

## 高通量计算二维材料界面摩擦\*

崔子纯<sup>1)</sup> 杨莫涵<sup>2)</sup> 阮晓鹏<sup>1)</sup> 范晓丽<sup>1)†</sup> 周峰<sup>1)3)</sup> 刘维民<sup>1)3)</sup>

1) (西北工业大学材料学院, 先进润滑与密封材料中心, 西安 710072)

2) (西北工业大学, 伦敦玛丽女王大学工程学院, 西安 710072)

3) (中国科学院兰州化学物理研究所, 固体润滑国家重点实验室, 兰州 730000)

(2022 年 8 月 24 日收到; 2022 年 10 月 11 日收到修改稿)

建立了基于第一性原理方法研究二维材料界面摩擦的高通量计算程序, 该程序实现了自动化批量建模、批量提交任务、多任务并发计算, 以及计算结果自动收集、处理和图像绘制, 使用该程序可以节省时间. 采用此程序计算了不同层间距离下双层氮化硼和双层石墨烯的滑移势能面, 及层间界面摩擦力和摩擦系数. 研究发现, 随着层间距离减小, 双层氮化硼界面的平均摩擦力近似线性增大, 摩擦系数为 0.11—0.17, 双层石墨烯界面摩擦力先增大后减小再增大, 其摩擦系数在 12 nN 载荷下达到最小值 (0.014), 这些结果与已有研究结果一致, 验证了该计算程序的可靠性. 此外还研究了表面氢化和氟化对双层氮化硼界面摩擦的影响, 发现氟化氮化硼/氮化硼界面的摩擦系数更低.

**关键词:** 第一性原理方法, 高通量计算, 势能面, 摩擦系数**PACS:** 68.35.Af, 71.15.Mb**DOI:** 10.7498/aps.72.20221676

## 1 引言

摩擦一般发生在相对运动或具有相对运动趋势的接触界面, 阻碍相对运动, 同时产生能量损耗. Holmberg 等<sup>[1]</sup>调查发现卡车等重型交通工具具有 1/3 的燃料用于克服发动机、变速器的摩擦. 为了避免不必要的能源消耗和机器故障, 控制摩擦力、黏附力和磨损力以减小摩擦磨损一直是科研工作者密切关注的问题<sup>[2]</sup>. 纳米尺度下, 以黏附和摩擦为代表的表面力成为制约纳米机电系统性能和寿命的关键因素<sup>[3]</sup>, 因此, 了解纳米级甚至原子尺度下的摩擦行为必要且重要.

因为层间作用力弱、层内共价键强、剪切应力较低的特点, 层状二维材料的润滑性能往往优于其他纳米材料<sup>[4,5]</sup>. 特别是石墨烯<sup>[6]</sup>、氮化硼<sup>[7]</sup>、二硫

化钼<sup>[8]</sup>等典型二维层状材料, 通常以微米级薄膜的形式被用作固体润滑剂. 已有研究表明, 二维材料界面处的原子尺度摩擦行为受到多种因素影响, 包括温度<sup>[9–11]</sup>、滑动速度<sup>[12]</sup>以及载荷<sup>[12–14]</sup>等. 研究者采用实验技术和理论计算方法研究了二维材料界面的原子尺度摩擦行为<sup>[15–17]</sup>. 温度变化会影响表面原子热振动的幅度以及频率, 从而影响摩擦行为, 已有研究显示摩擦系数随温度变化呈现非单调变化的特点<sup>[18]</sup>. 摩擦力与滑动速度的关系较为复杂, 当滑动速度较小时, 摩擦力几乎不随速度变化, 能量耗散主要来自于黏滑运动, 当滑动速度增大到一定程度时, 摩擦力与速度呈现线性关系, 黏滑运动消失, 能耗主要为阻尼能耗<sup>[18–20]</sup>.

依照宏观摩擦定律, 摩擦力与载荷的关系符合阿蒙顿定律, 原子尺度上摩擦力与载荷的关系则较为复杂. Mate 等<sup>[21]</sup>利用钨探针研究了石墨表面的

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2018YFB0703800)、陕西省自然科学基金重点项目 (批准号: 2021JZ-07) 和陕西三秦学者高分子电磁功能材料创新团队资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xlfan@nwpu.edu.cn

微观黏滑现象,发现界面间的平均摩擦力随法向载荷的增大而近似线性增大; Mo 等<sup>[22]</sup>采用分子动力学方法模拟了碳尖端在金刚石表面的滑动行为,当接触界面的范德瓦耳斯吸附力较强时,摩擦力和载荷呈现非线性关系,随着范德瓦耳斯吸附力的减弱,摩擦力与载荷的关系趋于线性. An 等<sup>[23]</sup>基于第一性原理方法计算了氮化硼层间摩擦,发现摩擦力随载荷的增大而增大; Sun 等<sup>[24]</sup>发现石墨烯层间平均滑移摩擦力随着载荷增大,先增大后减小再增大的有趣现象. 此外,多项研究表明<sup>[25–30]</sup>,层数、表面吸附、面内应变等对石墨烯和氮化硼的层间摩擦有着显著影响,归因于层间电子分布的变化. 鉴于原子尺度摩擦学的复杂性和重要性,从原子水平上掌握摩擦机制<sup>[31]</sup>,预测和控制摩擦行为紧迫且关键.

原子力显微镜 (atomic force microscope, AFM) 研究扫描探针与材料表面之间的摩擦特性,是研究纳米尺度摩擦学应用最广泛的工具. 然而,受限于可用作探针尖端的材料种类,AFM 测量任意二维材料界面间摩擦仍然是一个挑战. 先进的计算模拟技术是研究二维材料层间摩擦的有力工具. 研究摩擦现象的常用计算模拟方法包括分子动力学模拟 (molecular dynamics, MD) 方法和基于密度泛函理论 (density functional theory, DFT) 的第一性原理方法. 分子动力学依据牛顿力学定律模拟接触界面的相对运动,根据公式  $F_i = -\frac{\partial U}{\partial r}$  ( $U$  代表原子间相互作用势,  $r$  代表原子的所在位置) 求出每个原子的受力,然后分别对所有原子的法向力和与滑动方向相反的横向力进行求和,得到总的法向力和摩擦力,进而运用阿蒙顿定律求得摩擦系数. 分子动力学模拟已被广泛应用于计算二维材料摩擦学性能<sup>[32–35]</sup>,其模拟的可靠性强烈依赖于选取的势函数描述层间/内相互作用的准确性. 第一性原理计算方法通过计算摩擦界面相对滑动时的能量变化,得到滑动能垒和平均摩擦力,通过改变层间距离模拟外界施加载荷,获得不同载荷下的势能面以及摩擦力,再根据阿蒙顿定律求得摩擦系数. 该方法可以精确地处理电子结构,并从界面电荷分布探索原子尺度摩擦行为<sup>[36–38]</sup>.

势能面 (potential energy surface, PES) 是研究原子尺度摩擦行为的主要途径<sup>[39]</sup>. 特定载荷下的 PES 由足够密集的势能点组成,对应相应滑移

位置处的势能. 构建 PES 一般需要建立近 700 个滑移位置的界面结构并计算其能量,涉及大量建模、计算、数据处理. 本文建立了基于第一性原理方法研究二维材料层间摩擦的高通量计算程序 (homogenous/heterogenous junction construction and frictional properties calculation software, HJC<sup>2</sup>S), 该程序自动化建立滑移界面的原子结构,批量建立构建势能面所需计算的界面构型,高通量计算系列载荷下势能面上的所有界面结构,自动收集能量并输出摩擦性能相关数据和图像. 基于该程序计算了双层氮化硼和双层石墨烯的界面层间滑移摩擦性能,研究了表面功能化对于氮化硼层间滑移摩擦力的调控.

## 2 二维材料层间摩擦的高通量计算程序

程序 HJC<sup>2</sup>S 基于 Linux 操作系统,所有计算通过基于密度泛函理论<sup>[40]</sup>的 VASP (vienna *ab-initio* simulation package) 软件包<sup>[41–43]</sup>完成. 程序功能包含了自动化建模、批量产生并提交计算任务、数据提取与存储 (提取并保存数据、绘制并保存图像) 3 个模块. 如图 1 所示,程序首先基于用户提供的二维材料结构建立同、异质结界面结构,并对界面结构进行优化;将界面一侧的材料沿着  $z$  方向按照一定间距移动,模拟系列载荷;特定界面间距下,沿着  $x, y$  方向按照一定间距移动界面一侧的材料,模拟特定载荷下沿  $xy$  平面相对滑移位置;提交对所有界面结构进行自洽计算的任务,通过作业调度系统实现计算资源的有效利用和多任务并发计算,实现二维材料界面摩擦性能的高通量计算;计算完成后,程序智能化处理并输出计算结果,用户分析数据以获得界面的纳米摩擦学性能,以下部分介绍具体的计算流程.

### 2.1 构建界面结构

对于异质界面, HJC<sup>2</sup>S 程序会对提供的两种二维材料的晶胞矢量进行匹配 (本文设置晶格常数失配率不超过 5%, 失配角不大于 3°), 构建异质界面结构. 程序会提供各种可能晶格矢量的界面结构及该结构中界面两侧的原子数和总原子数,以供用户挑选合适的界面模型.

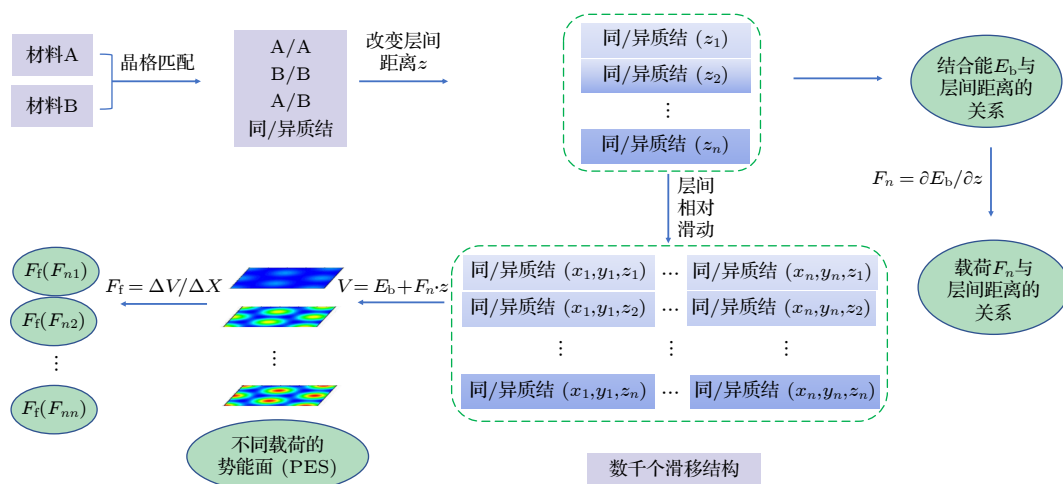


图1 二维材料界面摩擦学特性高通量计算流程示意图

Fig. 1. The schematic diagram showing the procedure of high-throughput calculation of the tribological property at the interface of two-dimensional materials.

## 2.2 模拟外加载荷

HJC<sup>2</sup>S 程序通过改变界面间距模拟外加载荷, 平衡间距对应零载荷. 首先以平衡间距的界面结构为初始结构, 设定步长并逐步减小间距, 生成系列间距界面结构并对每个间距界面结构建立文件夹. 然后批量提交计算系列间距界面结构的任务, 并计算系列间距下界面结合能  $E_b$ . 计算完成后, 程序会自动提取并保存结合能以及界面间距的数据, 进行数据处理并获得界面结合能随界面距离  $z$  变化的关系, 通过公式  $F_n = -\frac{\partial E_b}{\partial z}$  求解外加载荷和界面间距之间的对应关系, 自动绘制结合能随界面间距、载荷随界面间距变化的曲线图.

## 2.3 计算不同层间距离的势能面

HJC<sup>2</sup>S 程序通过固定界面一侧材料, 使另一侧材料在  $xy$  平面做相对横向滑动来模拟界面相对滑动过程. 界面被划分为  $M \times N$  的网格 (网格点数根据  $x, y$  方向长度设定), 每一个格点位置对应相对滑移中的一个界面结构. 格点划分的致密程度决定着势能面计算的精度. 为了获得系列层间距下的势能面, 对每一个层间距离建立文件夹, 每个文件夹下有  $M \times N$  个子文件夹, 对应不同的滑移位置. 计算完成后, 程序会提取每个结构对应的滑移位置坐标和能量数据, 保存并以此绘制系列层间距离下的势能面.

## 2.4 寻找最小能量路径

HJC<sup>2</sup>S 程序依据计算得到的势能面和最小能

量路径起点和终点, 采用 String 方法<sup>[44]</sup> 在势能面上寻找最小能量路径. String 方法是一种优秀的过渡态搜索算法, 该方法以提供的起点和终点为初始值, 确定两个势能极小值, 然后采样多条连接两个能量极小值的曲线, 通过构造曲线微分方程, 使曲线逐渐逼近最小能量路径. 确定最小能量路径后提取并输出路径位置坐标及能量, 绘制最小能量路径及其上的静横向力曲线.

## 2.5 计算平均摩擦力

HJC<sup>2</sup>S 程序将筛出特定载荷下势能面上的极值点, 选取邻近的最大值点和最小值点, 通过两点的坐标以及能量, 根据公式  $\langle F_f \rangle = \frac{\Delta V}{\Delta x}$  计算得到界面平均摩擦力, 其中  $\Delta V = V_{\max} - V_{\min}$  ( $V_{\max}$  为势能极大值,  $V_{\min}$  是势能极小值),  $\Delta x$  是  $V_{\max}$  和  $V_{\min}$  所在位置之间的距离. 程序自动计算系列外加载荷下的界面平均摩擦力  $\langle F_f \rangle$ , 输出外加载荷-平均摩擦力的对应数据并绘制外加载荷与界面平均摩擦力关系曲线.

## 3 计算方法

### 3.1 程序中涉及物理量的计算

HJC<sup>2</sup>S 程序采用如下公式计算界面结合能  $E_b$ :

$$E_b = E_{\text{total}} - E_{\text{up}} - E_{\text{down}}, \quad (1)$$

其中,  $E_{\text{total}}$  是特定层间距下滑移界面的总能量,  $E_{\text{up}}$ ,  $E_{\text{down}}$  分别是界面两侧材料的能量. 外加载荷



$F_n$ 与结合能 $E_b$ 之间满足关系<sup>[45]</sup>:

$$F_n = -\frac{\partial E_b}{\partial Z}. \quad (2)$$

程序由(1)式计算系列间距下界面结合能,由(2)式得到法向载荷与层间距的关系.

势能的计算公式如下:

$$V(x, y, F_n) = E_b(x, y, F_n) + F_n z(x, y, F_n) - V_0(F_n), \quad (3)$$

其中 $V(x, y, F_n)$ 和 $E_b(x, y, F_n)$ 为 $F_n$ 载荷下、 $(x, y)$ 位置处的势能和界面结合能, $z(x, y, F_n)$ 为 $F_n$ 载荷对应的界面间距, $F_n z(x, y, F_n)$ 为抵抗外加载荷 $F_n$ 所做的功, $V_0(F_n)$ 是 $F_n$ 载荷下势能面上的最小势能点,其计算公式如下:

$$V_0(F_n) = E_b(x_0, y_0, z(x_0, y_0, F_n)) + F_n z(x_0, y_0, F_n), \quad (4)$$

$E_b(x_0, y_0, z(x_0, y_0, F_n))$ 为零势能位置滑移体系的界面结合能, $F_n z(x_0, y_0, F_n)$ 为零势能位置处抵抗外加载荷 $F_n$ 的层间作用能, $(x_0, y_0)$ 为 $F_n$ 载荷下零势能位置坐标.

特定载荷下界面平均摩擦力 $\langle F_f \rangle$ 由如下公式<sup>[45]</sup>计算:

$$\langle F_f \rangle = \Delta V / \Delta x, \quad (5)$$

其中 $\Delta V$ 表示该载荷下最大滑移能垒,由势能最大值与最小值决定

$$\Delta V = V_{\max} - V_{\min}. \quad (6)$$

$\Delta x$ 表示势能最大值点与最小值点之间的距离.摩擦系数 $\mu$ 与平均摩擦力和载荷之间的关系为

$$\mu = \langle F_f \rangle / F_n. \quad (7)$$

### 3.2 本文采用的计算方法和设置

文章所有计算均采用基于密度泛函理论<sup>[40]</sup>的VASP程序包<sup>[41–43]</sup>进行.采用广义梯度近似(general gradient approximate, GGA)的Perdew-Burke-Ernzerhof(PBE)<sup>[46]</sup>方法计算电子交换关联能,采用平面投影缀加波赝势(projector augmented wave, PAW)方法<sup>[47]</sup>描述电子和离子之间相互作用,采用范德瓦耳斯色散修正方法(density functional dispersion correction)DFT-D3描述相邻层之间的范德瓦耳斯弱相互作用.在倒易空间中,电子波函数通过平面波基组扩展,平面波基组截断能设定为550 eV,能量和力的收敛精度分别设置为 $10^{-5}$  eV和0.02 eV/Å.在总能计算过程中,不弛豫原子位

置.布里渊区 $K$ 点网格取样采用Gamma方法, $K$ 网格大小根据具体模型由Vasppkit<sup>[48]</sup>生成.为了消除 $z$ 方向上周期性结构之间的相互作用,沿垂直方向添加了20 Å厚度的真空层.

## 4 结果与讨论

本文采用HJC<sup>2</sup>S程序计算了双层氮化硼(BN/BN)、双层石墨烯(Gr/Gr)、氢化氮化硼/氮化硼(H-BN/BN)和氟化氮化硼/氮化硼(F-BN/BN)的层间滑移摩擦行为.为了模拟不同载荷下的层间滑移摩擦行为,将两层之间层间距以步长0.1 Å逐步压缩,研究了层间距离为4.0—1.5 Å的Gr/Gr和层间距离为4.0—2.5 Å的BN/BN, H-BN/BN和F-BN/BN的势能面、界面摩擦力和摩擦系数.

### 4.1 不同载荷下双层氮化硼界面摩擦力

首先研究了BN/BN的界面摩擦行为,测试HJC<sup>2</sup>S程序的可靠性.图2(a), (b)分别为BN/BN处于Top(T)位置和Hollow(H)位置的俯视图和侧视图.Top位置结合能为29 meV/atom,层间距为3.39 Å,与Marom等<sup>[49]</sup>采用PBE+Vdw方法计算得到的BN/BN界面层间距(3.37 Å)吻合.采用2×2超胞模拟BN/BN界面层间相对滑移,将Top位置设置为初始位置,沿着 $xy$ 平面滑动距离设置为5 Å×5 Å,用于构建势能面的网格大小为0.2 Å×0.2 Å,第一布里渊区 $K$ 网格大小设为7×7×1.

界面结合能与层间距的关系是计算中最重要的一部分,该曲线拟合的精确度决定着计算结果的准确度.图3(a)展示了Top位置的BN/BN界面结合能随层间距的变化.随着层间距缩小,界面结合能逐渐变小,当层间引力达到最大值时,界面结合能达到最小值;之后,界面结合能开始增大,当界面结合能为0 eV时,引力和斥力达到平衡;之后,斥力在层间作用中起主导作用.通过改变BN/BN层间距来模拟载荷,根据(2)式得到载荷与层间距的关系.如图3(b)所示,随着BN/BN层间距减小,载荷不断增大.

图4(a)—(i)为0—8 nN载荷下BN/BN沿着 $xy$ 平面分布的势能.由于BN/BN结构本身的周期性,所以势能也呈现周期性分布.如图4所示,0 nN载荷下,BN/BN的势能面比较平滑,Top位

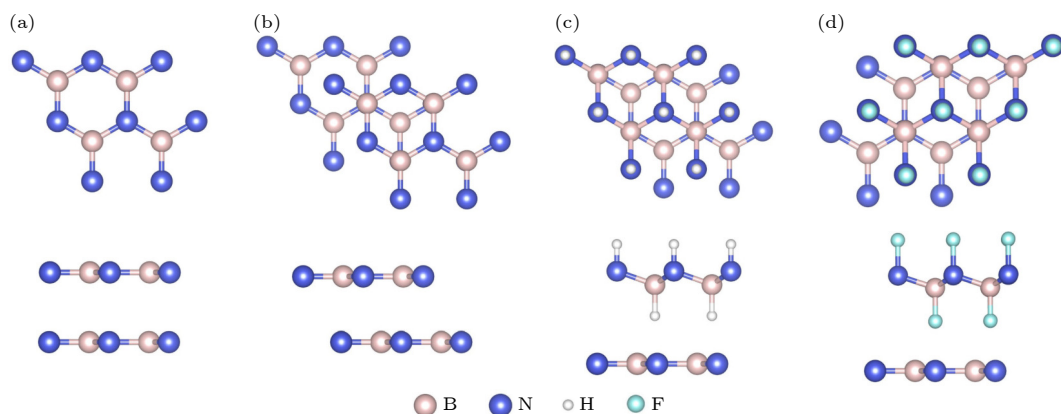


图2 BN/BN, H-BN/BN 和 F-BN/BN 双层体系原子结构的俯视图和侧视图 (a) Top 和 (b) Hollow 位置 BN/BN 的俯视图和侧视图; (c) H-BN/BN 和 (d) F-BN/BN 在 Hollow 位置的俯视图和侧视图

Fig. 2. Top and side views for atomic structures of BN/BN, H-BN/BN, and F-BN/BN bilayer. Top and side views of BN/BN bilayer in (a) Top and (b) Hollow positions. Top and side views of (c) H-BN/BN and (d) F-BN/BN bilayers in Hollow position.

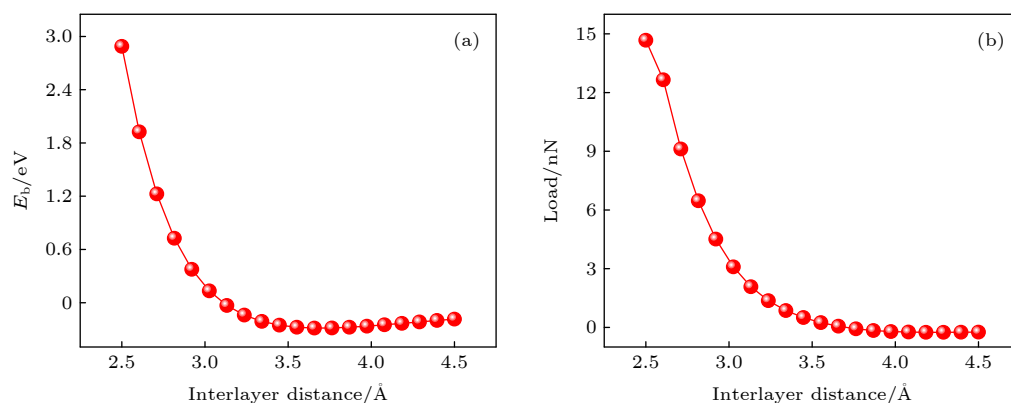


图3 BN/BN 位于 Top 位置的界面结合能和载荷随层间距的变化 (a) 结合能; (b) 载荷

Fig. 3. The variation of interlayer binding energy ( $E_b$ ) and load with interlayer distance for BN/BN bilayer at Top position: (a)  $E_b$  and (b) load.

置处势能最大, Hollow 位置处势能最小. 这是因为, 相较于 Hollow 位置, Top 位置的正对原子更多, 层间相互作用更强. 随着载荷增大, 抵抗负载的层间作用增大, 势能面起伏逐渐增大, 能垒也逐渐增大, 势能最大值和最小值对应的位置并未发生变化. 高势能起伏增大了滑移阻力及因摩擦耗散的能量, 根据 (5) 式, 平均摩擦力也在逐渐增大.

图4显示了各载荷下的最小能量路径(势能面上连接势能最小值点的路径中势能起伏最小的路径), 图5为 0—8 nN 载荷下最小能量路径上的能量变化曲线. 从图5可以看出, 由于结构的对称性, 能量随位移变化也具有周期性. 沿最小能量路径进行滑移时, 势能先增大后减小, 然后再重复此过程. 另外, 随着载荷的增大, 最小能量路径上的能垒逐渐增大, 即界面滑移的阻力增大, 从而导致更高的摩擦.

从图6(a)可以看出, 随着载荷增大, BN/BN 界面的平均摩擦力近似线性增大, 表现出类阿蒙顿定律的特征, 表明宏观摩擦力与载荷之间的关系扩展到了纳米尺度的 BN/BN 滑移界面. 从图6(b)可以看出, 当载荷从 1 nN 增大到 8 nN 时, BN/BN 滑移界面的摩擦系数从 0.17 降至 0.11. 因表面结构、环境、计算方法等不同, 测得的六方氮化硼界面的摩擦系数为 0.025—0.7. Martin 等<sup>[50]</sup>发现超高真空下 h-BN 与 h-BN 界面的摩擦系数为 0.7, 而在潮湿空气中的摩擦系数为 0.1. Wang 等<sup>[51]</sup>指出 h-BN 固体润滑剂的适用温度范围为 -184—538 °C, 相应的摩擦系数为 0.1—0.2. An 等<sup>[23]</sup>采用 DFT-LDA 泛函描述 BN/BN 界面的相互作用, 研究了 BN/BN 界面摩擦系数与载荷的变化关系, 他们指出, 当载荷从 1 nN 增大到 5 nN 时, 沿着  $x$  方向滑移摩擦系数从 0.1 下降至 0.025, 在 5—10 nN 载荷

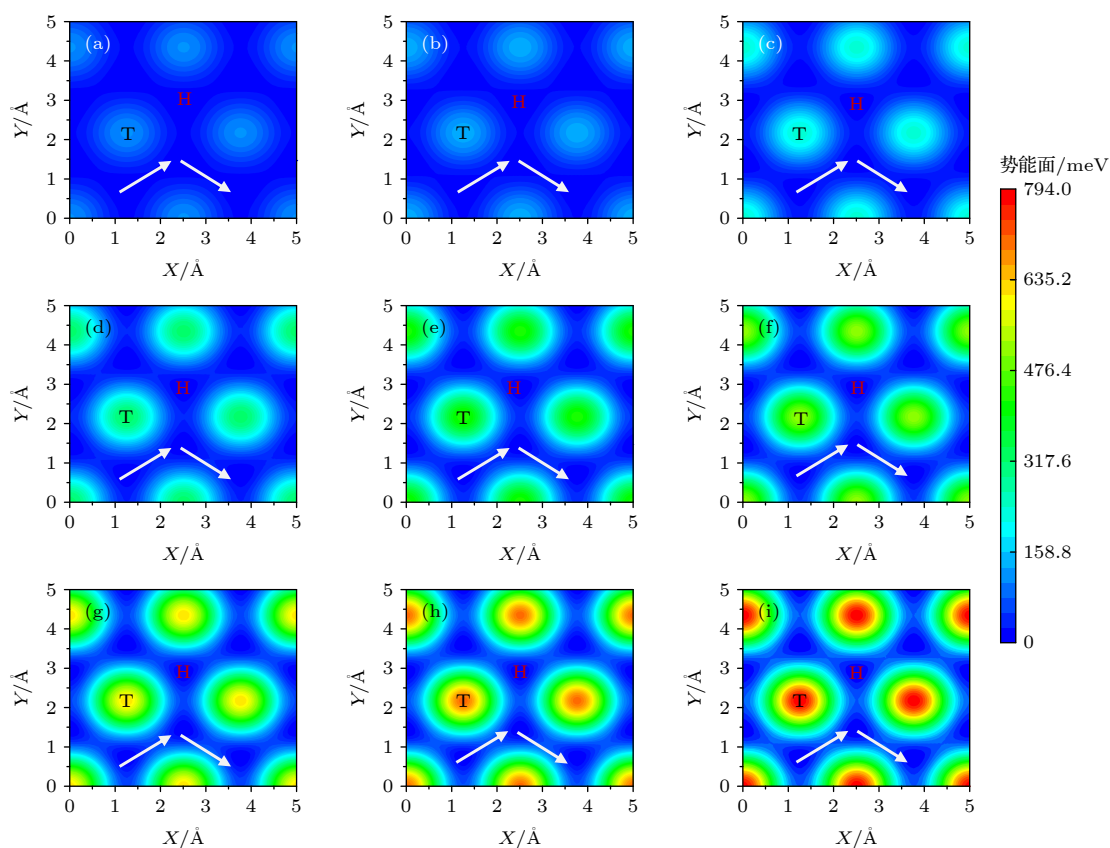


图 4 不同载荷下 BN/BN 的势能面 (a) 0 nN; (b) 1 nN; (c) 2 nN; (d) 3 nN; (e) 4 nN; (f) 5 nN; (g) 6 nN; (h) 7 nN; (i) 8 nN. T 和 H 分别表示 Top 和 Hollow 位置, 白色带箭头线代表最小能量路径

Fig. 4. Potential energy surface of BN/BN bilayer under normal load of (a) 0 nN, (b) 1 nN, (c) 2 nN, (d) 3 nN, (e) 4 nN, (f) 5 nN, (g) 6 nN, (h) 7 nN and (i) 8 nN. T and H present the Top and Hollow positions, respectively. The white lines with arrow represent the minimum energy path.

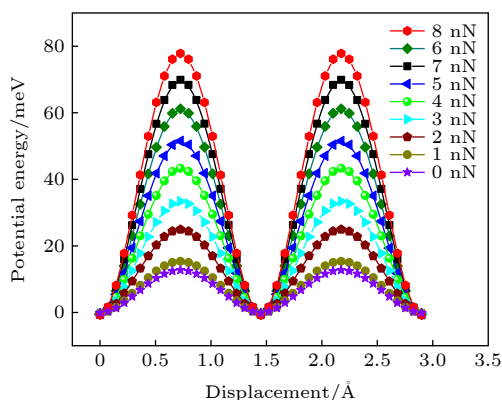


图 5 0—8 nN 载荷下 BN/BN 最小能量路径上势能的变化

Fig. 5. The variation of potential energy along the minimum energy path of BN/BN bilayer under 0–8 nN loads.

下, 摩擦系数从 0.025 上升到 0.13. 本文研究了不同载荷下 BN/BN 的势能面与摩擦力, 摩擦系数计算结果与已有研究结果一致.

## 4.2 不同载荷下双层石墨烯界面摩擦力

以 0.1 Å 步长将层间距离从 4 Å 压缩到 1.5 Å,

计算了系列层间距下双层石墨烯 (上下层均为 2 个原子) 之间的结合能, 得到结合能随层间距变化的关系, 根据 (2) 式得到载荷与层间距的关系, 以此模拟 0—13.5 nN 外加载荷. 将沿  $xy$  平面滑动距离设置为  $2.6 \text{ Å} \times 2.6 \text{ Å}$ , 网格大小设为  $0.2 \text{ Å} \times 0.2 \text{ Å}$ , 第一布里渊区  $K$  网格设为  $12 \times 12 \times 1$ . 计算了 1—13.5 nN 外加载荷下 Gr/Gr 的势能面, 结果如图 7 所示. 从图 7 可以发现, 当外加载荷为 1 nN 时, 势能面较为平坦, Top 位置势能最高, Hollow 位置势能最低. 随着载荷升高, 势能最大值先增大后减小. 当载荷达到 12 nN 时, 势能面发生了反转, 即原来高势能点 (Top 位置) 变为低势能点, 低势能点 (Hollow 位置) 变为高势能点, 势能面趋于平坦, 能垒很低. 随着载荷的进一步增大, 势能起伏再次逐渐增大.

在势能计算的基础上, 计算了 1.0—13.5 nN 外加载荷下 Gr/Gr 界面的平均摩擦力和摩擦系数. 图 8(a) 所示为平均摩擦力随载荷的变化曲线. 如图所示, 随着载荷升高, Gr/Gr 界面的平均摩擦力

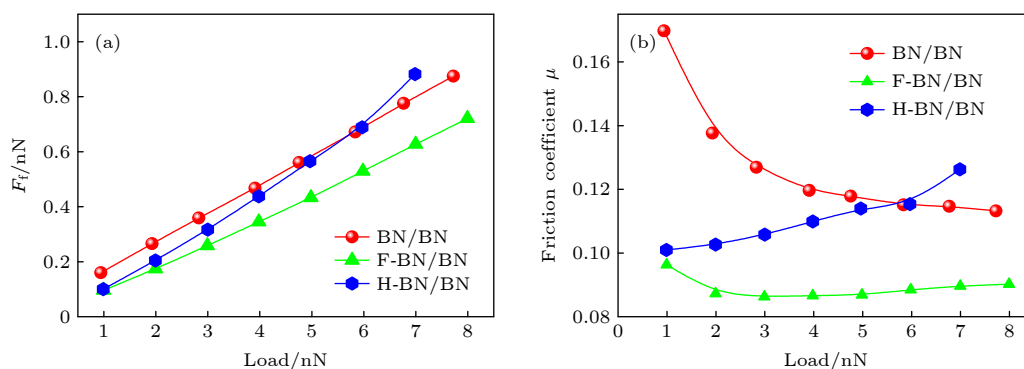


图 6 BN/BN, F-BN/BN, H-BN/BN 的平均界面摩擦力 ( $F_f$ ) 和摩擦系数 ( $\mu$ ) 随载荷的变化 (a) 平均摩擦力; (b) 摩擦系数

Fig. 6. The variation of friction force at the interface of BN/BN, F-BN/BN, and H-BN/BN bilayers with respect to the normal load: (a) Averaged interfacial friction ( $F_f$ ); (b) friction coefficient ( $\mu$ ).

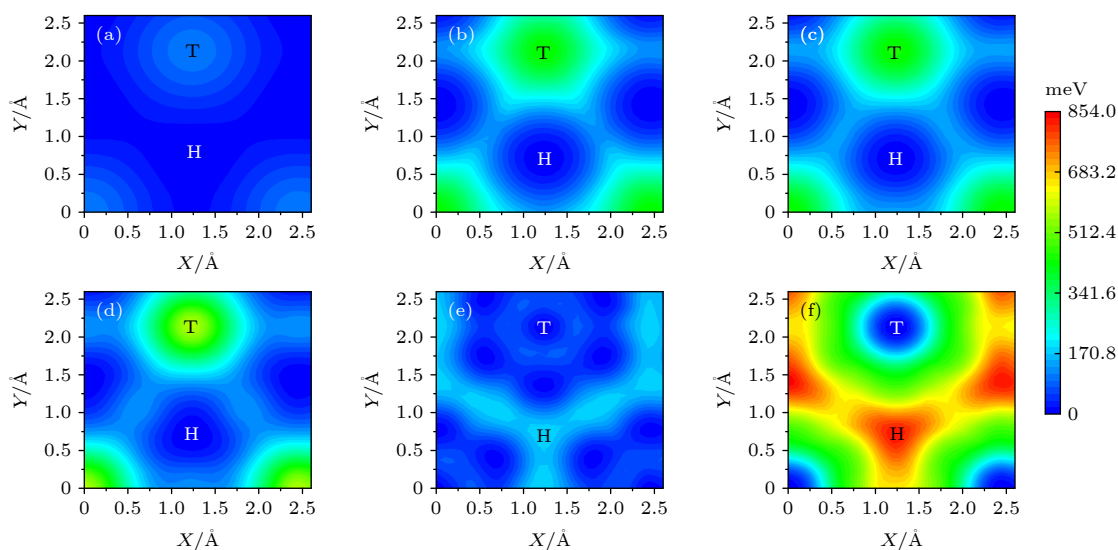


图 7 不同载荷下 Gr/Gr 的势能面 (a) 1 nN; (b) 4 nN; (c) 7 nN; (d) 10 nN; (e) 12 nN; (f) 13.5 nN. (a)–(d) 中的 H/T 对应最小/最大势能, 而 (e), (f) 中的 H/T 对应最大/最小势能

Fig. 7. Potential energy surface of graphene/graphene (Gr/Gr) bilayer under normal load of (a) 1 nN, (b) 4 nN, (c) 7 nN, (d) 10 nN, (e) 12 nN, and (f) 13.5 nN. T and H present the top and hollow positions, respectively. H/T in (a)–(d) is the position of minimum/maximum potential energy, whereas, T/H in (e), (f) is the position of minimum/maximum potential energy.

逐渐增大; 当载荷增大到 10 nN 时, 平均摩擦力开始下降, 直到载荷为 12 nN 时, 平均摩擦力达到极小值; 之后, 平均摩擦力随着载荷的增大再次逐渐增高. 图 8(b) 所示为 1.0–13.5 nN 外加载荷下 Gr/Gr 的界面摩擦系数. 从图中可以看出, 随着载荷的升高, 摩擦系数先减小后增大. 当载荷为 12 nN 时, 摩擦系数最小 (0.014), 这是因为 12 nN 下的势能面最平坦, 界面滑移需要克服的能垒最低, 表现出极低的摩擦系数.

本文计算的摩擦力随载荷变化的趋势成功复现了 Sun 等 [24] 的研究结果. 此外, 最小摩擦系数出现的层间距为 1.75 Å, 与 Zhang 等 [52] 得出的

极低摩擦现象发生的层间距 (1.78 Å) 相近, 与 Sun 等 [24] 得出的极低摩擦现象发生的层间距 (1.825 Å) 略有差距, 这是因为 Sun 等 [24] 是通过固定部分原子方法计算总能, 而本文采用了固定所有原子的方法计算总能, 本文计算方法可以节省计算资源并减少计算时间. Fan 等 [53] 在实验中测得的石墨烯的摩擦系数为 0.1–0.2, Wang 等 [27] 计算结果显示, 载荷为 1–9 nN 时石墨烯界面的摩擦系数为 0.05–0.225. 本文计算显示石墨烯界面摩擦系数为 0.014–0.14, 与文献 [53] 计算结果一致. 这些均证明了 HJC<sup>2</sup>S 程序和其采用算法研究界面摩擦行为的可靠性.



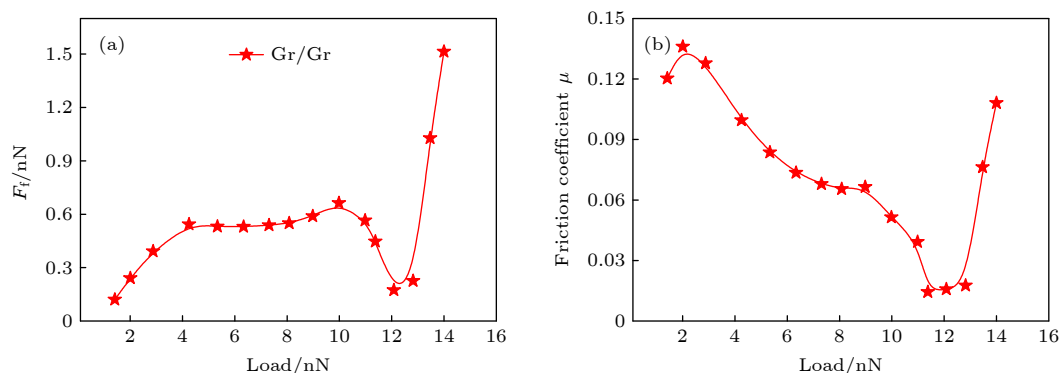


图 8 Gr/Gr 界面平均摩擦力和摩擦系数随载荷的变化 (a) 平均摩擦力; (b) 摩擦系数

Fig. 8. The variation of friction force at the interface of graphene/graphene (Gr/Gr) bilayers with respect to the normal load: (a) Averaged interfacial friction and (b) friction coefficient.

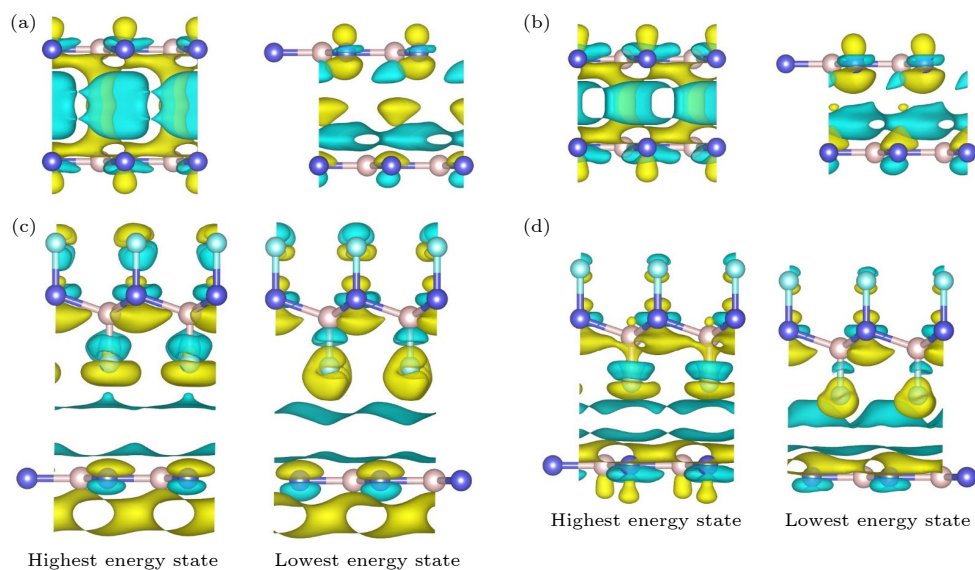


图 9 BN/BN 和 F-BN/BN 的最高和最低势能态在 0 nN 和 8 nN 载荷下的差分电荷密度 (a) BN/BN, 0 nN; (b) BN/BN, 8 nN; (c) F-BN/BN, 0 nN; (d) F-BN/BN, 8 nN. 黄色代表电子聚集, 蓝色代表电子损失; 左边和右边的图分别对应最高和最低势能态; 图 (a) 和 (c) 中的等值面设置为  $0.00006e/\text{Bohr}^3$ ; 图 (b) 和 (d) 中的等值面设置为  $0.0003e/\text{Bohr}^3$

Fig. 9. Differential charge density of BN/BN and F-BN/BN bilayer at the highest and lowest potential energy state under 0 nN and 8 nN loads. BN/BN bilayer under (a) 0 nN and (b) 8 nN load, F-BN/BN bilayer under (c) 0 nN and (d) 8 nN loads. The yellow color represents electron aggregation, and the blue color represents electron dissipation. The isosurface value in figure (a) and (c) is set to  $0.00006e/\text{Bohr}^3$ ; the isosurface value in figure (b) and (d) is set to  $0.0003e/\text{Bohr}^3$ .

### 4.3 表面改性调控 BN/BN 界面摩擦力

图 2(c), (d) 分别为 H—BN/BN 和 F—BN/BN 的俯视图与侧视图. H—BN 和 F—BN 中 B—H, N—H, B—F, N—F 键长分别为 1.20, 1.03, 1.36, 1.44 Å. H—BN/BN 和 F—BN/BN 位于 Top 位置平衡结构的层间距分别为 2.91 Å 和 3.20 Å,  $xy$  平面晶格常数为 2.54 Å 和 2.57 Å. 采用 HJCS 程序, 构建了势能面网格, 大小均为  $5 \text{ Å} \times 5 \text{ Å}$ , 网格尺寸为  $0.2 \text{ Å} \times 0.2 \text{ Å}$ , 计算了 0—8 nN 载荷下 H—BN/BN 和 F—BN/BN 的势能面及界面平均

摩擦力和摩擦系数.

图 6(a) 为 BN/BN, F—BN/BN 和 H—BN/BN 滑移界面平均摩擦力随载荷变化的曲线, 如图所示, 1—8 nN 载荷下, 3 种滑移界面平均摩擦力均随载荷增大而增大. 图 6(b) 所示为 3 种滑移界面摩擦系数随载荷变化的曲线. 随着载荷增大, H—BN/BN 界面摩擦系数增大, F—BN/BN 界面摩擦系数先减小后缓慢升高, 摩擦系数值为 0.08—0.10. 当载荷小于 6 nN 时, H—BN/BN 滑移界面的摩擦系数小于 BN/BN 滑移界面的摩擦系数; 当载荷大于 6 nN 时, H—BN/BN 滑移界面的摩擦系数大



于 BN/BN 滑移界面的摩擦系数. 可以明显地看出 F—BN/BN 滑移界面的平均摩擦力和摩擦系数均小于 BN/BN 和 H—BN/BN, 表明表面氟化显著降低了摩擦.

电荷转移是影响摩擦力的主要因素<sup>[54–56]</sup>, 为了探析氟化降低 BN 界面摩擦的内在原因, 计算了 BN/BN 以及 F-BN/BN 的电荷分布. 图 9 为 0 nN 和 8 nN 载荷下 BN/BN 和 F-BN/BN 在势能最高位置和最低位置处的差分电荷密度图. 由于 F 原子的电负性较强, F-BN/BN 层间电子聚集在 F 原子附近, 层间电荷转移较小; BN/BN 层内电子结合能力较弱, 层间电荷转移较为明显. 从图 9 可以看出, 0 nN 和 8 nN 载荷下, BN/BN 由 Top 位置 (势能最大值点) 滑移到 Hollow 位置 (势能最小值点) 时, 电荷分布变化显著. 氟化后 BN 界面从高势能点滑移到低势能点位置时, 电荷分布无明显变化, 所以滑移过程中的能垒较低, 层间摩擦小, 因此降低了 BN 界面摩擦.

#### 4.4 方法的适用性与局限性

DFT 方法可以深入到量子尺度, 从电子分布的角度解释摩擦现象. 尽管该方法已经被广泛的用来预测层间滑移的摩擦系数, 但该方法仍存在一些局限性. 首先, 在层间相对滑动的过程中, 本文将上下层均设为刚性, 并未考虑层间弯曲的影响. 其次, 本文通过改变计算体系的堆叠构型以模拟层间滑动, 因此计算得到的实际结果本质是静摩擦, 而非动摩擦. 另外, DFT 计算本身具有局限性, 如在计算过程中无法直接引入温度, 因此该方法并未考虑温度的影响; 计算通常是对数十个原子进行, 无法对几百个原子进行计算.

## 5 结 论

报道了一个基于第一性原理方法计算二维材料层间滑移摩擦行为的高通量、自动化计算程序. 该程序实现了同、异质结界面自动化建模、计算任务自动生成及提交、智能提取并存储计算结果、自动处理数据并计算摩擦力和摩擦系数, 极大地缩短了建模和处理数据的时间. 采用此程序模拟计算了外加载荷下双层氮化硼层间滑移的摩擦, 得到的摩擦系数与实验和已有计算结果一致, 同时研究了双层石墨烯层间滑移的摩擦力和摩擦系数, 计算结果

与文献结果相吻合, 证明了该程序计算结果的可靠性. 此外, 我们研究了表面改性对双层氮化硼层间滑移摩擦的影响, 结果表明表面氟化可以很好地降低摩擦, 提供了降低六方氮化硼界面摩擦的表面改性方法.

## 参考文献

- [1] Holmberg K, Andersson P, Nylund N O, Makela K, Erdemir A 2014 *Tribol. Int.* **78** 94
- [2] Carpick R W 2006 *Science*. **313** 184
- [3] Zhuang C Q, Liu L 2017 *Aip Adv.* **7** 085103
- [4] Berman D, Erdemir A, Sumant A V 2018 *Acs Nano*. **12** 2122
- [5] Yuan J H, Yang R, Zhang G Y 2022 *Nanotechnology* **33** 102002
- [6] Marchetto D, Feser T, Dienwiebel M 2015 *Friction* **3** 161
- [7] Kimura Y, Wakabayashi T, Okada K, Wada T, Nishikawa H 1999 *Wear* **232** 199
- [8] Dominguez-Meister S, Rojas T C, Brizuela M, Sanchez-Lopez J C 2017 *Sci. Technol. Adv. Mat.* **18** 122
- [9] Zhao X Y, Hamilton M, Sawyer W G, Perry S S 2007 *Tribol. Lett.* **27** 113
- [10] Schirmeisen A, Jansen L, Holscher H, Fuchs H 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 607
- [11] Tshiprut Z, Zelner S, Urbakh M 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 136102
- [12] Weiss M, Majchrzycki L, Borkowska E, Cichomski M, Ptak A 2021 *Tribol. Int.* **162** 107133
- [13] Luan B Q, Robbins M O 2005 *Nature* **435** 929
- [14] Riedo E, Pallaci I, Boragno C, Brune H 2004 *J. Phys. Chem. B* **108** 5324
- [15] He X, Liu Z, Ripley L B, Swensen V L, Griffin-Wiesner I J, Gulner B R, McAndrews G R, Wieser R J, Borovsky B P, Wang Q J, Kim S H 2021 *Tribol. Int.* **155** 106780
- [16] Ru G L, Qi W H, Tang K W, Wei Y R, Xue T W 2020 *Tribol. Int.* **151** 106483
- [17] Ru G L, Qi W H, Wei Y R, Tang K W, Xue T W 2021 *Tribol. Int.* **159** 106974
- [18] Dong Y, Perez D, Gao H, Martini A 2012 *J. Phys-Condens Mat.* **24** 265001
- [19] Zwörner O, Holscher H, Schwarz U D, Wiesendanger R 1998 *Appl. Phys. A-Mater.* **66** S263
- [20] Fajardo O Y, Barel I, Urbakh M 2014 *J. Phys-Condens Mat.* **26** 315002
- [21] Mate C M, McClelland G M, Erlandsson R, Chiang S 1987 *Phys. Rev. Lett.* **59** 1942
- [22] Mo Y F, Turner K T, Szlufarska I 2009 *Nature* **457** 1116
- [23] An X H, Yao H J, Ma F, Lu Z B 2015 *Rsc Adv.* **5** 106239
- [24] Sun J H, Zhang Y N, Lu Z B, Li Q Y, Xue Q J, Du S Y, Pu J B, Wang L P 2018 *J. Phys. Chem. Lett.* **9** 2554
- [25] Cheng Z W, Sun J H, Zhang B Z, Lu Z B, Ma F, Zhang G A, Xue Q J 2020 *J. Phys. Chem. Lett.* **11** 5815
- [26] Wang K B, Li H, Guo Y F 2021 *Materials* **14** 4717
- [27] Wang J J, Wang F, Li J M, Wang S J, Song Y L, Sun Q, Jia Y 2012 *Tribol. Lett.* **48** 255
- [28] Gao W, Tkatchenko A 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 096101
- [29] Zhuang C Q, Liu L 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 114302
- [30] Ko J H, Kwon S, Byun I S, Choi J S, Park B H, Kim Y H, Park J Y 2013 *Tribol. Lett.* **50** 137
- [31] Qu C Y, Wang K Q, Wang J, Gongyang Y J, Carpick R W,

- [32] Ruan X, Shi J, Wang X, Wang W Y, Fan X, Zhou F 2021 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **13** 40901
- [33] Liao M Z, Nicolini P, Du L J, Yuan J H, Wang S P, Yu H, Tang J, Cheng P, Watanabe K, Taniguchi T, Gu L, Claerbout V E P, Silva A, Kramer D, Polcar T, Yang R, Shi D X, Zhang G Y 2022 *Nat. Mater.* **21** 47
- [34] Li S Z, Li Q Y, Carpick R W, Gumbsch P, Liu X Z, Ding X D, Sun J, Li J 2016 *Nature* **539** 541
- [35] Filippov A E, Dienwiebel M, Frenken J W M, Klafter J, Urbakh M 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 046102
- [36] Zhang J, Bai Y, An L, Zhang B, Zhang J, Yu Y, Wang C M 2019 *J. Appl. Phys.* **126** 035104
- [37] Cheng Z W, An X H, Wang J J, Zhang B Z, Lu Z B, Zhang G G 2020 *Tribol. Int.* **141** 105961
- [38] Wang J J, Li J M, Fang L L, Sun Q, Jia Y 2014 *Tribol. Lett.* **55** 405
- [39] Restuccia P, Levita G, Wolloch M, Losi G, Fatti G, Ferrario M, Righi M C 2018 *Comp. Mater. Sci.* **154** 517
- [40] Gonze X, Ghosez P, Godby R W 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 294
- [41] Kresse G 1995 *J. Non-Cryst. Solids* **193** 222
- [42] Kresse G, Furthmüller J 1996 *Comp. Mater. Sci.* **6** 15
- [43] Kresse G, Furthmüller J 1996 *Phys. Rev. B* **54** 11169
- [44] Weinan E, Ren W Q, Vanden-Eijnden E 2002 *Phys. Rev. B* **66** 052301
- [45] Zhong W, Tomanek D 1990 *Phys. Rev. Lett.* **64** 3054
- [46] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1396
- [47] Kresse G, Joubert D 1999 *Phys. Rev. B* **59** 1758
- [48] Wang V, Xu N, Liu J C, Tang G, Geng W T 2021 *Comput. Phys. Commun.* **267** 108033
- [49] Marom N, Bernstein J, Garel J, Tkatchenko A, Joselevich E, Kronik L, Hod O 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 046801
- [50] Martin J M, Lemogne T, Chassagnette C, Gardos M N 1992 *Tribol. T.* **35** 462
- [51] Wang W, Xie G X, Luo J B 2018 *Friction* **6** 116
- [52] Zhang B Z, Zhang G G, Cheng Z W, Ma F, Lu Z B 2019 *Appl. Surf. Sci.* **483** 742
- [53] Fan K, Chen X Y, Wang X, Liu X K, Liu Y, Lai W C, Liu X Y 2018 *Acs Appl. Mater. Interfaces* **10** 28828
- [54] Cahangirov S, Ciraci S, Ozcelik V O 2013 *Phys. Rev. B* **87** 205428
- [55] Li Q Y, Liu X Z, Kim S P, Shenoy V B, Sheehan P E, Robinson J T, Carpick R W 2014 *Nano Lett.* **14** 5212
- [56] Wolloch M, Levita G, Restuccia P, Righi M C 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 026804

# High-throughput calculation of interfacial friction of two-dimensional material\*

Cui Zi-Chun<sup>1)</sup> Yang Mo-Han<sup>2)</sup> Ruan Xiao-Peng<sup>1)</sup> Fan Xiao-Li<sup>1)†</sup>  
 Zhou Feng<sup>1)3)</sup> Liu Wei-Min<sup>1)3)</sup>

1) (*Center of Advanced Lubrication and Seal Materials, School of Material Science and Engineering, Northwestern Polytechnic University, Xi'an 710072, China*)

2) (*Queen Mary University of London Engineering School, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China*)

3) (*State Key Laboratory of Solid Lubrication, Lanzhou Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*)

( Received 24 August 2022; revised manuscript received 11 October 2022 )

## Abstract

Friction generally occurs in the relative motion or the contact interface with the trend of relative motion, which impedes the relative motion and produces energy loss. Micro-scale friction is different from the macro-scale friction due to surface effects and other factors. It is necessary to study the friction behavior on a nano-scale. First-principles method is an important way to study and understand friction on a nano-scale. Nevertheless, the constructing of nearly a thousand models and the processing of a large number of data are very time consuming. In this paper, we establish a high-throughput computational program based on the first-principles method to study the interfacial friction of two-dimensional materials. The program realizes modeling, submitting computation tasks, multi-task concurrent calculation, data collection and processing, and image rendering of calculation results. All of these are done in batch automatically, which greatly saves researchers' time. In this work, this program is used to simulate the normal load by changing the distance between layers and calculate the potential energy surface of BN/BN and graphene/graphene bilayer sliding systems at a series of interlayer distances, as well as the interlayer friction forces and friction coefficients. The study finds that with the decrease of the interlayer distance, the averaged friction force at BN/BN interface increases approximately linearly, and the friction coefficient is in a range of 0.11–0.17. The friction force at graphene/graphene interface first increases, then decreases, and increases again. The friction coefficient reaches a minimum value (0.014) under a load of 12 nN, and these results are consistent with the previous results, verifying the reliability of the calculation program. In addition, we investigate the effect of surface hydrogenation and fluorination on the tribological property of the BN bilayer and find that the friction at the fluorinated BN/BN interface decreases, which is attributed to the smaller charge transfer at interface. Although the high-throughput calculation method realizes the automation and high-throughput calculation of tribological property at solid interface, there are still some limitations. Firstly, the effect of interlaminar bending is not considered in the process of interlaminar relative sliding. Secondly, the essence of the calculation result is static friction, rather than dynamic friction. In addition, the method does not consider the influence of temperature.

**Keywords:** first-principles method, high-throughput calculation, potential energy surface, friction coefficient

**PACS:** 68.35.Af, 71.15.Mb

**DOI:** 10.7498/aps.72.20221676

\* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2018YFB0703800), the Key Project of Natural Science Fund of Shaanxi Province, China (Grant No. 2021JZ-07), and the Polymer Electromagnetic Functional Materials Innovation Team of Shaanxi Sanqin Scholars, China.

† Corresponding author. E-mail: [xlfan@nwpu.edu.cn](mailto:xlfan@nwpu.edu.cn)

## 高通量计算二维材料界面摩擦

崔子纯 杨莫涵 阮晓鹏 范晓丽 周峰 刘维民

## High-throughput calculation of interfacial friction of two-dimensional material

Cui Zi-Chun Yang Mo-Han Ruan Xiao-Peng Fan Xiao-Li Zhou Feng Liu Wei-Min

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 026801 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20221676

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221676>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

磁制冷材料 $\text{LaFe}_{11.5}\text{Si}_{1.5}$ 基合金成分与磁相变温度关系的高通量计算

High-throughput computation on relationship between composition and magnetic phase transition temperature of  $\text{LaFe}_{11.5}\text{Si}_{1.5}$ -based magnetic refrigeration materials

物理学报. 2021, 70(20): 207501 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211085>

$\text{C}^+ + \text{H}_2$ 反应的动力学研究: 基于一个新构建的势能面

Dynamics of  $\text{C}^+ + \text{H}_2$  reaction based on a new potential energy surface

物理学报. 2022, 71(9): 093402 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212241>

薄层剪切二元颗粒分离过程动力学特性分析

Analysis of dynamic characteristics of two-component granular mixture segregation in thin shear cell

物理学报. 2019, 68(16): 164703 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190322>

基于新 $\text{CH}_2\text{O}$ 势能面的 反应量子波包动力学

Wave packet quantum dynamics of reaction based on new  $\text{CH}_2\text{O}$  surface

物理学报. 2020, 69(8): 083401 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200132>

三乙胺分子构象与红外光谱的理论研究

Theoretical studies on molecular conformers and infrared spectra of triethylamine

物理学报. 2022, 71(10): 103601 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220123>

双磁性中心内嵌富勒烯 $\text{Y}_2\text{C}_2@\text{C}_{82}-\text{C}_2(1)$ 中的超快自旋动力学行为

Ultrafast spin dynamics in double-magnetic-center endohedral fullerene  $\text{Y}_2\text{C}_2@\text{C}_{82}-\text{C}_2(1)$

物理学报. 2019, 68(2): 023101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181887>