

单晶铜纳米压痕的准连续介质法

杨倚寒, 赵宏伟, 张霖, 刘宏达, 郭文朝, 王晓军

(吉林大学 机械科学与工程学院, 长春 130022)

摘要: 本文采用了基于准连续介质理论的多尺度方法 (Quasicontinuum method) 模拟了面心立方单晶金属铜的纳米压痕过程, 研究了其初始塑性变形行为, 从原子级别追踪位错的形核与发散现象, 并根据位移场、应力场等云图分析了材料加载过程中的实时变化; 并研究了纳米压痕过程中不同晶面下 (分别为 (111), (-110), (001), 不同加载方向下 (分别为 [-110], [111], [110]) 呈现的晶向效应, 模拟压痕过程得到了载荷-位移, 应变能-位移响应曲线, 结合曲线从微观角度分析了材料在不同晶面下加载的变形机理。分析结果表明, 在 (111) [-110] 取向向下加载, 加载方向垂直于密排面, 该情况下加载最困难, 材料的硬度最大; 在 (001) [110] 取向向下加载, 压头下压方向与密排面呈一定角度, 该情况下加载最容易, 材料的硬度最小; 在 (-110) [111] 取向向下加载, 压头加载方向平行于密排面, 加载比较容易, 材料的硬度较大。

关键词: 纳米压痕; 准连续介质方法; 晶体取向; 位错成核; 硬度

中图分类号: TG501.1

Quasicontinuum simulation of the single-crystal copper in nanoindentation

Yang Yihan, Zhao Hongwei, Zhang Lin, Liu Hongda, Guo Wenchao, Wang Xiaojun
(College of Mechanical Science and Engineering, Jilin University, Changchun 130022)

Abstract: The nano-indentation process of FCC Cu is studied using the quasicontinuum method. The mechanism of initial deformation in indentation process is given and mechanism under different crystal orientations ((111)[-110], (001)[110], (-110)[111]) was analyzed. The nucleation and emission of dislocation is tracked at atomic level and the change in the indentation process is analysed using displacement field and stress field. Moreover, the material deformation mechanism under different crystal orientation is investigated by the loading-displacement curve and the energy-displacement got after the simulation. The results show while the crystal orientation of material is set at (111)[-110], in which the indentation direction is perpendicular to the close-arranged plane, loading is most difficult and the hardness reaches the maximum. Under the (001)[110] orientation, in which the indentation direction is at some degrees inclined to the close-arranged plane, loading is most easiest and the hardness is at minimum. Under the (-110)[111] orientation, in which the indentation direction is parallel to the close-arranged plane, loading is easy and the hardness is large.

Key words: Nano-indentation; Quasicontinuum method; Crystal orientation; Dislocation nucleation; Hardness

0 引言

由于铜具有较高的抗电迁移能力和高电导率, 所以它广泛应用于集成电路和微电子仪器的互连体。随着铜互连体的尺寸逐渐接近于纳米尺度, 它的力学性能已明显不同于块体材料, 故对纳米级尺度下的铜的力学性能的研究有着重要的理论和实际应用价值。在微纳米尺度下的加工中, 尺寸效应、表面效应以及纳米尺度下物质离散性作用更加明显, 适用于宏观尺寸的机械加工机理已经不再适用^[1], 需要一种基于微观力学的理论对纳米加工进行合理的解

作者简介: 杨倚寒 (1990), 女, 硕士, 分子动力学

通信联系人: 赵宏伟 (1976—), 男, 博士, 教授。主要研究方向: 原位力学测试技术与仪器、智能/仿生/精密机械、超精密加工等。E-mail: hwzhao@jlu.edu.cn

释。有限元方法在传统宏观系统连续介质模型的模拟中,显示了明显的优势与有效性,但将其网格划分到原子级别时,基于连续介质理论的控制方程会导致显著的误差,因此有限元方法不适合用作微纳尺度的数值模拟工具^[2]。分子动力学方法(MD)由于建模简单、容易编程等优点而得到了迅速地发展,被用于研究材料的微观力学特性、纳米切削/磨削等方面的数值模拟,在解释微观现象方面起到了不小的作用,但受到计算机硬件水平的限制,目前的分子动力学仿真都局限于数十纳米的尺度范围内^[3]。所以,将分子动力学的模拟范围进行拓展,研究纳米与亚微米尺度材料的特性,建立其与连续介质模型的有机联系并实现跨原子—连续介质尺度的光滑过渡,就成为当前研究的热点问题^[4]。

Tadmor 和 Ortiz^[5]等人成功结合了有限元与分子动力学模拟,建立了准连续介质法(Quasicontinuum Method),这种方法利用分子动力学中的势函数取代有限元中的本构关系,即在模拟一个原子系统的同时,耦合连续介质。在确保计算精度的同时大大提高计算效率,使得对超大规模原子系统物理、力学行为的数值模拟成为现实^[6]。QC 方法的创始人 Tadmor 等^[7]应用 QC 模拟技术研究了单晶铝的二维纳米压痕过程。Shenoy 等^[8]采用 QC 方法,研究了矩形平压头下的位错核形成过程与形核条件,推导得到了材料发生位错形核的临界载荷。Smith 等^[9-10]应用扩展的局部 QC 方法,模拟研究了单晶硅的纳米压痕过程,分析了其在加载过程中的相变,并将模拟得到的载荷—位移曲线与单晶硅纳米压痕实验得到的结果进行了对比。曾凡林等^[11]模拟了单晶镍工件的纳米压痕过程,研究了其初始塑性变形行为与位错形核/发射机制。单德彬等^[12]则研究了单晶铜纳米压痕过程中,工件表面台阶对位错发射临界载荷的影响。

本文基于准连续介质法,建立了纳米加工单晶铜的压痕模型,从位错形核、演化的角度分析了压痕过程中加载载荷,材料应变能及纳米硬度随压痕深度变化的趋势,并对不同晶面下纳米压痕模拟的实验结果进行了比较分析。

1 纳米压痕多尺度模型的建立

如图 1 所示,建立了单晶铜纳米压痕的 QC 仿真模型。在纳米压痕实验中通常采用金刚石压头,由于金刚石的硬度远大于单晶铜,所以模拟中将金刚石压头视为刚体,不考虑压头的变形与磨损。在压痕实验中常用的是尖压头,在加载时材料的局部应力大小和分布都在不断发生变化,但对于绝对刚性的平头压痕实验,受压材料的应力分布基本不变而应力大小随下压载荷变化,同时不需要考虑接触与摩擦^[13]。因此,模拟中采用刚性矩形压头。压头宽度 $W=10\text{\AA}$,沿(111)面[-110]方向压入单晶铜工件,选择这个方向压入工件是因为该方向有利于观察位错形核和发散现象。

工件厚度 $H=1000\text{\AA}$,宽度 $L=2000\text{\AA}$,Z 轴无限长,取周期性边界条件。工件左边和右边的边界保持自由,底部为刚性衬底,压头每步下移 0.2\AA ,然后执行能量最小化。由于压头宽度仅是工件宽度的 $1/200$,而最大下压深度也只是工件厚度的 $1/100$,这样就可以消除边界条件对模拟结果的影响。该模型比常规分子动力模拟的模型大一个数量级,但通过 QC 算法,大大减少了模拟时需要处理的原子数目,如图 2 所示。对于尺寸为 $0.2\mu\text{m}\times 0.1\mu\text{m}$ 的单晶 Cu 大规模原子系统,需要处理的原子数目仅有几千个,而如果完全采用分子动力学计算,至少需要 130 万个原子和 400 万的自由度,计算量十分巨大,需要在并行机上运算^[9]。可见采用准连续介质法(QC)进行原子模拟,能够在保证计算精度的同时大大提高计算效率,整个模拟过程在普通的 PC 机上只要数个小时就能完成。

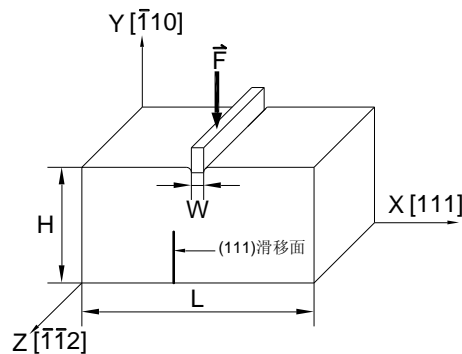


图1 单晶铜纳米压痕几何模型

Fig.1 Geometric model of single crystal copper of nanoindentation

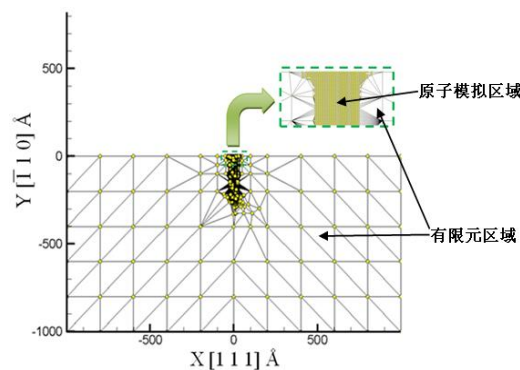


图2 单晶铜纳米压痕的网格自适应划分

Fig.2 Adaptive mesh division of single crystal copper of nanoindentation

2 模拟结果与分析

基于多尺度仿真的 QC，相对分子动力学方法，采用了很少的原子数模拟了相对较大的体积，但由于其算法并不高效，计算时间在很大程度上依赖于计算机硬件的好坏，限于设备水平，本文共模拟了 160 步。下面将对仿真结果进行讨论分析。

2.1 纳米压痕过程中的弹塑性变形机理分析

已经有实验和理论分析证明：加载过程中的载荷突降是由于压头下方的工件材料发生了位错形核现象^[14-16]。由于 QC 能够输出位移云图、应力云图等图形结果，便可以从原子级别分析材料微观变形中的位错形核与发射现象。

图 3 显示了单晶铜纳米压痕过程的载荷—位移曲线，为分析方便，列出了图上各标示点对应的载荷位移别为：A 点（4.0 Å）、B 点（4.2 Å）、C 点（5.0 Å）、D 点（6.8 Å）、E 点（7.2 Å）。由图可见，在整个加载过程中载荷—位移曲线出现多次的载荷波动，如 AC 段、DE 段、FH 段，呈现明显的不连续性，这与 Gouldstone 等^[17]的实验结果一致。从图形可以看出，OA 段是加载的初始阶段，在此阶段曲线接近于线性，表明在 OA 阶段材料处于弹性状态。但是当加载进行到 A 点时，载荷发生突降，表明这时的外载荷已经达到晶体位错形核的临界载荷，晶体开始表现为非弹性，晶体内部出现位错形核。A 点对应着载荷—位移曲线发生第一次突降，到达 B 点，经过轻微的波动后到达 C 点，之后的 CD 段载荷又开始明显上升，这是由于已生成的位错向下运动，而新生成的位错又开始位错形核，材料进一

步硬化变形，如此循环往复。

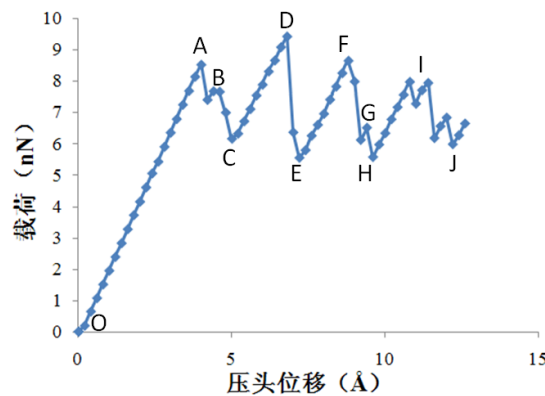


图 3 纳米压痕过程中载荷-位移曲线

Fig.3 Load - displacement curve in process of nanoindentation

图 4 和图 5 分别为 A 点载荷突降前后的方向位移云图与 Von Mises 应力云图，图 4 中的小黑点表示代表原子，可见当载荷达到临界载荷时，材料内部的原子排列与应力分布都发生了显著的变化。由图 4 (a) 和图 5 (a) 可见，在 A 点载荷突降之前，随着压头的不断加载，在压头正下方的工件亚表面区域发生局部应力集中，工件材料在加载作用下持续地发生弹性变形，此阶段随着压深的不断增加开始位错形核。但当加载进行到 4.2Å 时，在 A 点载荷突降之前形成的应力核心发生分解，并且应力幅值增大，在局部高应力驱动下位错完成形核并迅速分解为两个向相反方向运动的 Shockley 分位错：一个向材料表面运动，而另一个则向材料内部扩展，同时压头两侧的工件原子产生了较大的位移变化，表明材料进入塑性变形阶段，如图 4 所示。这与美国麻省理工大学 Gouldstone 等^[18]通过泡筏模型得出的结论一致，从而验证了 QC 模拟的有效性。

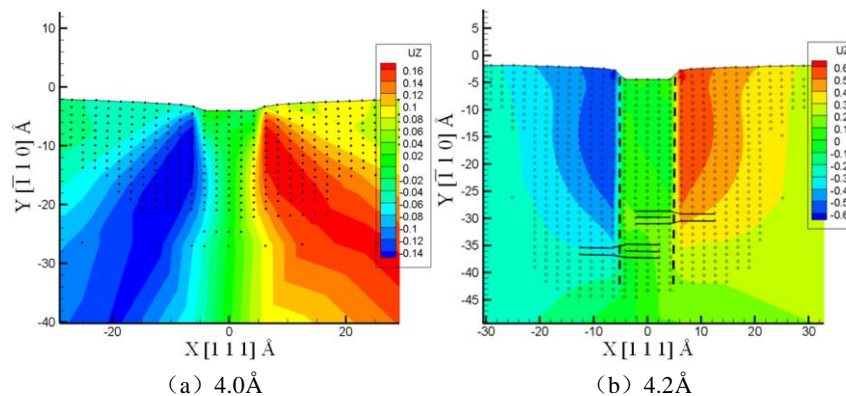


图 4 A 点载荷突降前后的 $[-1-12]$ 方向位移云图

Fig.4 $[-1-12]$ Direction displacement contours before and after load dump at the A point

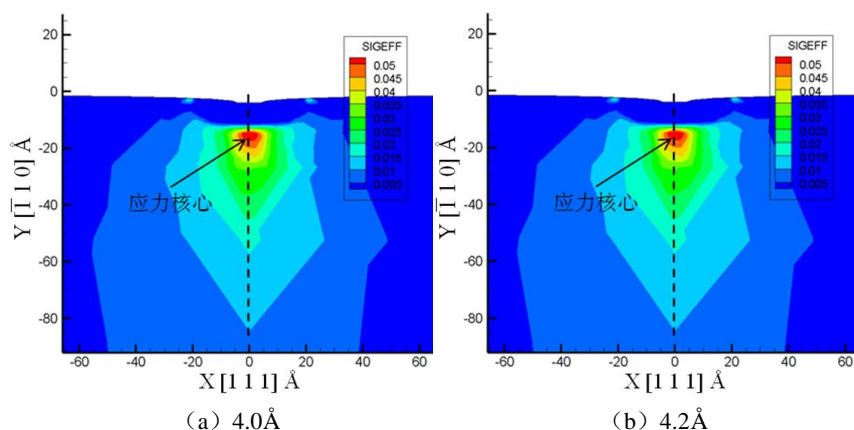


图5 A点载荷突降前后的 Von Mises 应力云图

Fig.5 Von Mises before and after load dump at the A point

随着加载的进行，位错开始向下运动，于是造成了载荷—位移曲线上 B 点的波动。位错第一次成核之后，材料得到强化，变形随着加载的继续进行（图 3 中 CD 段）和产生位错之前（图 3 中 OA 段）变化趋势相同，直到第二个位错形核与发射。图 6 是加载到 7.2Å 时的瞬时方向位移云图，可见，晶体内部出现了新的位错成核（图中 A 和 B），产生了四个 Shockley 分位错对。如图所示，新的位错成核出现在第一次位错的正下方，并且不全位错之间的距离和第一次位错的不全位错基本相同，表明材料形成第二次位错成核的变形机理与第一次基本相同。

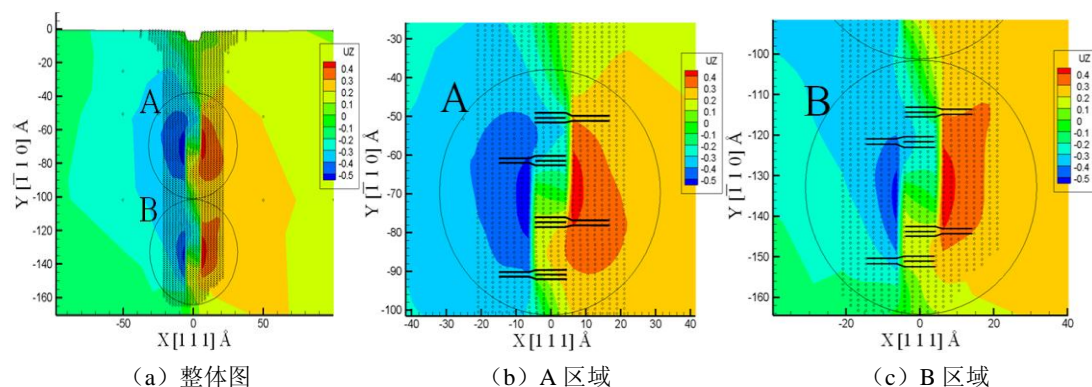
图6 加载位移为 7.2Å 时的 $[-1-12]$ 方向位移云图Fig.6 $[-1-12]$ Direction displacement contours at the 7.2Å displacement

图 7 是应变能—位移曲线，压深为 0 时，O 点对应的应变能为表面效应引起的应变能。在初始阶段 OA，工件材料受压变形，能量累积在晶格内，于是应变能呈现上升趋势。到达 A 点之后，应变能突然下降，这主要是由于在 A 处位错形核完成并将发散，需要吸收能量。由于需要增大应变能来驱动第二次位错开始形核，在经过 B 点的波动之后，应变能在 CD 段开始逐渐上升。当第二次位错形核完成即在 D 点时，应变能在此下降以提供第二次位错发散的能量。应变能—位移曲线同载荷—位移曲线一样，不断地循环升高降低，可见每次应变能的突变都伴随着位错的形核与发散。

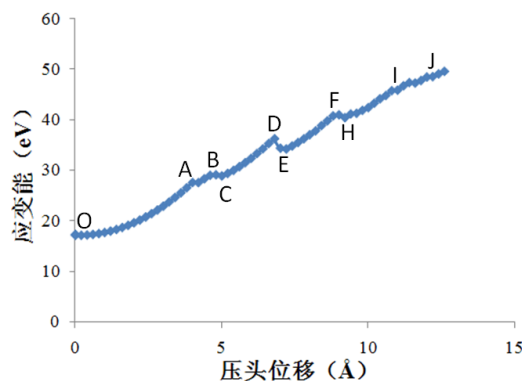


图7 单晶铜纳米压痕过程中的应变能—位移曲线

Fig.7 Strain energy - displacement curve displacement of single crystal copper during nanoindentation

根据 Oliver-Pharr 方法^[19], 对载荷—位移曲线进行处理, 可以得到材料的纳米硬度—位移曲线, 如图 5.8 所示。当压深小于 1\AA 时, 纳米硬度值变化比较剧烈, 在此阶段硬度值迅速上升。当压深继续增加时, 曲线变化平稳, 纳米硬度值逐步上升, 这个平稳上升阶段反应了材料内部的弹性变化。当到达 A 点时发生突变, A 点对应着晶体已经开始发生塑性变形。

随着继续加载, 硬度—位移曲线不断地突降—平缓上升—突降—平缓上升。

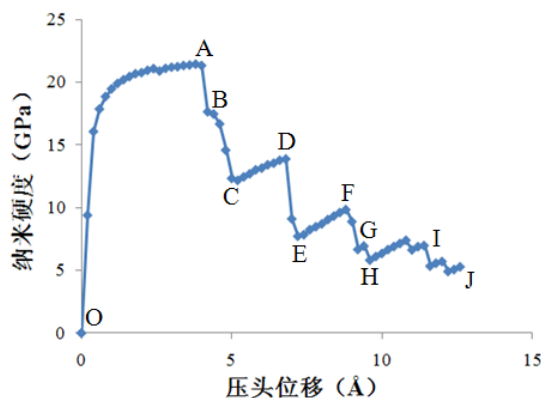


图8 硬度—位移曲线

Fig.8 Hardness - displacement curve

由于在 A 点材料已经开始开始位错发射, 产生了塑性变形, 所以可将 A 点的硬度值作为晶体的纳米硬度^[20,21], 此时压头下压深度为 4.0\AA , 载荷为 8.54nN , 对应的纳米硬度值为 21.36GPa 。

2.2 纳米压痕过程中的晶相效应模拟与分析

分别对单晶铜工件三个不同的晶体取向: (111) , (-110) , (001) , 并令压头分别沿着 $[-110]$ 、 $[111]$ 、 $[110]$ 方向进行纳米压痕过程, 分析纳米压痕过程中的晶向效应。仿真模型的其他参数设置与图 1 一致。

已知 (111) 晶面为 FCC 晶体的密排面, 故 (111) $[-110]$ 取向下载为压头垂直于密排面加载, (-110) $[111]$ 取向下载为压头平行于密排面加载, (001) $[110]$ 取向下载为压头下压方向与密排面呈一定角度时加载。图 9 是三种不同晶面下纳米压痕的载荷—位移曲线, 可以明显看到不同晶向对载荷—位移曲线影响很大, (111) 面所受的载荷最大, (-110) 面其次, 最小的是 (001) 面。在加载的初始阶段, 材料均处于弹性阶段, 随后达到弹塑性转变临界点。在 (-110) $[111]$ 取向下载, 当载荷加载到压头位移为 4.0\AA 时, 载荷-位移曲线出现突降, 此时材料内部有位错形核。因压头加载方向平行于密排面, 材料内部容易位错成核, 变形主要形式为位错滑移; 而在 (111) $[-110]$ 取向时的加载初始阶段, 载荷随位移的增大而

增大,直到压痕深度达到 6.0\AA 载荷都没有出现突降。尽管 6.0\AA 之前载荷-位移曲线没有出现剧烈的变化,但是材料内部已经发生了滑移和位错的发射,只是在 Z 方向上的位移很小,故对应于载荷-位移曲线上没有明显的突降[19]。因压头加载方向垂直于密排面,材料产生塑性变形的机理为孪生变形。孪生变形很难形成,故直到压头位移达到 6.0\AA 时才会出现载荷的突然下降,对应着大量孪生变形的产生。此时晶体产生较大的破坏,载荷下降幅度也很大[22];在 (001) [110] 取向向下加载,加载初期载荷-位移曲线并没有出现剧烈的下降,当压头位移达到 3.2\AA 时,载荷有一个很小的下降。因压头加载方向与材料密排面既不垂直,也不平行,此时材料的微观变形机理很复杂,既有位错的产生,也会发生孪生变形。在该晶体取向向下,加载过程中材料在 Z 方向的位移量很小,相对于前两个晶体取向的情况可以忽略不计,可知材料的变形主要发生在 XY 面内。载荷-位移曲线的下降不明显,材料的硬度最小,如图 10 所示。

临界载荷与临界压深的变化说明了不同晶面纳米压痕过程中加载的困难程度,即在 (111) 晶面下加载最困难,而在 (001) 晶面下加载最容易,这说明晶体取向对纳米压痕过程有重要影响。三个晶面下的临界载荷,临界压深与纳米硬度数据统计如表 1 所示。(111) 晶面和 (-110) 晶面下的纳米硬度值分别比 (001) 晶面时的纳米硬度值大 125% 与 106%,呈现出明显的纳米压痕晶向效应。

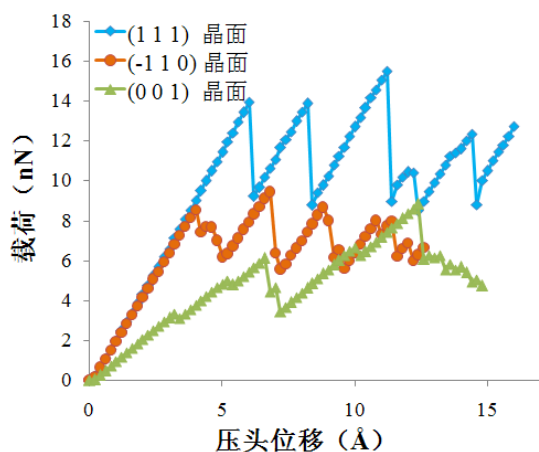


图 9 不同晶面下的载荷-位移曲线

Fig.9 Load - displacement curve of different crystal faces

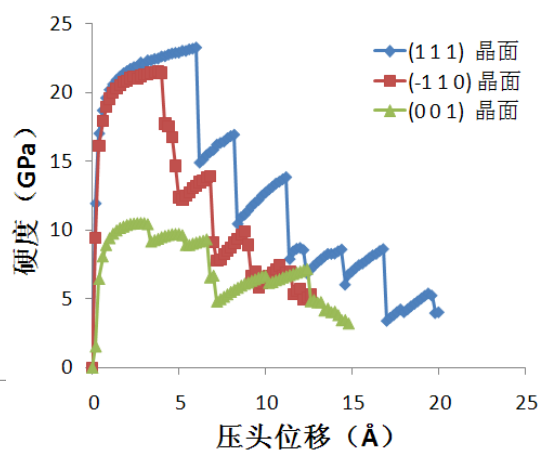


图 10 不同晶面下的硬度-位移曲线

Fig10 Hardness - displacement curve of different crystal faces

表 1 不同晶向下材料的物理参数

Tab.1 Physical parameters of different crystalline phase

晶面	(1 1 1)	(-1 1 0)	(0 0 1)
临界载荷 (nN)	13.94	8.54	3.32
临界压深 (\AA)	6.0	4.0	3.2
纳米硬度 (GPa)	23.22	21.36	10.37

图 11 是三种不同晶面下的应变能-位移曲线图,可见晶体晶面对应变能-位移曲线有明显影响,(111)晶面的应变能最大,(-110)晶面次之,应变能最小的是(001)晶面。当沿着加载困难的方向(111)晶面进行纳米压痕时,材料在持续的加载作用下发生剧烈的晶格畸变,应变能比较大;而当沿着容易加载的方向(001)晶面进行纳米压痕时,材料在较小的载荷下就发生弹性转变,晶格畸变程度小,于是应变能比较小;加载难度居中的(-110)晶面则应变能也居中。相同的是,三种晶面下的应变能-位移曲线都呈现逐渐上升的整体趋势,这是因为随着加载的进行,材料不断地受压变形,能量累积在晶格内,于是应

变能显示逐渐上升趋势。

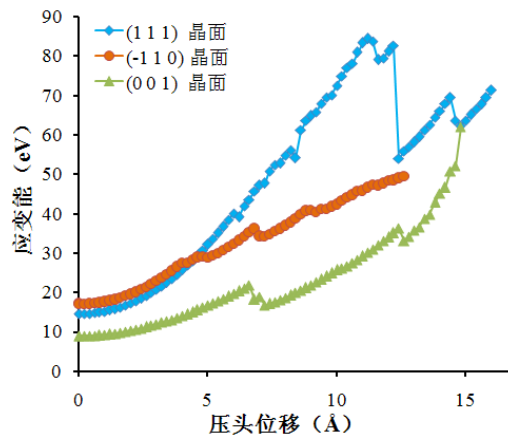


图 11 不同晶面下的应变能—位移曲线

Fig.11 Strain energy - displacement curve of different crystal faces

3 结论

本章应用准连续介质法 (QC)，建立了单晶铜工件的亚微米级纳米压痕模型，研究了其初始塑性变形行为，其次研究了纳米压痕过程中不同晶面下（分别为 (111)，(-110)，(001)），不同加载方向下（分别为[-110]，[111]，[110]）呈现的晶向效应，结果表明：

(1) 材料的载荷—位移曲线呈现不连续性，这与位错的形核、发射与分解变化密切相关。当载荷达到临界载荷之后，在局部高应力驱动下位错完成形核，而形成的全位错又迅速分解为两个 Shockley 分位错，以此为分界点材料开始进入塑性变形状态。随着加载的进行，位错开始向下运动，直到第二个位错形核与发射，于是压头下方的工件材料内部就出现多个 Shockley 分位错对，在载荷—位移曲线上就表现为持续的不连续性。

(2) 纳米压痕过程呈现明显的晶向效应，并得到了载荷-位移与应变能-位移响应曲线。结合曲线从微观角度分析了材料的变形机理，结果表明，在 (111) [-110]取向下加载，加载方向垂直于密排面，材料产生塑性变形的机理为孪生变形，该情况下加载最困难，材料的硬度最大；在 (001) [110]取向下加载，压头下压方向与密排面呈一定角度，材料的微观变形为位错滑移与孪生协调变形，该情况下加载最容易，材料的硬度最小；在 (-110) [111]取向下加载，压头加载方向平行于密排面，材料的变形主要形式为位错滑移，加载比较容易，材料的硬度较大。

[参考文献] (References)

- [1] Pei Q X, Lu C, Lee H P. Large scale molecular dynamics study of nanometric machining of copper[J]. Computational Materials Science, 2007, 41(2): 177.
- [2] Simoneau A, Ng E, Elbestawi MA. Chip formation during microscale cutting of a medium carbon steel[J]. International Journal of Machine Tools and Manufacture, 2006, 46: 467-481.
- [3] 肖高博. 氟化钙晶体纳米切削加工多尺度仿真研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2011.
- [4] 范镜泓. 材料变形与破坏的多尺度分析[M]. 北京: 科学出版社, 2008.
- [5] Shiari B, Miller RE, Klug DD (2007). Multiscale simulation of material removal processes at the nanoscale[J]. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 2007, 55: 2384-2405.
- [6] Heino P, Hakkinen H, Kaski K. Molecular dynamics study of mechanical properties of Copper [J]. Europhysics Letters, 1998, 41(3): 273-278.
- [7] E.B. Tadmor, R. Miller and R. Phillips. Nanoindentation and incipient plasticity[J]. Journal of Materials Research, 1999, 14(6):2233-2250.
- [8] Lin Z C, Huang J C. The influence of different cutting speeds on Shenoy V B, Phillips R, Tadmor E B. Nucleation of dislocations beneath a plane strain indenter[J].Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 2000, 48:649-673.
- [9] F.F.Abraham and H.J.Gao. How Fast Can Crack Propagate. Phys. Rev Let. 2000, 84(14): 3113.

- 240 [10] Komanduri R, Chandrasekaran N, Raff L M, M.D. Simulation of Smith G S, Tadmor E B, Kaxiras E. Multiscale simulation of Smith G S, Tadmor E B, Bernstein N, et al. Multiscale simulations of silicon nanoindentation[J].Acta Materialia, 2001, 49:4089-4101.
- [11] Zeng Fanlin, Sun Yi. Quasicontinuum simulation of nanoindentation of Nickel film [J]. Acta Mechanica Solida Sinica, Vol. 19, No. 4, December, 2006 284-288.
- 245 [12] Debin Shan, Lin Yuan, Bin Guo, Multiscale Simulation of Surface Step Effects on Nanoindentation, Materials Science and Engineering A, 2005, 412:264~270.
- [13] Jin J, Shevlin S A, Guo Z X. Multiscale simulation of onset plasticity during nanoindentation of Al(001) surface[J].Acta Materialia, 2008(Article in Press).
- [14] Phillips R, Rodney D, Shenoy V. Hierarchical models of plasticity: dislocation nucleation and interaction[J]. Modeling and Simulation in Materials Science and Engineering, 1999, 7:769-780.
- 250 [15] Cordill M J, Moody N R, Gerberich W W. The role of dislocation walls for nanoindentation to shallow depths[J]. International Journal of Plasticity, 2008(Article in Press).
- [16] Jin J, Shevlin S A, Guo Z X. Multiscale simulation of onset plasticity during nanoindentation of Al(001) surface[J].Acta Materialia, 2008(Article in Press).
- 255 [17] Gouldstone A, Koh H J, Zeng K Y, Giannakopoulos A E, Suresh S. Discrete and continuous deformation during nanoindentation of thin films [J].Acta Materialia, 2000, 48(9):2277-2295.
- [18] Andrew Gouldstone, Krystyn J. Van Vliet, Subra Suresh. Simulation of defect nucleation in a crystal[J]. Nature, 2001, 411(6838):656.
- [19] Oliver W C, Pharr G M, An Improved Technique for Determining Hardness and Elastic Modulus Using Load and Displacement Sensing Indentation Experiments, Journal of Materials Research, 1992, 7(6):1564~1583.
- 260 [20] Shiari B, Miller R E, Klug D D. Multiscale Simulation of Material Removal Processes at the Nanoscale[J]. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 2007, 55(11):2384-2405.
- [21] Fang F Z, Wu H, Liu Y C. Modelling and Experimental Investigation on Nanometric Cutting of Monocrystalline Silicon[J]. The International Journal of Advanced Manufacturing Technology, 2005, 45(15):1681-1686.
- 265 [22] 不同晶体取向纳米压痕的多尺度模拟, 王华滔 秦昭栋 倪玉山, 张文, 物 理 学 报, 第 58 卷第 2 期 2009 年 2 月.