

形状记忆聚合物表面弹性薄膜的屈曲研究¹⁾

白梦琪* 孟宪红^{†,2)}

* (北京航空航天大学实验学校, 北京 100191)

[†] (北京航空航天大学固体所, 北京 100191)

摘要 形状记忆聚合物具有形状变化后在特定条件下可恢复的特点, 因此作为一种柔性基底材料在柔性电子中得到广泛应用。对于形状记忆聚合物基底和弹性薄膜组成的双层结构, 当基底收缩时, 其表面的弹性薄膜可以形成屈曲波形。针对基底收缩过程中波形的变化, 本文实验测得形状记忆聚合物材料在不同温度下的属性, 结合一维应变恢复函数, 利用柔性基底表面薄膜屈曲波形参数 (波幅、波长等) 表达式, 求解得到了在基底收缩的过程中, 弹性薄膜屈曲波形的变化规律, 和实验结果吻合很好。

关键词 双层结构, 形状记忆聚合物, 弹性薄膜, 屈曲波形

中图分类号: O385 文献标识码: A doi: 10.6052/1000-0879-18-063

BUCKLING ANALYSIS OF ELASTIC FILM BONDED ON SMP SUBSTRATE¹⁾

BAI Mengqi* MENG Xianhong^{†,2)}

*(Experimental School of Beihang University (BUAA), Beijing 100191, China)

[†] (Institute of Solid Mechanics, Beihang University (BUAA), Beijing 100191, China)

Abstract The shape memory polymer (SMP) can restore its shape under certain conditions after its shape deformation. Therefore, as a soft substrate material, it is widely used in flexible electronic devices. For a two-layer structure made of the shape memory polymer (SMP) substrate and the elastic thin film, the elastic film on the surface can form wrinkling patterns when the SMP substrate contracts. Due to the shape memory characteristics of the SMP, the shape of the flexible electronic device is related to the time and the temperature. In this paper, the wavelength and the amplitude of the wrinkling patterns are analyzed, and the mechanical properties of the SMP at different temperatures are measured by experiments. With one-dimensional strain recovery function of the SMP and the buckling characteristics of the elastic film bonded to a soft substrate, the variations of the wave length and the amplitude of the wrinkling patterns against the time and the temperature are obtained, with good agreement with the experimental results.

Key words bilayer structure, shape memory polymer, elastic film, wavy pattern

柔性电子元件通常可以视为由柔性基底和金属、单晶硅等薄膜组成的复合结构。形状记忆聚合物作为一种具有形状记忆效应的柔性基底, 其形状可以随时间、温度等变化, 在柔性电子中具有广泛的

2018-02-02 收到第 1 稿, 2018-03-16 收到修改稿。

1) 国家自然科学基金资助项目 (11572022)。

2) E-mail: mxh@buaa.edu.cn

引用格式: 白梦琪, 孟宪红. 形状记忆聚合物表面弹性薄膜的屈曲研究. 力学与实践, 2018, 40(4): 367-371

Bai Mengqi, Meng Xianhong. Buckling analysis of elastic film bonded on SMP substrate. *Mechanics in Engineering*, 2018, 40(4): 367-371

应用前景。本文主要探究形状记忆聚合物表面弹性薄膜屈曲的过程,即在形状记忆聚合物基底收缩过程中,薄膜屈曲波形(波幅、波长)随时间的变化规律。形状记忆聚合物表面单晶硅薄膜形成的屈曲波形如图1所示。

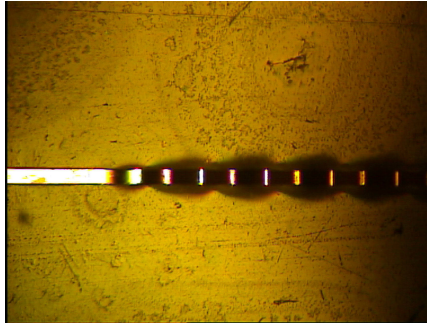


图1 形状记忆聚合物基底单晶硅薄膜屈曲结构

如图2所示,形状记忆聚合物基底表面薄膜屈曲波形的形成可以分为4个阶段:

- (1) 较高温度(大于玻璃态转化温度 T_g)下对基底单轴拉伸;
- (2) 保持形状不变,将基底降温;
- (3) 基底表面贴合(沉淀)单晶硅薄膜;
- (4) 将结构加热至高于 T_g ,诱发形状记忆效应,基底形状恢复,从而导致薄膜屈曲。

本文针对第4阶段进行分析。

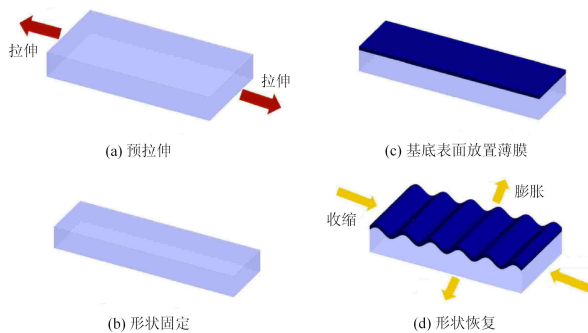


图2 形状记忆聚合物基底表面薄膜屈曲过程

1 薄膜屈曲过程的理论分析

由形状记忆聚合物记忆周期4个阶段可得,在第4个阶段,随着结构温度升高,基底收缩,从而导致基底表面薄膜屈曲。PDMS等柔性基底表面薄膜屈曲波形形成的时间较短,在基底薄膜屈曲的过程中,由于形状记忆聚合物材料的黏弹性作用,薄膜屈曲波形形成的时间较长,且材料参数随时间变化。因此,相对于普通柔性基底表面薄膜屈曲过程,基底

表面薄膜屈曲过程更加复杂。

Chen等^[1]研究认为,虽然屈曲过程不同,但基底表面薄膜最终形成的屈曲波形与PDMS等普通柔性基底表面薄膜屈曲形成的波形十分相近,由于试验误差,仅需对波幅 A 作微小的修正。因此,在任意时刻,基底表面薄膜屈曲波形的波长及波幅可以利用普通柔性基底表面屈曲波形参数进行求解。

Song等^[2]分析了柔性基底表面薄膜屈曲所形成的波长 λ_f 、波幅 A ,得到了解析表达式如式(1)~式(3)所示。

$$\lambda_f = \frac{\pi h_f}{\sqrt{\varepsilon_{xc}}} \quad (1)$$

$$A(t) = h_f \sqrt{\frac{\varepsilon_{pre}}{\varepsilon_{xc}} - 1} \quad (2)$$

其中, ε_{pre} 为图2中阶段1单轴拉伸施加的预应变, h_f 为弹性薄膜的厚度。 ε_{xc} 为临界预应变,即薄膜形成屈曲结构所需的最小预应变,同时也是屈曲波形刚形成时基底“释放”的应变,表达式为

$$\varepsilon_{xc} = \frac{1}{4} \left[\frac{3(1-\mu_f^2)E_s}{(1-\mu_s^2)E_f} \right]^{\frac{2}{3}} \quad (3)$$

其中 E_s 和 μ_s 为基底弹性模量、泊松比, E_f 和 μ_f 为单晶硅薄膜弹性模量、泊松比。

假定薄膜屈曲结构初始状态(刚形成屈曲波形)时的波长及波幅分别为 λ_0 和 A_0 , 屈曲结构稳定时的波长及波幅分别为 λ_{end} 和 A_{end} 。温度升高时,由于形状记忆效果,预应力 ε_{pre} 得到“释放”,薄膜发生屈曲。薄膜屈曲过程中,波长 λ 及波幅 A 变化过程为

$$\lambda: \lambda_0 \rightarrow \lambda_{end}$$

$$A: A_0 \rightarrow A_{end}$$

在薄膜屈曲的过程中,假定 t 时刻应变为 $\varepsilon(t)$, 波长为 $\lambda(t)$ 。应变与波长的关系为

$$\frac{\lambda(t) - \lambda_{end}}{\lambda_{end}} = \varepsilon(t)$$

得任意时刻波长为

$$\lambda(t) = [1 + \varepsilon(t)] \lambda_{end} \quad (4)$$

式(3)中临界预应变 ε_{xc} 与弹性模量 E_s 相关,屈曲过程中, E_s 为随时间变化,所以 ε_{xc} 随时间变化,即 $\varepsilon_{xc} = \varepsilon_{xc}(t)$ 。

将式 (1) 代入式 (4), 波长表达式为

$$\lambda(t) = [1 + \varepsilon(t)] \frac{\pi h_f}{\sqrt{\varepsilon_{xc}(t)}} \quad (5)$$

屈曲过程中, 某一时刻基底“释放”的应变为 $\varepsilon_{pre} - \varepsilon(t)$, 此时波幅表达式为

$$A(t) = h_f \sqrt{\frac{\varepsilon_{pre} - \varepsilon(t)}{\varepsilon_{xc}(t)} - 1} \quad (6)$$

由式 (5) 和式 (6) 可知, 求解薄膜屈曲波长、波幅随时间的变化规律, 需要求解基底的应变恢复过程, 即任意时刻基底的应变 $\varepsilon(t)$ 。形状记忆聚合物材料的应变恢复过程通常利用阻尼、弹簧等单元构成的基本结构进行求解 [3-6]。Ge 等 [7] 利用改进的线性模型以及 KWW 方程描述了 SMP 材料的应变恢复过程。应变恢复过程可以表示为

$$\varepsilon(t) = \xi(t) \varepsilon_{pre} \quad (7)$$

其中, $\xi(t)$ 为应变恢复函数。基底的应变恢复过程伴随着温度的升高, 本文考虑温度线性升高时的薄膜屈曲规律。温度变化过程如式 (8) 所示。

$$T = T_L + Qt \quad (8)$$

其中, T_L 为初始温度, Q 为温度变化率。当温度始终低于参考温度 T_r , $\xi(t)$ 随时间变化关系如下所示

$$\ln \xi = -\frac{E_0}{E_1} \left(1 + \frac{E_0}{E_1}\right)^{-1} \frac{\beta}{\tau_0^\beta} \int_0^t \exp \left[\frac{AF_c}{K_b} \left(\frac{1}{T_L + Qt} - \frac{1}{T_r} \right) \right] t^{\beta-1} dt \quad (9)$$

当最终温度高于参考温度 T_r , $\xi(t)$ 随时间变化关系如下所示

$$\ln \xi = -\frac{E_0}{E_1} \left(1 + \frac{E_0}{E_1}\right)^{-1} \frac{\beta}{\tau_0^\beta} \cdot \left\{ \int_0^{\frac{T_r - T_L}{Q}} \exp \left[\frac{AF_c}{K_b} \left(\frac{1}{T_L + Qt} - \frac{1}{T_r} \right) \right] t^{\beta-1} dt + \int_{\frac{T_r - T_L}{Q}}^t 10^{\frac{C_1(T_L + Qt - T_r)}{C_2 + T_L + Qt - T_r}} t^{\beta-1} dt \right\} \quad (10)$$

取参考温度 T_r 为形状记忆聚合物材料的玻璃态转化温度 T_g , 此时参数 $C_1 = 17.44$, $C_2 = 51.6^\circ\text{C}$ [7]。其余参数 E_0 , E_1 , β , τ_0 , AF_c/K_b 等可以由试验确定。

在基底形状恢复过程中, 任意时刻“释放”的应变为 $\varepsilon_{pre} - \varepsilon(t)$ 。当基底“释放”的应变值达到临界应变时, 薄膜达到屈曲的临界点。在临界点之前, 屈曲波形尚未形成。在临界点之后, 波形开始形成, 波幅和波长随时间不断变化。

到达临界点时, 基底“释放”的应变等于薄膜屈曲所需的临界预应变

$$\varepsilon_{pre}(t) - \xi(t) \varepsilon_{pre} = \varepsilon_{xc}(t) \quad (11)$$

将式 (3) 代入式 (11) 得

$$\varepsilon_{pre}(t) - \xi(t) \varepsilon_{pre} = \frac{1}{4} \left[\frac{3(1 - \mu_f^2) E_s(t)}{(1 - \mu_s^2) E_f} \right]^{\frac{2}{3}} \quad (12)$$

其中 E_f , μ_s , μ_f 均为常数。

由式 (12) 可求得结构达到临界点的时刻 t_0 , 从 t_0 开始, SMP 基底表面薄膜发生屈曲, 其屈曲波长、波幅随时间的变化规律由式 (5) 和式 (6) 求解。

2 形状记忆聚合物材料弹性模量随温度变化

由式 (12) 得, 薄膜屈曲波形与形状记忆聚合物材料弹性模量 E_s 相关, E_s 随温度升高而降低, 形状记忆聚合物形状恢复过程中, 温度对弹性模量有显著的影响 [3-4,8-9]。本文通过试验对一种形状记忆聚合物材料在不同温度下的弹性模量进行了测量, 结果如图 3 所示。该种形状记忆聚合物材料的玻璃态转化温度 T_g 为 35°C 。Tobushi 等 [3] 在对数坐标系下, 利用三段线性函数拟合形状记忆聚合物弹性模量随温度变化, 线性拟合函数形式简单, 但会造成较大的误差。本文将形状记忆聚合物不同温度下弹性模量在笛卡尔 (算术) 坐标系中表达, 利用分段函数对试验点进行拟合。将较低温度下 (低于 T_g) 弹性模量与温度关系利用三次多项式进行拟合, 较高温

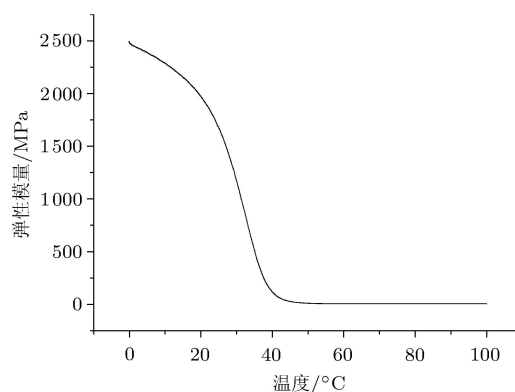


图 3 弹性模量随温度变化

度下 (高于 T_g) 弹性模量与温度关系利用指数函数进行拟合。拟合结果如图 4 及图 5 所示。

弹性模量与温度关系的拟合结果为

$$E_s(T) = \begin{cases} -0.06354T^3 + 1.378T^2 - 27.76T + 2487.6, & T \in [0, 35] \\ 3.590 + 2.177 \times 10^7 \times 0.7382^T, & T \in (35, 60] \end{cases} \quad (13)$$

其中 T 为温度, 单位为 $^{\circ}\text{C}$ 。 $E_s(T)$ 为基底弹性模量, 单位为 MPa 。由图 4 及图 5 可知, 拟合结果良好, 误差判据分别为: $R^2 = 0.99966$ (温度低于 35°C), $R^2 = 0.99914$ (温度高于 35°C)。

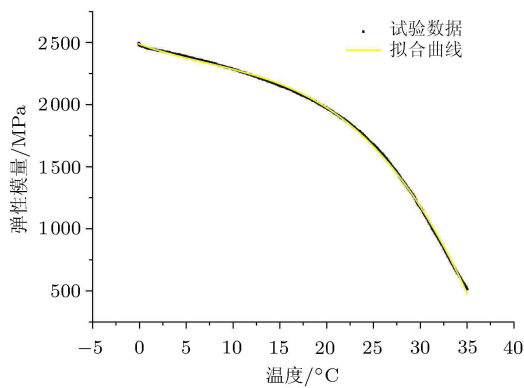


图 4 较低温度下弹性模量随温度变化拟合结果

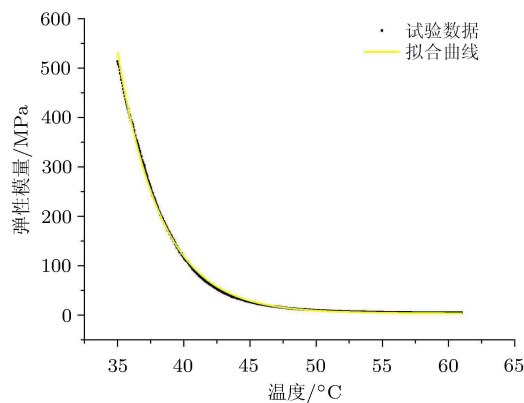


图 5 较高温度下弹性模量随温度变化拟合结果

3 算例: 单晶硅薄膜屈曲规律

本文选取形状记忆聚合物材料参数如表 1 所示 [7]。

单晶硅薄膜弹性模量为 170 GPa , 泊松比为 0.27 。本文选定初始温度为 20°C , 温度变化率为 0.01°C/s 。利用式 (9) 和式 (10) 表示基体应变随时

表 1 形状记忆聚合物材料参数

E_0/MPa	E_1/MPa	β	τ_0/s	AF_c/K_b	$T_r/^{\circ}\text{C}$
3.5	115	0.6	2.5	-40 000 K	35

间变化关系。利用式 (12) 得, 屈曲开始发生的时刻 t 及对应的基底温度 T 、弹性模量 E_s 分别为

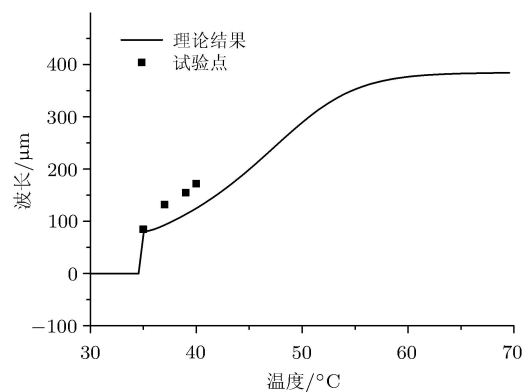
$$t = 1512\text{ s}$$

$$T = 35.1^{\circ}\text{C}$$

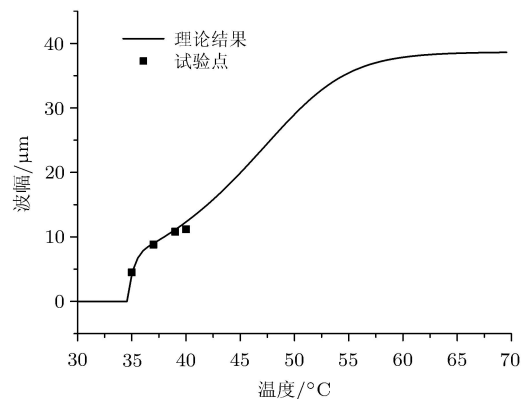
$$E_s = 514\text{ MPa}$$

利用式 (7)、式 (9) 和式 (10) 求得应变 ε 随时间变化规律, 根据温度与时间的关系, 代入式 (4) 及式 (6) 可分别求得不同温度以及时间下的波长及波幅, 波形随温度变化规律如图 6 所示, 波形随时间变化规律如图 7 所示。

由于基底温度随时间增加而增加, 因此弹性模量随时间增加而减小。由式 (3)、式 (5) 和式 (6) 得, 薄膜屈曲波形的波长及波幅均随弹性模量减小而增



(a) 波长



(b) 波幅

图 6 波长和波幅随温度变化规律

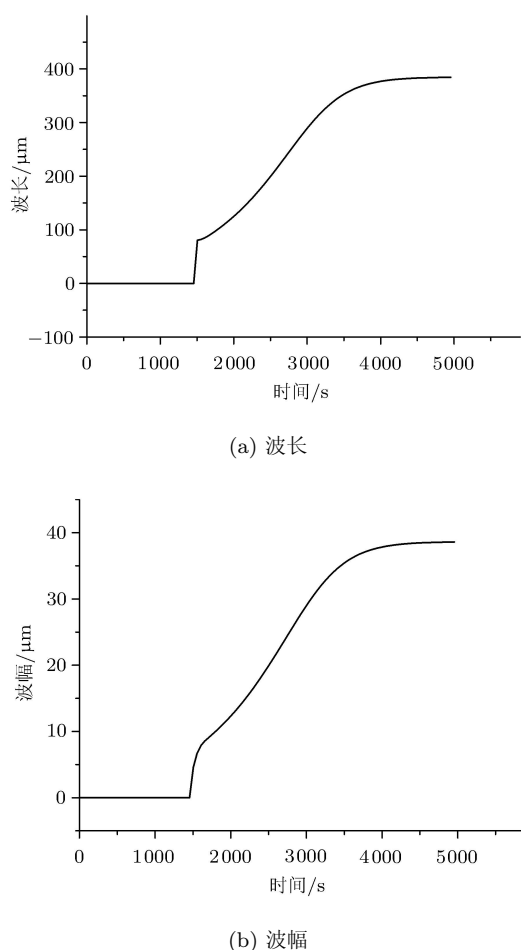


图 7 波长和波幅随时间变化规律

加。由图 6 和图 7 得, 1512 s (35.1°C) 为屈曲波形开始形成的时刻, 之后波形的波长、波幅均随时间增加而增大, 因此屈曲波形变化规律与理论分析一致。

图 6 中将不同温度下波形理论结果与试验点进行了对比。试验环境温度为 20°C ~ 40°C, 在此温度区间内, 理论结果与试验点变化趋势一致, 试验最终形成的屈曲波形的波长为 172 μm, 波幅为 11.2 μm。根据理论计算结果, 当温度为 40°C 时, 图 7 中对应的时间为 2000 s, 波长和波幅分别为 120 μm 和 11.8 μm, 理论分析结果与试验结果较为一致。

4 总 结

本文分析了形状记忆聚合物表面弹性薄膜屈曲的过程, 即在基底恢复过程中, 薄膜屈曲结构的波幅、波长随时间的变化规律。

首先, 对临界屈曲点, 即薄膜发生屈曲的时间进行了研究。然后根据试验数据, 利用三阶多项式及指数函数对材料弹性模量与温度的关系进行了拟合, 取得了良好的效果。利用一维材料应变恢复函数及拟合得到的弹性模量 - 温度曲线, 进而求解得到了薄膜屈曲波形随时间的变化规律。分析结果显示, 波形及波幅随时间均逐渐增大, 当时间增加到一定程度后, 波幅与波长呈稳定状态, 此时弹性模量不再变化。理论模型计算得到的结果与试验结果进行了对比, 二者基本规律一致。

参 考 文 献

- 1 Chen Z, Young Kim Y, Krishnaswamy S. Anisotropic wrinkle formation on shape memory polymer substrates. *Journal of Applied Physics*, 2012, 112(12): 124319-1-124319-11
- 2 Song J, Jiang H, Choi WM, et al. An analytical study of two-dimensional buckling of thin films on compliant substrates. *Journal of Applied Physics*, 2008, 103(1): 014303
- 3 Tobushi H, Hashimoto T, Hayashi S, et al. Thermomechanical constitutive modeling in shape memory polymer of polyurethane series. *Journal of Intelligent Material Systems & Structures*, 1997, 8(8): 711-718
- 4 Tobushi H, Okumura K, Hayashi S, et al. Thermomechanical constitutive model of shape memory polymer. *Mechanics of Materials*, 2001, 33(10): 545-554
- 5 刘猛. 形状记忆聚合物本构方程的构建及试验验证. [硕士学位论文]. 杭州: 浙江理工大学, 2016
- 6 周博, 刘彦菊, 冷劲松. 形状记忆聚合物的宏观力学本构模型. *中国科学: 物理学·力学·天文学*, 2010, 40(7): 896-903
- 7 Ge Q, Yu K, Ding Y, et al. Prediction of temperature-dependent free recovery behaviors of amorphous shape memory polymers. *Soft Matter*, 2012, 8(43): 11098-11105
- 8 童世虎, 董雷, 徐志洪. 形状记忆聚合物的力学性能研究. *工程与试验*, 2009, 49(3): 29-32
- 9 杨永春, 王永岗. 形状记忆聚合物及其在结构损伤模拟试验中的应用. *工程塑料应用*, 2003, 31(12): 33-35

(责任编辑: 胡 漫)