原因仍然需要进一步的探索研究.

- [1] Meyers M A 1994 *Dynamic Behavior of Materials* (New York: John Wiley & Sons, Inc.)
- [2] Jones O E, Mote J D 1969 *J. Appl. Phys.* **40** 4920
- [3] Asay J R, Chhabildas L C 2003 in ed. Horie Y, Davison L, Thadhani N N *High-Pressure Shock Compression of Solids VI* (New York: Springer)
- [4] Holian B L 2004 *Shock Waves* **13** 489
- [5] Holian B L, Lomdahl P S 1998 *Science* **280** 2085
- [6] Germann T C, Holian B L, Lomdahl P S, Ravelo R 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 5351
- [7] Kadau K, Germann T C, Lomdahl P S, Holian B L 2002 *Science* **296** 1681
- [8] Cao B, Bringa E M, Meyers M A 2007 *Metall. Mater. Trans. A* **38A** 2681
- [9] Jarmakani H, Bringa E, Erhart P, Remington B, Wang Y, Vo N, Meyers M 2008 *Acta Mater.* **56** 5584
- [10] Bringa E M, Caro A, Victoria M, Park N 2005 *JOM* **57** 67
- [11] Shan Z, Stach E A, Wiezorek J M K, Knapp J A, Follstaedt D M, Mao S X 2004 *Science* **304** 654
- [12] Van Swygenhoven H, Derlet P M 2008 in ed. Hirth J P *Dislocations in Solids* (Amsterdam: Elsevier B. V.)
- [13] 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]
- [14] Ma W, Zhu W J, Zhang Y L, Chen K G, Jing F Q 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 016107 (in Chinese) [马文, 祝文军, 张亚林, 陈开果, 经福谦 2011 物理学报 **60** 016107]
- [15] Ma W, Zhu W J, Jing F Q 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 121903
- [16] Chen D 1995 *Comput. Mater. Sci.* **3** 327
- [17] Mishin Y, Mehl M J, Papaconstantopoulos D A, Voter A F, Kress J D 2001 *Phys. Rev. B* **63** 224106
- [18] Deng X L, Zhu W J, Song Z F, He H L, Jing F Q 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4767 (in Chinese) [邓小良, 祝文军, 宋振飞, 贺红亮, 经福谦 2009 物理学报 **58** 4772]
- [19] Ma W, Zhu W J, Zhang Y L, Chen K G, Deng X L, Jing F Q 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 4781 (in Chinese) [马文, 祝文军, 张亚林, 陈开果, 邓小良, 经福谦 2010 物理学报 **59** 4781]
- [20] Honeycutt J D, Andersen H C 1987 *J. Phys. Chem.* **91** 4950
- [21] Cormier J, Rickman J M, Delph T J 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 99
- [22] Deng X L, Zhu W J, He H L, Wu D X, Jing F Q 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 4767 (in Chinese) [邓小良, 祝文军, 贺红亮, 伍登学, 经福谦 2006 物理学报 **55** 4767]
- [23] Marsh P S 1980 *LASL Shock Hugoniot Data* (Berkeley: University of California Press)
- [24] Mishin Y, Parkas D, Mehl M J, Papaconstantopoulos D 1999 *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **538** 535
- [25] Schiøtz J, Jacobsen K W 2003 *Science* **301** 1357
- [26] Bringa E M, Caro A, Wang Y M, Victoria M, McNaney J M, Remington B A, Smith R F, Torralva B R, van Swygenhoven H 2005 *Science* **309** 1838
- [27] Grady D E 1981 *Appl. Phys. Lett.* **38** 825
- [28] Swegle J W, Grady D E 1985 *J. Appl. Phys.* **58** 692
- [29] Grady D E 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 013506

Molecular dynamics investigation of shock front in nanocrystalline copper*

Ma Wen[†] Lu Yan-Wen

(Department of Physics, College of Science, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China)

(Received 28 June 2012; revised manuscript received 17 August 2012)

Abstract

The elasto-plastic deformation behavior, yield strength and strain rate of material under shock compression can be represented by shock front, and the shock front is also related to the variation of strength after shock compression. In this paper, we study the dynamic plastic deformation processes of nanocrystalline copper under shock compression through molecular dynamics simulations. We also explore the dependences of the shock front and the mechanism of elasto-plastic deformation on grain boundary, and make a comparison with the case of the shock response of nanocrystalline aluminum. This investigation shows that the contribution of grain boundary to the shock-front width of nanocrystalline copper are smaller than that of nanocrystalline aluminum. The plastic mechanism of nanocrystalline copper is dominated by the emission and propagation of partial dislocations, and the full dislocation and deformation twin are rarely found in the samples. From the simulations are also found that the shock-front width decreases with the increase of loaded shock stress. A quantitative inverse relationship between the shock wave front width and the shock intensity is obtained. This quantitative inverse relationship is close to other simulation result of nanocrystalline copper and quite different from results of coarse-grained copper compression experiments.

Keywords: shock front, nanocrystalline copper, plastic deformation, molecular dynamics

PACS: 62.50.Ef, 62.20.F-, 61.72.Mm, 02.70.Ns

DOI: 10.7498/aps.62.036201

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11202238, 11102194) and the Science and Technology Foundation of National Key Laboratory of Shock Wave and Detonation Physics, China (Grant No. 9140C6702011104).

[†] Corresponding author. E-mail: wenma@nudt.edu.cn