创刊 60 周年专栏

超弹性薄膜与可压缩基底双层结构表面失稳分析

黄春阳 唐山2) 彭向和3)

(重庆大学航空航天学院,重庆400017)

摘要 当上层超弹性硬质薄膜和下层可膨胀基底构成的双层结构受压时,薄膜的自由表面可通过形成褶皱降低系统能量.研究表明,上下两层的模量比不同时,上层弹性硬质薄膜将表现出不同的表面失稳模式.本文提出了一种新颖的方法可有效抑制双层软材料的表面失稳,即改变基底材料的泊松比,这种方法同时适用于不具有应变硬化的软材料.首先基于 Neo-Hookean 模型发展了小变形条件下双层结构表面失稳的理论模型,通过半解析的方法得到了表面失稳的临界应变;然后通过有限元计算与模拟,进一步验证了负泊松比基底可延缓表面失稳. 结果表明:(1)当双层结构基底泊松比为正且趋于 0.5 (不可压缩)时,双层结构在较小的压缩应变下出现表面失稳;(2)当基底的泊松比为负且趋于 -1 时,可被压缩至 46% 而不出现表面失稳,即可膨胀基底能有效抑制薄膜的表面失稳.本文发展的方法及主要结果可为延展性电子器件的设计提供指导.

关键词 薄膜-基底结构,表面失稳,负泊松比,可延展性电子

中图分类号: O34 文献标识码: A doi: 10.6052/0459-1879-17-161

STUDY OF SURFACE INSTABILITY ABOUT HYPERELASTIC FILMS ON AUXETIC SUBSTRATES UNDER COMPRESSION ¹⁾

Huang Chunyang Tang Shan²⁾ Peng Xianghe³⁾

(College of Aerospace Engineering, Chongqing University, Chongqing 400017, China)

Abstract When a bilayer structure consisting of a thin stiff film and a thick compliant substrate subjected to compressive deformation, its free surface would be wrinkled to minimize the energy of the system, and different wrinkle patterns may appear for different ratios of the modulus of the film to that of the substrate. In this article, we developed a novel approach to suppress the surface instability of such bilayer materials under severe compression by adjusting the Poisson's ratio of the substrates. This approach is also applicable to the bilayer consisting of a soft substrate and a film with elastic modulus similar to that of the substrate. We developed an analytical approach for surface instability of the bilayer based on Neo-Hookean model in the case of small deformation, and obtained the critical strain of the bilayer with a semi-analytical method. Then, we used finite element approach (FEA) to illustrate that the instability of the thin film can be delayed if the substrate has a negative Poisson's ratio. We showed that: (1) when the Poisson's ratio of the substrate is positive and close to 0.5 (nearly incompressible), the surface instability may occur to the bilayer system at a very small compressive strain; (2) if the Poisson's ratio of the substrate is negative and close to -1, the film can be compressed up to 46% without occurrence surface instability. The approach developed and the results obtained in this article imply a great potential of

3) 彭向和,教授,主要研究方向: 跨尺度数值模拟与力学表征. E-mail: xhpeng@cqu.edu.cn

引用格式: 黄春阳, 唐山, 彭向和. 超弹性薄膜与可压缩基底双层结构表面失稳分析. 力学学报, 2017, 49(4): 758-762

Huang Chunyang, Tang Shan, Peng Xianghe. Study of surface instability about hyperelastic films on auxetic substrates under compression. *Chinese Journal of Theoretical and Applied Mechanics*, 2017, 49(4): 758-762

²⁰¹⁷⁻⁰⁵⁻⁰⁸ 收稿, 2017-05-31 录用, 2017-05-31 网络版发表.

¹⁾ 国家自然科学基金资助项目 (11472065).

²⁾ 唐山,教授,主要研究方向: 跨尺度数值模拟与力学表征. E-mail: shan_tang_0917@163.com

auxetic materials used to enhance the compressibility of thin films, which can provide guidance for the design of laminate ductile electronic devices.

Key words thin film-substrate system, surface instability, negative Poisson's ratio, stretchable electronics

引 言

Biot 的线性扰动分析认为,平面应变条件下, 半无限超弹性材料受压时,如果施加压缩应变达到 临界值 $\varepsilon_{\text{Biot}} = 0.46$,自由表面将丧失稳定性,形成波 浪形褶皱[1]. 然而实验[2-4]、理论[4-7]以及计算[8-9] 表明当施加压缩应变达到 $\varepsilon_{crease} = 0.35$ 时,自由表面 将形成折痕. 超弹性块体在弯曲载荷下通常也可观 察到折痕.折痕不同于褶皱,因为折痕临界应变小于 褶皱临界应变 $\varepsilon_{crease} < \varepsilon_{Biot}$. 但是具有硬质薄膜和厚 软基底构成的双层结构受到压缩时,则会出现波浪 形褶皱以降低系统能量[10-11]. 褶皱是自由表面整体 无限小扰动,而折痕则是局部大应变下的自我接触. 折痕的接触区域有尖点,不同于褶皱.这些特殊表 面形貌可应用到生物仿生[12]、生物淤积[13]、表面粘 附[14]和细胞工程[15]等.但是表面失稳[16,17]也会导 致材料失效,比如微电子系统[18-19]和复合材料的屈 曲^[20-21].因此人们容易联想到的一个的问题是:如 何抑制或者推迟表面失稳?

为回答上述问题, Cao 和 Hutchinson^[22] 通过力 学理论和计算研究了超弹性硬质薄膜在超弹性软基 底上的双层结构在受压下的失稳^[22],结果表明褶皱 出现的临界应变 $\varepsilon_{wrinkle}$ 取决于薄膜的杨氏模量 E_f 与 基底的杨氏模量 E_s 之比 E_f/E_s . 例如 $E_f/E_s = 20$ 时, $\varepsilon_{wrinkle} = 0.07^{[18]}$; $E_f/E_s = 2$ 时, $\varepsilon_{wrinkle} = 0.30$,临界 应变小于 ε_{crease} 和 $\varepsilon_{Biot}^{[22]}$. Feng 和 Tian^[23], Wang 和 Zhao^[24] 详细分析了受压薄膜-基底双层结构的表面 失稳. 考虑了薄膜与基底的杨氏模量,界面的粘结强 度、薄膜厚度和基底的预拉伸等因素对表面失稳的 影响. Jin 和 Suo^[25] 最近的研究表明:材料硬化可抑 制表面折痕出现. 随压缩应变增大和材料应变硬化,折痕 将随之消失. 这种抑制表面折痕的方法很大程度上 依赖材料的本构行为,不具有普遍性.

本文提出了一种新颖的方法抑制双层软材料表 面失稳,可适用于不具有应变硬化的软材料.理论分 析表明,当基底为负泊松比材料时,表面失稳临界应 变可被推迟到 *e*Biot.为验证理论分析的结果,建立了 有限元模型,研究了受压下薄膜与基体表面失稳的 形变过程.有限元分析结果表明,所提出的方法能够 抑制或延缓折痕、褶皱、倍褶皱或者折叠等表面失稳 模式^[26-27].当基底材料为正泊松比时,没有同样的 效应.因此,负泊松比基底是抑制双层软材料结构表 面失稳的重要因素.

在研究材料的表面失稳时,先前的理论^[1,4,7,10]和计算^[8-9,22,24]通常假设材料为不可压缩的高分子 弹性体(泊松比为 0.5).但软材料或多或少具有一 定的压缩性.可压缩性与温度 *T* 及材料的微观结 构有关,例如高分子聚合物在温度 *T* 高于自身玻璃 化温度 *T*_g 时,往往不可压缩;但是当 *T* < *T*_g 时, 往往具有可压缩性.Greaves 等^[28]对此做了详细的 综述,分子动力学模拟也证明高分子材料的泊松比 与温度有关^[29].对于各项同性材料,泊松比*v*满足 -1 < *v* < 0.5.一些研究者通过设计具有凹角或者弧 形的网状结构,得到具有负泊松比性质的材料^[28-32].

1 表面失稳理论模型

如图 1 表示,考虑薄膜-基体双层结构.上层为 硬质薄膜,下层为基底.为考虑泊松比效应,采用可 压缩 Neo-Hookean 模型^[29,33],其自由能函数为

$$W^{\rm H} = \frac{\mu}{2} \left(\overline{I_1} - 3 \right) + K_{\rm m} \left(J - 1 \right)^2 \tag{1}$$

式中, $J = \det(F)$, $\overline{F} = J^{-\frac{1}{3}}F$, $\overline{I_1} = J^{-\frac{2}{3}}I_1$, F 为变形梯 度, I_1 是左柯西-格林张量的第一不变量 $C = F^T F$. μ 和 K_m 分别表示剪切模量和体积模量. 以上模型中, 泊松比可通过调整剪切模量和体积模量的比值决定. 杨氏模量和泊松比与剪切模量和体积模量的关系见 文献 [34]. 针对可压缩超弹性体, 第一 Piola-Kirchhoff (PK-I) 应力可由下式得出

$$P_{ij} = \frac{\partial W^{\rm H}}{\partial F_{ij}} \tag{2}$$

假设上层薄膜初始厚度为 h,下层基底初始厚度为 H.可压缩基底可通过微观结构设计得到^[32],比如 孔洞.即使存在微观结构,依然假设其为均质超弹性 材料,以方便分析.薄膜和基底材料均假设为可压缩 的 Neo-Hookean 材料.一般情况下,考虑无穷厚基 底,假设*h*/*H* = 100.在下面的符号中,下角标 "s" 和 "f" 分别表示基底和薄膜.



Fig. 1 Schematic of a thin film-substrate bilayer

在大变形和平面应变条件下,一种半解析方法 可用于研究多层结构的表面失稳问题.它主要包括 两个分析步骤:第一步,统一施加沿 x₁方向的预拉 伸 λ;第二步,在当前构型下,施加任意波长的扰动.

在 Lagrangian 构型中, 增量问题通过下式描述

$$\operatorname{Div} \dot{\boldsymbol{P}} = 0 \tag{3}$$

式中 Div 表示在初始构型下的散度算子.通常在即时构型中构造失稳问题,引入变换^[35]

$$\Sigma_{ij} = \frac{1}{J} \dot{P}_{ik} F_{jk} \tag{4}$$

平衡方程又可以写为

$$\operatorname{div}\Sigma = 0 \tag{5}$$

式中 div 表示即时构型下的散度算子.

取以下形式的扰动

$$v_{1} = v_{1}^{0}(x_{2})\sin(Kx_{1}) v_{2} = v_{2}^{0}(x_{2})\cos(Kx_{1})$$
(6)

式中 K 为波数.

假设薄膜与基底不存在界面分离和相对滑移, 即在薄膜和基底界面处^[36]

$$\begin{bmatrix} \boldsymbol{\nu} \end{bmatrix} = \mathbf{0} \\ \begin{bmatrix} \boldsymbol{\Sigma} \end{bmatrix} \boldsymbol{n} = \mathbf{0}$$
 (7)

其中[·] 表示跳跃算子, 定义为

$$[f] = f^+ - f^-$$
(8)

上标 "+" 和 "-" 表示薄膜与基体界面的上方和下方. 在平面应变条件下,连续性条件可表示为

$$\begin{pmatrix} v_i^0 \end{pmatrix}^+ = \begin{pmatrix} v_i^0 \end{pmatrix}^- \quad (i = 1, 2) \\ \Sigma_{22}^+ = \Sigma_{22}^- \\ \Sigma_{12}^+ = \Sigma_{12}^- \\ \end{pmatrix}$$
(9)

表面失稳问题的边界条件为:

上表面

$$\Sigma_{12}|_{x_2 = ha^i + H\lambda_2^j} = 0$$

$$\Sigma_{22}|_{x_2 = ha^i + H\lambda_2^j} = 0$$

$$(10)$$

下表面

$$\left.\begin{array}{l}
\nu_{2}^{0} = 0 \\
\Sigma_{12}|_{x_{2}=0} = 0
\end{array}\right\}$$
(11)

求解平衡方程可得由待定未知系数表示的 v₁ 和 v₂ 的解. 按照图 1 中讨论的双层结构,连续条件和边 界条件共有 8 个方程和 8 个待定未知系数. 存在非 平凡解的条件为 8 个方程的系数矩阵行列式等于零. 由此可得表面失稳的临界应变.在小变形条件下,可 得下式表示的表面失稳的临界应变^[37]

$$\varepsilon^{\rm crit} = -\frac{A_0^2 \pi^2 n^2}{H^2} \tag{12}$$

其中, A₀为上层薄膜褶皱的振幅, n为褶皱的数量, H为基底厚度.

本文考虑了两种不同的薄膜和基底模量比: $E_{\rm f}/E_{\rm s} = 1 和 E_{\rm f}/E_{\rm s} = 20.$

假设上层薄膜不可压,即 v_f = 0.5,基底泊松比 v。在 -1 到 0.5 之间变化. 图 2 显示了预测的临界 失稳应变和基底泊松比的关系. 其中定义临界应变 $\varepsilon^{\text{crit}} = 1 - \lambda^{\text{crit}}$,结果与 Biot^[1], Cao 和 Hutchnison^[22]的 结果一致. 从图 2 中可见, 当 $E_f/E_s = 1$, 对于不同的 vs,褶皱出现的临界应变均为 0.46, 与 Biot 基于均匀 不可压超弹性材料预测结果相同^[1]. 当 E_f/E_s = 20 时,褶皱出现的临界应变随基底泊松比 v。减小而单 调增加. 当基底泊松比为正时, 泊松比对于褶皱出现 的影响可忽略; 当基底的泊松比从 0 到 -1 变化时, 褶皱出现临界应变剧烈增加(从 0.08 增加到 0.46). 当 ν_s 接近于 -1 时,临界应变趋近 ε_{Biot} = 0.46. 尽管 只展示了 $E_f/E_s = 1$ 和 $E_f/E_s = 20$ 两种情形, 但详 尽的计算表明,使用其他模量比的结果也与此规律 相符.综上所述,受压情况下,基底为负泊松比材料 可有效抑制和推迟表面失稳发生,临界应变的上限 $\varepsilon_{\text{Biot}} = 0.46.$





2 表面失稳的有限元分析

本节将应用有限元模型进一步验证负泊松比基 底可延缓表面失稳的结论.本文所有有限元计算均 采用商用软件 ABAQUS 完成^[33].基于之前的工作 建立有限元模型^[29,38],与 Cao 和 Hutchinson^[22]的工 作类似.有限元模型采用 CPE4H 单元,单元总数为 20000.分析主要分两步完成:(1)线性扰动分析;(2) 后屈曲分析.第一步采用线性扰动分析,得出基础失 稳模态;第二步引入微小缺陷(约为 0.05*h*)乘以基础 失稳模态,对初始有限元网格进行扰动,进行后屈曲 分析.

采用与前节的理论分析相同的边界条件,其他 参数 $E_f/E_s = 20$, $v_f = 0.5$. 图 3 显示了不同压缩应变 下双层结构表面形貌. 首先讨论基底泊松比 ν_s = 0.4 的结果. 周期褶皱出现临界应变为 $\varepsilon^{crit} = 0.085$, 如 图 3(a) 所示, 与理论分析相一致. 表面正弦褶皱的幅 值逐步增大. 当压缩应变接近 0.18 时, 出现二次分 岔. 随着压缩应变进一步增加到 0.24, 倍褶皱会出 现. 与 Cao 和 Hutchinson 所观察到的现象相符. 若基 底的泊松比 vs = -0.9, 在压缩应变为 0.28 时, 薄膜 表面并没有产生褶皱或者折痕,如图 3(b) 所示. 当压 缩应变到 0.37 时,表面出现很小幅值的褶皱. 压缩 应变 0.37 已经大于均匀材料中出现折痕的临界应变 值 ε_{crease} = 0.35^[4,7]. 随着压缩应变增加到 0.40, 表面 折痕会在薄膜表面形成,但其深度很小,很难用肉眼 观察到.对比图2所示的理论分析结果,可见有限元 模拟结果与理论分析结果几乎一致.



compressive strain

3 结 论

目前,高分子聚合物基底被广泛用于提高金属 和半导体薄膜的延展性^[39-43].比如铜薄膜可在 Kapton 基底上达到超过 50% 的应变^[39];银薄膜可延展 至 46% 的应变^[40].这些研究可帮助设计可延展性电 子产品^[42].本文提出了一种新的方法在压缩条件下 抑制或者推迟双层基底与薄膜的表面失稳.负泊松 比基底与超弹性薄膜构成的双层结构,上层薄膜可 压缩至 46% 而未出现表面失稳.考虑到压缩和拉伸 同等重要性,该方法为延展性电子产品设计提供了 一种新思路.

参考文献

- 1 Biot MA. Surface instability of rubber in compression. *Flow, Turbulence and Combustion*, 1963, 12(2): 168-182
- 2 Gent AN, Cho IS. Surface instabilities in compressed or bent rubber blocks. *Rubber Chemistry and Technology*, 1999, 72(2): 253-262
- 3 Ghatak A, Das AL. Kink instability of a highly deformable elastic

cylinder. Physical Review Letters, 2007, 99(7): 076101

- 4 Hong W, Zhao X, Suo Z. Formation of creases on the surfaces of elastomers and gels. *Applied Physics Letters*, 2009, 95(11): 111901
- 5 Needleman A, Tvergaard V, Van der Giessen E. Indentation of elastically soft and plastically compressible solids. *Acta Mechanica Sinica*, 2015, 31(4): 473-480
- 6 Huang SQ, Feng XQ. Spinodal surface instability of soft elastic thin films. *Acta Mechanica Sinica*, 2008, 24(3): 289-296
- 7 Hohlfeld E, Mahadevan L. Unfolding the sulcus. *Physical Review Letters*, 2011, 106(10): 105702
- 8 Cao Y, Hutchinson JW. From wrinkles to creases in elastomers: the instability and imperfection-sensitivity of wrinkling//Proc. R. Soc. A. The Royal Society, 2012, 468(2137): 94-115
- 9 Wong WH, Guo TF, Zhang YW, et al. Surface instability maps for soft materials. *Soft Matter*, 2010, 6(22): 5743-5750
- 10 Mei H, Huang R, Chung JY, et al. Buckling modes of elastic thin films on elastic substrates. *Applied Physics Letters*, 2007, 90(15): 151902
- 11 Sun JY, Xia S, Moon MW, et al. Folding wrinkles of a thin stiff layer on a soft substrate//Proc. R. Soc. A. The Royal Society, 2012, 468(2140): 932-953
- 12 Kim J, Yoon J, Hayward RC. Dynamic display of biomolecular patterns through an elastic creasing instability of stimuli-responsive hydrogels. *Nature Materials*, 2010, 9(2): 159-164
- 13 Shivapooja P, Wang Q, Orihuela B, et al. Bioinspired surfaces with dynamic topography for active control of biofouling. *Advanced Materials*, 2013, 25(10): 1430- 1434.
- 14 Chan EP, Karp JM, Langer RS. A "self-pinning" adhesive based on responsive surface wrinkles. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, 2011, 49(1): 40-44
- 15 Saha K, Kim J, Irwin E, et al. Surface creasing instability of soft polyacrylamide cell culture substrates. *Biophysical Journal*, 2010, 99(12): L94-L96
- 16 Xin F, Lu TJ. Acoustomechanical constitutive theory for soft materials. Acta Mechanica Sinica, 2016, 32(5): 828-840
- 17 Hui CY. Crack buckling in soft gels under compression. Acta Mechanica Sinica, 2012, 28(4): 1098-1105
- 18 Krylov S, Ilic BR, Schreiber D, et al. The pull-in behavior of electrostatically actuated bistablemicrostructures. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 2008, 18(5): 055026
- 19 Li Y, Wang XS, Meng XK. Buckling behavior of metal film/substrate structure under pure bending. *Applied Physics Letters*, 2008, 92(13): 131902
- 20 Bolotin VV. Delaminations in composite structures: Its origin, buckling, growth and stability. *Composites Part B: Engineering*, 1996, 27(2): 129-145
- 21 Hu Y, Hiltner A, Baer E. Buckling in elastomer/plastic/elastomer 3layer films. *Polymer Composites*, 2004, 25(6): 653-661
- 22 Cao Y, Hutchinson JW. Wrinkling phenomena in neo-Hookean film/substrate bilayers. *Journal of Applied Mechanics*, 2012, 79(3): 031019
- 23 Feng PL, Lu TJ. A three-layer structure model for the effect of a

soft middle layer on Love waves propagating in layered piezoelectric systems. Acta Mechanica Sinica, 2012, 28(4): 1087-1097

- 24 Wang Q, Zhao X. Phase diagrams of instabilities in compressed film-substrate systems. *Journal of Applied Mechanics*, 2014, 81(5): 051004
- 25 Jin L, Suo Z. Smoothening creases on surfaces of strain-stiffening materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 2015, 74: 68-79
- 26 Li Z, Zhou Z, Li Y, et al. Effect of cyclic loading on surface instability of silicone rubber under compression. *Polymers*, 2017, 9(4): 148
- 27 Tang S, Gao B, Zhou Z, et al. Dimension-controlled formation of crease patterns on soft solids. *Soft Matter*, 2017, 13(3): 619-626
- 28 Greaves GN, Greer AL, Lakes RS, et al. Poisson's ratio and modern materials. *Nature Materials*, 2011, 10(11): 823-837
- 29 Tang S, Li Y, Liu WK, et al. Surface ripples of polymeric nanofibers under tension: the crucial role of Poisson's ratio. *Macromolecules*, 2014, 47(18): 6503-6514
- 30 Milton GW. Composite materials with Poisson's ratios close to—1. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 1992, 40(5): 1105-1137
- 31 Grima JN, Alderson A, Evans KE. Auxeticbehaviour from rotating rigid units. *Physica Status Solidi* (b), 2005, 242(3): 561-575
- 32 Babaee S, Shim J, Weaver JC, et al. 3D Soft metamaterials with negative Poisson's ratio. *Advanced Materials*, 2013, 25(36): 5044-5049
- 33 Hibbitt, Karlsson, Sorensen. ABAQUS: Theory Manual. Hibbitt, Karlsson & Sorensen, 1997
- 34 Belytschko T, Liu WK, Moran B, et al. Nonlinear finite elements for continua and structures. New York: John Wiley & Sons, 2013
- 35 Bertoldi K, Gei M. Instabilities in multilayered soft dielectrics. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 2011, 59(1): 18-42
- 36 Li Y, Wang XS, Fan Q. Effects of elastic anisotropy on the surface stability of thin film/substrate system. *International Journal of En*gineering Science, 2008, 46(12): 1325-1333
- 37 Tang S, Li Y, Yang Y, et al. The effect of mechanical- riven volumetric change on instability patterns of bilayered soft solids. *Soft Matter*, 2015, 11: 7911-7919
- 38 Tang S, Greene MS, Peng XH, et al. Chain confinement drives the mechanical properties of nanoporous polymers. *EPL (Europhysics Letters)*, 2014, 106(3): 36002
- 39 Lu N, Wang X, Suo Z, et al. Metal films on polymer substrates stretched beyond 50%. *Applied Physics Letters*, 2007, 91(22): 221909
- 40 Xiao J, Carlson A, Liu ZJ, et al. Stretchable and compressible thin films of stiff materials on compliant wavy substrates. *Applied Physics Letters*, 2008, 93(1): 013109
- 41 Kim DH, Ahn JH, Choi WM, et al. Stretchable and foldable silicon integrated circuits. *Science*, 2008, 320(5875): 507-511
- 42 Rogers JA, Someya T, Huang Y. Materials and mechanics for stretchable electronics. *Science*, 2010, 327(5973): 1603-1607
- 43 Xu F, Lu W, Zhu Y. Controlled 3D buckling of silicon nanowires for stretchable electronics. Acs Nano, 2010, 5(1): 672-678