

纳米叠层金属基复合材料的力学行为

郑思婷, 赵 蕾, 郭 强

(上海交通大学 金属基复合材料国家重点实验室, 上海 200240)

摘 要: 纳米叠层金属基复合材料(nano-laminated metal matrix composites, NLMMCs)由金属和增强材料(陶瓷、非晶以及纳米碳材料)以层状形式交替叠加组成,是构型化金属基复合材料的一种典型代表。由于组分相的纳米尺度、叠层构型以及大量的异质界面, NLMMCs 表现出优异的综合力学和功能性能,成为近年来材料科学的研究热点。以金属-陶瓷型、金属-非晶型和金属-纳米碳型 NLMMCs 为主要对象,重点综述了 NLMMCs 的常见制备工艺及相应的特点,并聚焦于采用微纳力学方法探究内在和外在特征尺度、叠层取向以及界面特性等对其强韧化和变形机制影响的研究新进展。最后展望了 NLMMCs 的发展趋势,指出了 NLMMCs 在特定服役条件下的力学响应机制有待进一步研究,提出了需要开发适用于在多物理场下工作的微纳尺度材料表征和测试系统,以便更精准地探究 NLMMCs 的服役行为。

关键词: 金属基复合材料; 纳米叠层构型; 微纳力学测试; 强韧化机制; 变形机制

中图分类号: TB331 **文献标识码:** A **文章编号:** 1674-3962(2022)05-0371-12

引用格式: 郑思婷, 赵蕾, 郭强. 纳米叠层金属基复合材料的力学行为[J]. 中国材料进展, 2022, 41(5): 371-382.

ZHENG S T, ZHAO L, GUO Q. Mechanical Behavior of Nano-Laminated Metal Matrix Composites[J]. Materials China, 2022, 41(5): 371-382.

Mechanical Behavior of Nano-Laminated Metal Matrix Composites

ZHENG Siting, ZHAO Lei, GUO Qiang

(State Key Laboratory of Metal Matrix Composites, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China)

Abstract: Nano-laminated metal matrix composites (NLMMCs) are composed of metal and reinforcement (such as ceramic, amorphous and nanocarbon materials) alternately stacked in layers, which is a typical representative of “architected” metal matrix composites. Due to the presence of the nano-scale of component phases, laminated configuration and abundant heterogeneous interfaces, NLMMCs are widely reported to have excellent mechanical and functional properties. Taking metal-ceramic, metal-amorphous and metal-nanocarbon NLMMCs as the objects, this article reviews the recent development on the common fabrication processing and the corresponding features of the composites. Particular emphasis is given to the effect of internal and external dimensions, nanolaminate orientation and interface feature on the strengthening, toughening and deformation mechanisms. To meet the requirements of engineering application, the study on the mechanical behavior under special service conditions is to be carried out and a micro-/nano-scale material characterization and testing system suitable for working in multiple physical fields should be developed.

Key words: metal matrix composites; nano-laminated structure; micro-/nano-mechanical tests; strengthening and toughening mechanism; deformation mechanism

收稿日期: 2020-11-17 修回日期: 2021-01-16

基金项目: 国家自然科学基金项目(52001204, 51771111); 中国博士后创新人才支持计划项目(BX20190196); 中国博士后科学基金资助项目(2020M671114)

第一作者: 郑思婷, 女, 1997 年生, 硕士研究生

通讯作者: 赵 蕾, 女, 1988 年生, 讲师, 硕士生导师,

Email: lzhaol39@sjtu.edu.cn

郭 强, 男, 1982 年生, 教授, 博士生导师,

Email: guoq@sjtu.edu.cn

DOI: 10.7502/j.issn.1674-3962.202011021

1 前 言

向超细晶/纳米晶金属基体中引入纳米颗粒(陶瓷、非晶)或纳米碳材料(碳纳米管、石墨烯及其衍生物)形成的金属基纳米复合材料(metal matrix nanocomposites, MMNCs)由于具有优异的综合力学和功能特性,受到了研究者的广泛关注^[1-5]。然而,与传统金属基复合材料(metal matrix composites, MMCs)的发展瓶颈相似,超细晶/纳米晶基体有限的加工硬化能力,以及界面附近的应

变局域化导致了 MMNCs 强度的提高通常伴随着均匀延伸率的下降,即存在强度-塑(韧)性倒置关系,很大程度上制约了其进一步的发展与应用^[6-8]。复合构型化(即不改变基体和增强体成分,仅仅改变基体和增强体的尺寸和空间分布)是解决 MMNCs 强韧化矛盾、提升其综合性能的有效途径^[9-12]。纳米叠层结构是自然界硬质生物材料广泛采用的复合构型。通过组分相的纳米尺度,叠层构型提供的几何约束效应,以及各种内在和外在韧化机制,能够破解强韧性倒置的难题^[13, 14]。受此启发,研究者们开发了具有优异力学性能的金属-陶瓷^[15]、金属-非晶^[16]、金属-纳米碳^[17]等纳米叠层金属基复合材料(nano-laminated metal matrix composites, NLMMCs)。

对于传统单一均匀的 MMCs,研究者通常采用宏观的单轴拉伸^[18]、压缩^[19]和三点弯曲^[20]等测试方法表征复合材料的力学性能,并结合断口的形貌来推测复合材料的强韧化机制^[21]。然而,相比于传统的 MMCs, NLMMCs 中复合界面占比显著增加,界面在其强化、变形和断裂过程中发挥了极为重要的作用,上述宏观力学测试方法很难准确地评价界面对 NLMMCs 强韧化机制的影响。另外,部分 NLMMCs 以薄膜的形式存在,宏观的力学测试方法难以对其性能开展研究。近年来发展起来的微纳力学测试方法(如纳米压痕^[22]、微柱压缩与拉伸^[23-25]、微悬臂梁弯曲^[26])结合精确“定点”(site-specific)的透射电子显微镜(transmission electron microscope, TEM)分析^[27],为研究 NLMMCs 的力学性能、探索其强韧化机制提供了新思路和新方法,尤其是其满足了纳米叠层金属基复合薄膜材料力学行为研究的需求^[28, 29]。特别地,扫描电子显微镜(scanning electron microscope, SEM)和 TEM 中的原位微纳力学测试方法可以实时获得材料变形过程中的力学性能数据和显微结构变化,更加准确地阐释界面-结构-性能关系,为 NLMMCs 性能优化设计提供了强有力的支撑。因此,本文重点综述近年来 NLMMCs 的制备工艺,并聚焦于微纳力学方法探究 NLMMCs 的强韧化和变形机制的研究新进展,最后展望 NLMMCs 的发展趋势和其面临的挑战。

2 纳米叠层金属基复合材料的制备方法

2.1 磁控溅射法

磁控溅射法是目前金属-陶瓷、金属-非晶型 NLMMCs 最常使用的制备方法,其制备原理如图 1a 所示^[29]:在电场作用下,工作气体氩气(Ar)发生电离,离子化气体进入暗空间鞘层(靠近靶材的较薄区域)时会因电压降而强烈加速,之后以很高的速度撞击目标靶材,使原子、分子或原子团簇从靶材表面溅射出来。这些溅射出的靶

材粒子沉积在基板表面,形成薄膜。在制备过程中,通过调节电源功率、沉积速率和挡板闭合时间等工艺参数交替溅射 2 种不同材料,可以获得所需层厚和层厚比的金属-陶瓷和金属-非晶纳米叠层复合薄膜,如图 1b 和 1c 中的 Cu-非晶 CuZr^[30] 和 Al-SiC^[31] 纳米叠层复合薄膜所示。磁控溅射法具有沉积温度低、组元成分和厚度易控制、成膜质量好等优点,但溅射速率低的缺点限制了其在宏量化制备方面的应用,故常用于制备薄膜和模型材料。

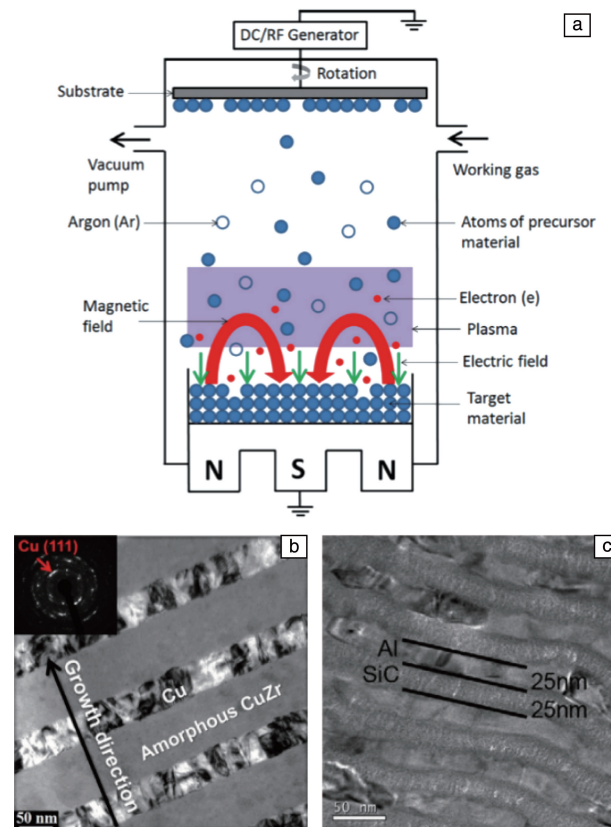


图 1 磁控溅射法制备叠层薄膜的示意图(a)^[29], Cu-非晶 CuZr 纳米叠层薄膜(插图为 Cu 的选区电子衍射图谱)(b)^[30] 和 Al-SiC 纳米叠层薄膜(c)的 TEM 照片^[31]

Fig. 1 Schematic diagram of the fabrication of one layer film using magnetron sputtering (a)^[29], TEM image of Cu-amorphous CuZr nanolaminates (the inset is selective area electron diffraction image of Cu) (b)^[30] and Al-SiC nanolaminates (c)^[31]

2.2 逐层累积法

Kim 等^[32]采用纳米级金属层和单层石墨烯逐层累积组装的方法制备了具有纳米叠层结构的石墨烯增强铜基和镍基复合材料薄膜,制备过程如图 2 所示。首先,采用化学气相沉积(CVD)方法在铜箔上生长出高质量的单层石墨烯,并通过湿法转移过程(聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)旋涂以及铜箔刻蚀等)将石墨烯转移到通过真空

蒸镀法沉积的金属(铜或镍)薄膜上;然后,通过多次循环金属纳米层沉积和石墨烯转移过程,制备出金属-石墨烯纳米叠层复合材料薄膜。在薄膜制备过程中,石墨烯的CVD生长和转移过程需要严格控制工艺参数,以免产

生表面缺陷和残留有机污染物,降低复合材料的力学和物理性能。该制备方法通用性强,适合制备模型材料以研究石墨烯增强金属基复合材料中的界面效应、强化和变形机制、内外尺寸效应等基础性科学问题。

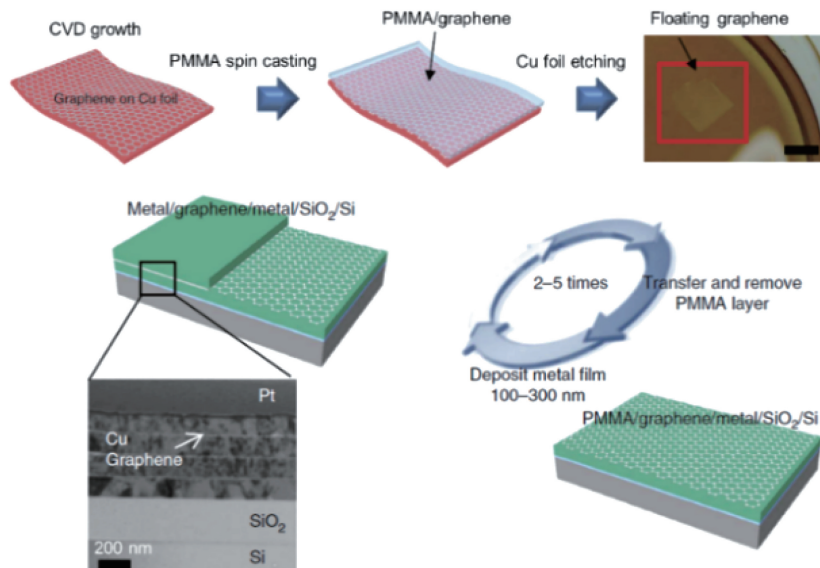


图2 逐层累积法制备纳米叠层石墨烯增强铜基和镍基复合材料的制备路线图^[32]

Fig. 2 Fabrication process of graphene reinforced Cu- and Ni- matrix nanolaminated composites based on the layer-by-layer approach^[32]

在此基础上, Yang 等^[33]采用辊间(roll-to-roll, R2R) CVD法累积多层 Cu-石墨烯复合薄膜,并结合热等静压(hot isostatic pressing, HIP)技术(图3)制备了石墨烯层数可控且平行分布的石墨烯增强 Cu 基复合材料。这种方法的优点是易于实现 NLMCs 中石墨烯大面积、高覆盖率和高度平行取向分布。同时,通过调整石墨烯生长参数可精确控制石墨烯的结晶度和层数。

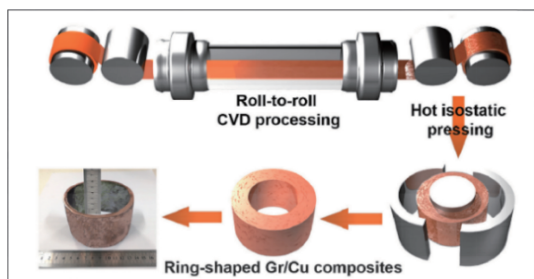


图3 辊间累积化学气相沉积法结合热等静压法制备石墨烯-Cu 纳米叠层复合材料块体的示意图^[33]

Fig. 3 Schematic diagram of the fabrication process of graphene-Cu nano-laminated bulk composites via Roll-to-Roll CVD combined with hot isostatic pressing (HIP)^[33]

2.3 片状粉末冶金法

启迪于自然界中贝壳珍珠层的“砖砌”结构,作者课题组开发了片状粉末冶金(flake powder metallurgy, FPM)

工艺,制备了多壁碳纳米管(multi-walled carbon nanotubes, MWCNTs)-Al 砖砌结构纳米叠层复合材料块体,获得了优异的强韧性^[34, 35]。典型的片状粉末冶金工艺如图4所示:首先,通过球磨获得纳米厚度的片状 Al 粉末,并对其表面进行聚乙烯醇(PVA)溶液包覆,同时分散剂的辅助下对 MWCNTs 团簇进行超声分散形成均匀的 MWCNTs 分散液;然后,将片状 Al 粉与 MWCNTs 分散液均匀混合,使得 MWCNTs 均匀吸附到 Al 片表面;最后通过冷压、烧结和热挤压等致密化过程,获得 MWCNTs-Al 纳米叠层复合材料块体。

在此基础上,作者课题组进一步改进了 FPM 工艺,制备了具有纳米叠层结构的石墨烯-Al^[17, 36-39]、石墨烯-Cu^[40-42]、单壁碳纳米管(single-walled carbon nanotubes, SWCNTs)-Al 复合材料^[43]。该制备工艺过程中,纳米碳材料没有经过高能球磨,因此制备的复合材料可以保持纳米碳材料结构的完整性。另外,此方法通用性强,适合于大规模制备复合材料块体。

2.4 共沉积法

共沉积法是将纳米碳材料分散到金属材料中的有效方法,主要包括物理喷涂沉积法和电化学沉积法。例如, Meng 等^[44]通过把均匀分散的石墨烯溶液以一定的压力喷涂到酸洗的 Mg 箔片表面获得复合单元,然后将复合单元层层堆叠,通过后续的热压和热轧工艺制备了石墨

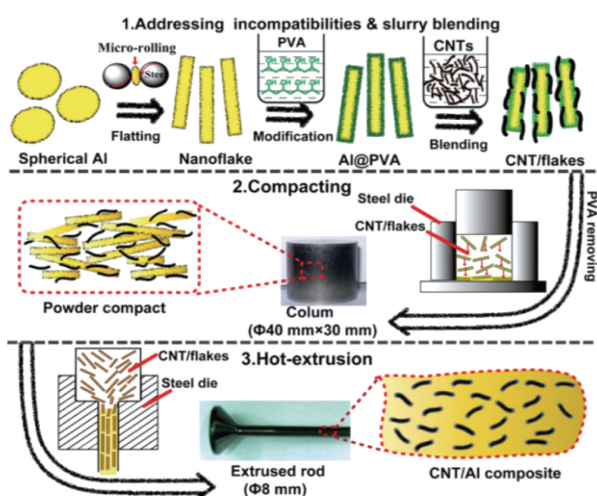


图 4 片状粉末冶金(FPM)法制备 MWCNTs-Al 纳米叠层复合材料示意图^[34]

Fig. 4 Fabrication process for MWCNTs-Al nanolaminated composites by the flake powder metallurgy (FPM) method^[34]

烯-Mg 叠层复合材料。该方法通过控制喷涂时间可以控制石墨烯的体积分数。

电化学沉积工艺中,在阴极与阳极之间施加的电流(直流、脉冲或脉冲反向电流)作用下,通过电解液中金属离子(Cu^{2+} 、 Ni^{2+} 等)的还原作用,将金属膜沉积在阴极(镀有纳米碳的金属箔)表面上,并形成叠层结构^[45]。该方法操作简单,但纳米碳与金属是非共价键结合,界面结合强度较弱。此外,未经处理的 CNTs 具有疏水性,使得金属盐很难穿透 CNTs 之间的缝隙,从而会在沉积层内形成缺陷^[12]。另外, Kang 等^[46]将选择性浸涂(selective dip-coating)和电沉积技术相结合,制备了 MWCNTs-Cu 叠层复合材料。首先,采用阴离子表面活性剂(SDS)对 MWCNTs 进行表面官能团化,获得带负电的 MWCNTs 溶液;然后把基体浸入 MWCNTs 溶液中后以 3 mm/min 的速度取出;最后,在酸性电解液中电沉积 Cu 层。由于电解液中的 Cu^{2+} 与带负电荷的官能团化 MWCNTs 层之间的电荷吸引作用, Cu 层电沉积在 MWCNTs 层表面,并填充了 MWCNTs 层的间隙;多次循环浸涂和电沉积过程,最终形成叠层结构 Cu-MWCNTs 复合材料。

2.5 累积叠轧法

累积叠轧(accumulative roll-bonding, ARB)法是将表面经过处理、尺寸相等的 2 块薄板材料在一定温度下叠轧并使其自动焊合,然后反复叠片、轧制获得叠层复合材料的工艺。ARB 后材料微观结构细化,力学性能得到大幅度提升。例如, Yao 等^[47]以铜和石墨为原料,在室温下通过 ARB 工艺循环 30 次(每次循环厚度减少 50%)制备 Cu-石墨烯叠层复合材料,如图 5 所示。该研究表

明, ARB 能把原始的石墨转化为仅有 5 层的石墨烯,且在 Cu 基体中良好分散,从而获得了高的硬度和电导率。

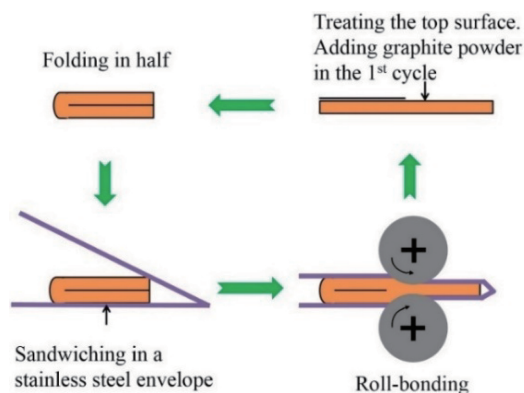


图 5 累积叠轧法制备石墨烯-铜纳米叠层复合材料的示意图^[47]

Fig. 5 Schematic diagram of the fabrication process for graphene-Cu nanolaminated composites via accumulative roll-bonding (ARB) process^[47]

3 纳米叠层金属基复合材料的强韧化机制

3.1 纳米叠层金属基复合材料的强化机制

3.1.1 界面结构特性及其对 NLMCs 强化机制的影响

纳米叠层结构的金属及其复合材料含有高密度的异质界面,这些界面通常作为位错形核源、位错湮灭阱、位错运动的障碍和位错存储和反应的择优位点^[48],进而显著影响材料的力学行为。对于金属-金属纳米叠层材料,其界面结构包括共格界面、半共格界面和非共格界面^[49],如图 6 所示。共格界面中界面上下的 2 种材料具有相同的晶体学结构和较小的晶格失配(通常为百分之几的量级)。由于较小的晶格失配导致界面具有高的共格应力,阻碍了位错穿过界面转移至相邻层,从而提高了材料强度。对于半共格界面,相邻两层之间存在较大的晶格失配,从而导致界面具有相对较低的抗剪强度。为了减少晶格畸变,在半共格界面上通常会产生失配位错^[50]。界面通过剪切以响应失配位错的应力场,并吸引

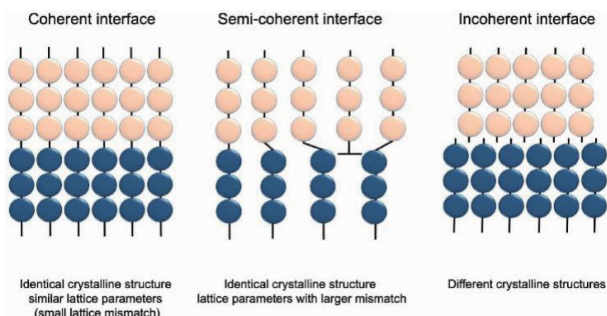


图 6 金属-金属纳米叠层材料的 3 种界面结构示意图^[49]

Fig. 6 Schematic illustration of the three kinds of interface structures in metal-metal nanolaminates^[49]

位错至界面处。半共格界面成为位错滑移传输的障碍, 从而实现材料的强化。而非共格界面是指相邻两层的界面由不同的晶体结构组成, 其具有相对较大的晶格失配。在这种界面上, 相邻层的滑移系统之间没有连续性, 其具有较低的抗剪强度, 使得位错核沿界面扩展, 被界面吸收, 阻碍了滑移传递至相邻层, 从而使材料获得了高强度^[51, 52]。金属-金属纳米叠层材料界面结构对强化机制的影响详见综述论文^[48, 50, 53, 54]。

金属-陶瓷(主要指晶体陶瓷)型 NLMMCs 的界面结构类似于金属-金属非共格界面, 其界面强化机制也与之相似。对于金属-非晶(包括金属玻璃、非晶陶瓷和 C 或 Si 族元素玻璃)型 NLMMCs, 其金属-非晶界面(crystal-line-amorphous interfaces, CAIs)由基于位错调控塑性变形的金属层和基于剪切过渡区(shear transition zones, STZs)或剪切带(shear bands, SBs)调节塑性变形的非晶层组成^[48]。CAIs 中很容易形成剪切滑移, 导致材料的屈服强度降低; 此外, CAIs 也是加载过程中位错形核和位错发射的择优位点^[55]。对于金属-纳米碳型 NLMMCs, 其界面结构也类似于非共格界面, 该类复合材料强度的提高主要来自于载荷从基体到纳米碳的跨界面传递、纳米碳抑制基体晶粒生长引起的细晶强化, 以及纳米碳通过界面阻碍位错运动引起的位错强化和背应力强化^[56, 57]。结合强度大小合适的界面才能有效传递载荷并抑制材料发生破坏性变形^[58]。然而, 通常由于大的表面能差异和低润湿性, 纳米碳材料与金属基体之间形成弱的范德华力或机械结合^[59], 使纳米碳层的承载强化未能充分发挥。研究者们通过形成强共价键^[60, 61]、表面金属化^[62]和界面反应^[63]等方法, 解决界面不相容和润湿性差的问题, 形成具有高结合强度的界面, 从而显著提高界面强度, 进一步提高材料强度。

3.1.2 内在特征尺寸对 NLMMCs 强化机制的影响

随着微纳力学测试方法的快速发展, 纳米叠层金属及其复合材料的力学行为得以深入研究。除了各组分材料的本征强度以外, 各组分的内在特征尺度也显著地影响纳米叠层金属及其复合材料的强度^[64-68]。类似于金属-金属纳米叠层材料, NLMMCs 的强度随软相金属层厚度的变化规律可以用以下 3 种强化机制来描述。当金属层厚度 h 相对较大(亚微米到微米尺度)时, NLMMCs 的强度 σ 与金属层厚度 h 遵循 Hall-Petch 关系^[31], 即 $\sigma \propto h^{-0.5}$, 此时, 软相金属层中产生大量位错并在界面处塞积, 引起材料强化。当金属层厚度 h 减小到某一临界尺寸(通常不大于 200 nm)时, 材料强度仍然单调增加, 但明显偏离 Hall-Petch 关系, 此时 NLMMCs 的强度变化规律符合约束层滑移(confined layer slip, CLS)模型^[31, 68-70],

这是因为层厚的减小使得单个金属层内难以形成位错塞积, 而是以单个位错约束在金属层内滑移的形式来调节塑性变形进而影响材料强度。然而, 对于金属-金属纳米叠层材料, 当叠层厚度进一步降低至 1~2 nm 时, 位错源开动困难, 界面不再具有阻碍位错运动的能力, 单个位错能够穿过界面, 此时材料强度达到饱和甚至有所降低, 对应于界面势垒强度(interface barrier strength, IBS)模型^[71]。

特别地, 对于非连续纳米碳增强的 NLMMCs, 除金属基体特征尺寸以外, 纳米碳材料的横向尺寸也会通过影响纳米碳的承载强化和纳米碳阻碍位错运动影响复合材料的强度。例如, Zhao 等^[56]对 Al 基体层厚为 200 nm、石墨烯(reduced graphene oxide, RGO)横向尺寸分别为 (186 ± 7) nm 和 (603 ± 58) nm 的 RGO-Al 纳米叠层复合材料开展了基于单次和多次加载-卸载循环的微柱压缩实验, 发现 RGO 尺寸较小的 RGO-Al 复合微柱具有更高的强度。通过对强化机制的分析发现, RGO 尺寸较小的复合材料承载强化贡献小于 RGO 尺寸较大的复合材料; 而 RGO 尺寸较小的复合材料中石墨烯与位错相互作用引起的各向同性硬化和动力学硬化的贡献远远大于 RGO 尺寸较大的复合材料。

3.1.3 外在尺寸对 NLMMCs 强化机制的影响

另一方面, 除了内在尺寸效应以外, 采用微纳力学方法研究 NLMMCs 力学行为所制备的微纳试样外在尺寸也会显著影响其力学行为^[72-76]。例如, Zhang 等^[77]制备了调制比(非金属层与金属层厚度比 η)相同, 单层厚度 h 从 5 nm 变化到 150 nm 的 Cu-CuZr 金属-非晶多层膜, 采用聚焦离子束(focus ion beam, FIB)加工了直径 D 从 350 nm 变化到 1425 nm 的微柱, 并对其开展了单轴压缩实验。研究结果表明, 当 h 或 D 发生单一变化时, 微柱的强度符合“越小越强(smaller is stronger)”的规律。当 h 在 10~150 nm 范围内时, 位错活动主要受晶粒控制, 微柱的强度仅依赖于内在特征尺度, 而与外在直径无关, 且强度与层厚的关系符合 CLS 模型; 当 $h \leq 10$ nm 时, 较小样品体积内包含位错的概率大大降低, 样品外表面位错行为的影响达到了与内界面相当的程度, 导致样品强度受内在和外尺寸共同影响。

此外, Wang 等^[75]从不同调制比($\eta = 0.1 \sim 3.0$)的 Cu-CuZr 金属-非晶多层膜上切割不同直径($D = 300 \sim 1500$ nm)的微柱开展单轴压缩测试, 结果如图 7 所示。可以看出, 在给定微柱直径时, 微柱强度随着调制比的增加而增大; 当调制比一定且小于 0.5 ($\eta = 0.1$ 和 0.3)时, 微柱强度随直径的增大而降低, 呈现“越小越强”的趋势; 而当调制比大于 0.5 时, 微柱强度随直径的增大而增大, 呈现“越大越强”的趋势。这主要是由于复

合薄膜在小的调制比(0.1)时,非晶的层厚小于剪切带形成需要的临界尺寸,剪切带(shear bands, SBs)难以形成,因此,更厚的软相金属层主导微柱的塑性变形。随着微柱直径的减小,金属层中位错源的数量减少,而且微柱中含有大晶粒的概率降低,因此,位错活动需要在较高的应力下进行,因此,微柱尺寸越小,其强度越高。当调制比大时($\eta=3.0$),非晶层($<100\text{ nm}$)通常包含一定数量的内部缺陷,在这些缺陷处可以轻松激活剪切过渡区(shear transformation zones, STZs)并聚集形成SBs。随着直径减小,单个SBs形成引起的软化更容易发生在较小的微柱中。

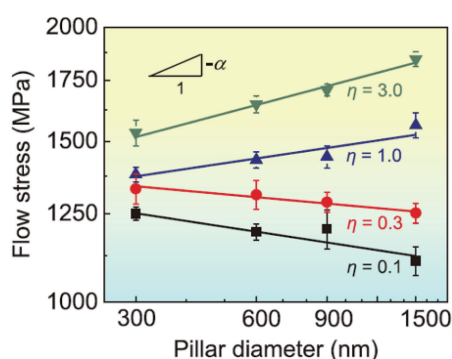


图7 不同调制比 η 下Cu-CuZr微柱2%流变应力与微柱直径的关系图^[75]

Fig. 7 The flow stress at 2% strain offset of Cu-CuZr micro-pillars obtained from the true stress vs strain curves as a function of pillar diameter with different modulation ratio η ^[75]

在纳米碳-金属型NLMMCs中,Zhao等^[36]和Hu等^[76]分别研究了90°(叠层方向垂直于加载方向)和0°(叠层方向平行于加载方向)RGO-Al纳米叠层复合微柱的外在尺寸效应。研究结果表明,直径大小对90°RGO-Al复合微柱的强度没有明显的影响。而对于0°RGO-Al复

合微柱,当微柱直径比铝层厚度($\sim 200\text{ nm}$)大一个数量级时,微柱直径对其强度没有明显的影响,微纳米尺度下材料的力学性能能够反映宏观复合材料的力学性能。

3.1.4 叠层取向对NLMMCs强化机制的影响

叠层取向与加载方向之间的相对角度会影响NLMMCs中的应力状态,进而影响其强度。例如,Mayer等^[78]对0°、45°和90°的Al-SiC纳米叠层复合微柱开展单轴压缩实验,发现0°微柱中增强相SiC层处于承载方向,强度最高;45°微柱由于协调剪切变形更容易,强度最低;90°微柱中SiC层出现的裂纹限制了其强度提高。

另外,Fu等^[79]从RGO-Al宏观块体材料中切割0°和90°纳米叠层RGO-Al复合微柱,并对其开展了单轴微拉伸实验(图8a)。结果表明,0°RGO-Al微柱的屈服强度显著高于90°RGO-Al微柱,且都高于相应的纯铝微柱,如图8b所示。经计算分析得知,90°RGO-Al微柱强度的提高主要来自于RGO/Al界面对位错的阻碍作用,而0°RGO-Al复合微柱的强化来自于RGO显著的承载强化以及RGO/Al界面对位错的阻碍作用。

3.2 纳米叠层金属基复合材料的韧化机制

NLMMCs由于纳米尺度、叠层构型以及大量异质界面的存在,被认为具有比传统单一均匀MMCs更加优异的断裂韧性。特别是,近些年随着微纳力学技术的发展,NLMMCs的韧化机制得到了更加深入的阐释。在金属-陶瓷型NLMMCs领域,界面的存在使脆性陶瓷层中产生的裂纹发生偏转,改变了裂纹扩展的路径,并且陶瓷层中也有可能产生位错^[80],实现与韧性金属层的塑性共变形,从而增加复合材料的韧性。Yang等^[81]采用微柱劈裂法(micro-pillar splitting,图9a)和缺口悬臂梁弯曲法(图9b)研究了叠层厚度和叠层取向对Al-SiC纳米叠层复合薄膜断裂韧性的影响。结果发现,Al-SiC纳米叠层复合薄膜在载荷平行于叠层时的断裂韧性高于其在

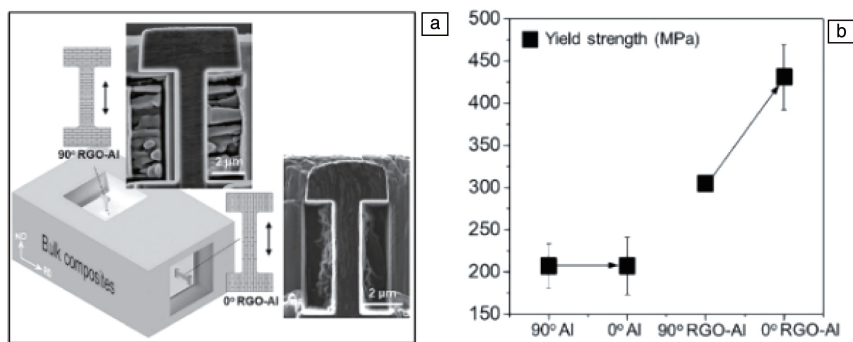


图8 0°和90°纳米叠层RGO-Al复合微拉伸试样示意图和SEM照片,其中拉伸方向由黑色箭头标出(a);0°和90°纳米叠层RGO-Al和纯Al的屈服强度对比图(b)^[79]

Fig. 8 Schematic illustration and SEM images of as-fabricated microtensile composite specimens with 90° and 0° RGO laminate orientations (a); summaries of the 0.2% offset yield strength of 90° and 0° RGO-Al composite and pure Al samples (b)^[79]

垂直于叠层时的断裂韧性。当载荷平行于叠层时, 裂纹扩展沿着金属/陶瓷界面发生, 并且由于 Al 层塑性变形的作用, 断裂韧性随层厚的增加而增加, 在层厚为 100 nm 时达到最大。当载荷垂直于叠层时, 裂纹扩展到界面处出现了偏转, 断裂韧性随着层厚的减小而增加, 在层厚为 25 nm 时达到最大, 这归因于层厚减小导致了更高的界面密度。

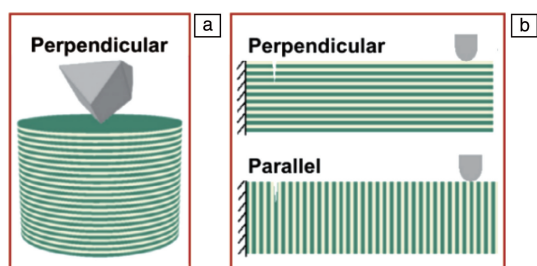


图9 微柱劈裂法(a)和缺口悬臂梁弯曲法(b)研究 Al-SiC 纳米叠层复合材料断裂韧性的加载示意图^[81]

Fig. 9 Schematic diagrams of the load directions for the fracture toughness testing of Al-SiC nanolaminates via micro-splitting (a) and notched cantilevers bending methods (b)^[81]

在金属-非晶型 NLMCs 领域, 非晶层具有力学不稳定性, 而叠层结构限制了非晶层中裂纹和剪切带的形

成和扩展, 并且在一定条件下可以实现非晶层和金属层之间产生塑性共变形, 提高复合材料的塑韧性^[48]。为了揭示金属-非晶纳米叠层复合薄膜的韧化机制和潜在的破坏机理, Wang 等^[82]制备了层厚为 50 nm、宽度 B 为 500~3500 nm 的 Ag-CuZr 和 Mo-CuZr 多层膜悬臂梁(图 10a), 并通过 SEM 中的原位弯曲实验研究多层膜组分和悬臂梁外在尺寸对断裂行为的影响。结果如图 10b 所示, 当悬臂梁宽度在 500~3500 nm 范围内变化时, Ag-CuZr 多层膜的断裂韧性总是高于 Mo-CuZr 多层膜。另外, Ag-CuZr 多层膜的断裂韧性随悬臂梁宽度的增加而增加; 而 Mo-CuZr 多层膜的断裂韧性随悬臂梁宽度的增加而减小, 当悬臂梁宽度超过~1500 nm 时保持不变。对其断裂机理的分析发现, Ag-CuZr 悬臂梁中非晶 CuZr 层中开动的微裂纹在多层结构中出现了互连(图 10c), 而 Mo-CuZr 悬臂梁中的裂纹破坏性地穿过多层薄膜扩展(图 10d), 导致了 Ag-CuZr 悬臂梁表现为韧性断裂, 而 Mo-CuZr 悬臂梁表现为脆性断裂, 且 Ag-CuZr 断裂韧性高于 Mo-CuZr 多层薄膜。非晶纳米叠层复合薄膜的断裂韧性随成分和悬臂梁尺寸的变化主要归因于韧性相的塑性能耗散, 裂纹尖端钝化、裂纹桥接以及塑性区应变梯度对裂纹扩展的影响等韧化机制。

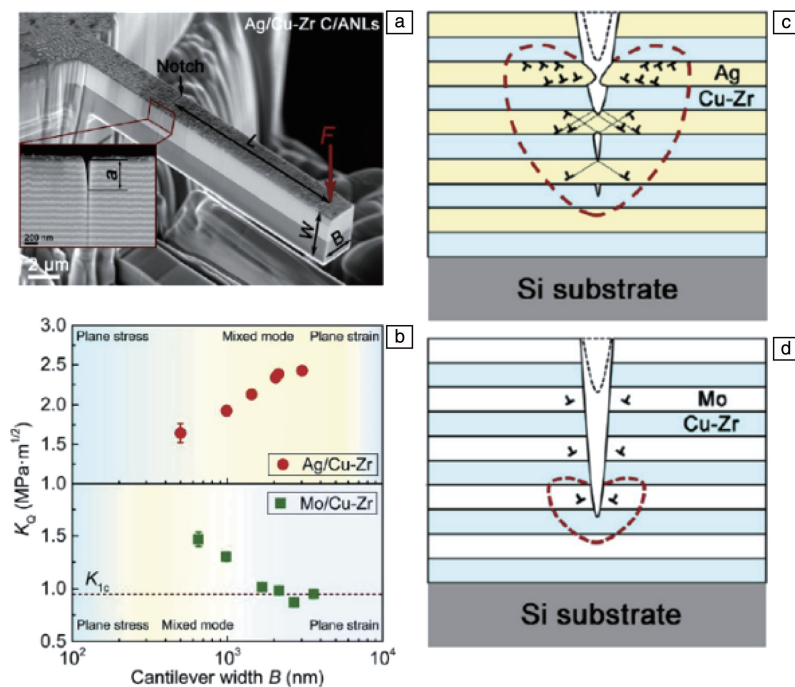


图10 金属-非晶纳米叠层复合薄膜的断裂韧性及断裂机制^[82]: (a)典型的多层膜悬臂梁的 SEM 照片, (b) Ag-CuZr 和 Mo-CuZr 悬臂梁的断裂韧性随宽度 B 的变化规律, (c, d) Ag-CuZr(c) 和 Mo-CuZr(d) 悬臂梁的断裂机制示意图

Fig. 10 Fracture toughness and fracture mechanisms of metal-amorphous nanolaminated composite films^[82]: (a) typical SEM image of the Ag-CuZr micro-cantilevers, (b) cantilever width B -dependent fracture toughness K_Q in Ag-CuZr and Mo-CuZr nanolaminates, (c, d) schematic diagrams of fracture mechanisms in Mo-CuZr (c) and Ag-CuZr (d) micro-cantilevers

另外, Zhang 等^[83]采用三点弯曲实验研究了叠层厚度为 50 nm 的 Cu-CuZr 多层膜的断裂行为, 发现了多层膜中存在的自增韧机制: 由金属/非晶界面协调大量剪切带滑动来屏蔽裂纹扩展(即外在韧化), 同时, 非晶纳米层的脆-韧转变能够通过变形来诱导去玻璃化。

在金属-纳米碳型 NLMMCs 领域, 由于纳米碳材料具有超高的强度, 裂纹通常在金属层中或金属/纳米碳界面靠近金属一侧产生, 界面处纳米碳的存在使裂纹扩展受阻而产生裂纹偏转和裂纹桥接现象, 实现复合材料在提高强度的同时不损失韧性^[12, 14]。研究者们采用了从宏观到微观的跨尺度方法研究了复合材料在不同尺度下的断裂行为。例如, 李赞^[84]采用 SEM 中的原位三点弯曲实验研究了纳米叠层 RGO-Al 复合材料的断裂韧性, 结果如图 11 所示。RGO-Al 复合材料的抗弯强度显著高于纯铝基体, 且其断裂时的应变仍略高于纯铝基体, 显示了更优异的断裂韧性(图 11a)。通过对断口及其附近 SEM 形貌分析发现, 裂纹尖端塑性形变(图 11b)引起的本征韧

化机制和裂纹在界面偏转(图 11c 和 11d)引起的外在韧化机制共同导致了纳米叠层 RGO-Al 复合材料优异的断裂韧性。另外, 李赞^[84]通过 TEM 中原位拉伸实验进一步阐明了界面在复合材料断裂中的作用机制。结果发现, 随着形变的进行, 首先在具有较大应力集中的石墨烯/铝界面处产生微孔, 而后续形变过程中在主裂纹后部产生明显的裂纹桥接现象, 裂纹后部跨连的铝基体通过塑性变形消弱了裂纹尖端的应力集中、减弱了裂纹扩展趋势与速率, 进而裂纹传播路径呈现锯齿状结构。

在此基础上, 刘志颖^[85]采用原位微悬臂梁弯曲实验, 研究了叠层取向对纳米叠层 RGO-Al 复合材料断裂行为的影响。结果发现, 90°取向(预制裂纹垂直于叠层取向)RGO-Al 悬臂梁的断裂韧性显著高于 0°取向(预制裂纹平行于叠层取向)RGO-Al 悬臂梁。这主要是由于 0°取向悬臂梁中裂纹从 RGO/Al 弱界面直接扩展, 而 90°取向悬臂梁中裂纹从铝晶粒内部扩展到界面处时发生了偏转。

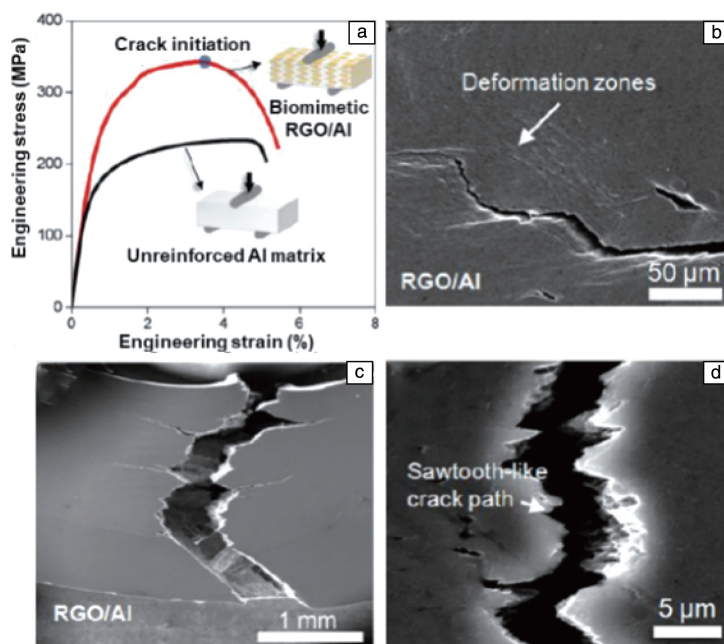


图 11 纳米叠层 RGO-Al 复合材料的韧化机制^[84]: (a) 纳米叠层 RGO-Al 复合材料及铝基体三点弯曲实验对应的工程应力-应变曲线, (b) RGO-Al 复合材料中裂纹尖端的 SEM 照片, (c) RGO-Al 复合材料弯曲断口的 SEM 照片, (d) RGO-Al 复合材料裂纹扩展过程中较高放大倍数下的 SEM 照片

Fig. 11 Toughening mechanism of nanolaminated RGO-Al composites^[84]: (a) engineering stress-strain curves for nanolaminated RGO-Al composite and Al matrix samples, (b) SEM image of crack tip in RGO-Al composites, (c) SEM image of fracture morphology for RGO-Al composites, (d) magnified SEM image of localized crack for RGO-Al composites during loading

4 纳米叠层金属基复合材料的变形机制

大量的研究表明, NLMMCs 的塑性变形可以通过将其中的异质界面作为位错源或位错阻碍位错运动来实

现^[80, 86]。因此, 异质界面的类型(金属-陶瓷型、金属-非晶型、金属-纳米碳型)以及界面密度(即叠层厚度)显著地影响着 NLMMCs 的变形行为。

对于金属-陶瓷型 NLMMCs, 在层厚较大的情况下

(大于几十纳米), 当对其微尺度试样施加单轴压缩载荷时, 由于金属的屈服强度较低, 金属层首先发生塑性变形, 并在界面处沉积位错, 产生残余应力, 即陶瓷层中的拉应力和金属层中的压应力, 两者都随界面处位错密度的增加而增加。进一步提高载荷, 残余应力也随之增大, 陶瓷层开始断裂, 同时金属层继续进行塑性变形而被挤出^[74]。最后, 多个陶瓷层发生断裂, 直到材料整体不能承受此载荷时微尺度试样出现破坏性的断裂。另外, 随着层厚的减小, 金属和陶瓷可以进行塑性共变形。例如, Li 等^[80]通过对叠层厚度分别为 50, 5 和 2.7 nm 的 Al-TiN 纳米多层膜开展 TEM 下原位纳米压痕实验, 研究其变形行为。结果发现, 当层厚减小到 5 和 2.7 nm 时, 叠层薄膜中 Al 层和 TiN 层出现了明显的共变形。原因如下: 金属层产生的位错受金属/陶瓷异质界面约束而在金属层中滑移, 并堆积在界面处。由金属层和陶瓷层塑性不相容引起的残余应力、相邻界面中堆积位错之间的相互作用力和外加应力导致了陶瓷层中切应力的产生。由于 TiN 层中的应力远高于 Al 层, 因此叠层薄膜承受的最大应力由金属 Al 层中的约束层滑移应力决定。减小金属层厚度可以有效提高金属层的强度, 进而提高最大施加应力。因此, 当金属层层厚减小至几纳米时, 由于外加应力高、相互作用力强, 陶瓷层与金属层发生塑性共变形行为。

对于金属-非晶型 NLMCs, 非晶层(特别是金属玻璃)中的塑性变形主要由较小应变下的 STZs 和较大应变下的 SBs 来调节^[87, 88]。在变形过程中, 金属层首先发生塑性变形, 并在 CAIs 处沉积位错, 使非晶层中的 STZs 被激活, 随着变形量的增加, STZs 的密度提高, 导致非晶层中产生 SBs。金属-非晶型 NLMCs 的变形方式主要包括均匀塑性变形和剪切局域化, 并且二者在某一临界层厚时可发生转变。Cui 等^[88]研究了 Cu 层厚度一定(18 nm)、CuZr 层厚度变化(4~100 nm)的 Cu-CuZr 多层膜的变形机制。结果发现, 在 CuZr 层厚度小于 20 nm 时, 多层膜均匀变形, 无剪切带的形成; 当 CuZr 层厚度大于 20 nm 时, 多层膜出现了塑性诱导的剪切失稳, 变形与剪切带的形成、扩展有关。这种由非晶层厚度引起的变形机制转变可通过图 12 进行阐明。当 CuZr 层厚度小于 20 nm 时(图 12a), 塑性变形在 Cu 层中通过 $\{111\}$ 平面上滑移位错的形核和扩展进行。在垂直于层的压应力作用下, 位错在 Cu 中扩展并堆积在 Cu/CuZr 界面。此时非晶 CuZr 层承受了来自 Cu 层和 CuZr 层塑性不相容产生的拉应力、相邻界面之间位错相互作用力以及外在施加应力, 从而在非平行于 CuZr 层的平面上产生剪应力。非晶层越薄, 产生的剪应力越大, 从而使得非晶层中形

成 STZs, 并扩展通过该非晶层。另外, 在界面处沉积的位错作为应力/应变集中点, 促进了 STZs 在 CuZr 层界面形成, 实现了塑性变形从 Cu 层传递到 CuZr 层。因此, 多层膜显示出了塑性共变形的特点。而当非晶 CuZr 层厚度大于 20 nm 时(图 12b), CuZr 层中的拉应力和相邻界面位错间的相互作用力减小, 使得在界面处形成的 STZs 扩展速度因剪应力的减小而减慢。当增加外在压应力时, CuZr 层中产生的剪应力使得 STZs 聚集并形成剪切带, 在剪切带向相邻界面扩展过程中触发 Cu 层塑性变形。为了适应相邻 CuZr 层中的局部剪切变形, Cu 层中位错在 $\{111\}$ 平面上滑移并形成滑移带, 从而限制了平行于 Cu $\{111\}$ 平面的 CuZr 层中的剪切带扩展, 最终剪切带可能终止于 Cu/CuZr 界面。

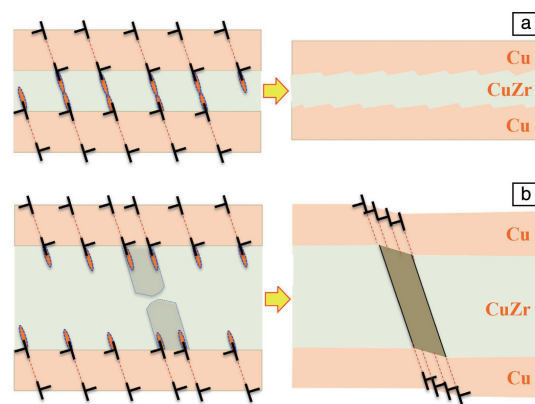


图 12 不同 CuZr 层厚下 Cu-CuZr 多层膜的变形模式示意图^[88]
Fig. 12 Schematics of plastic deformation modes in Cu-CuZr multilayers with different CuZr layer thickness^[88]

另一方面, Guo 等^[30]采用微柱压缩的方法研究了非晶层厚一定(100 nm), 而金属层厚度变化(10, 50 和 100 nm)的 Cu-CuZr 的变形行为。结果发现, 随着金属层厚度的减小, 多层膜的变形方式由均匀塑性变形转变为高度剪切局域化变形。图 13 显示了金属层厚度对金属-非晶多层膜变形机制的影响示意图。当 Cu 层的厚度仅为

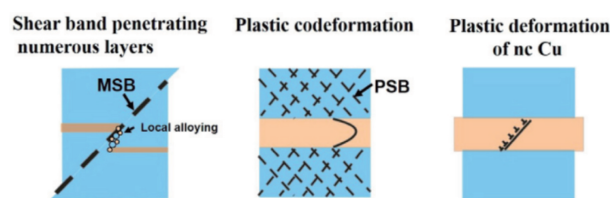


图 13 Cu-CuZr 多层膜中变形机制随 Cu 层厚度变化的示意图
(MSB: 成熟剪切带; PSB: 初始剪切带)^[30]

Fig. 13 Schematic diagram of the deformation mechanisms in the Cu-CuZr nanolaminates as a function of Cu layer thickness (MSB: mature shear band; PSB: preliminary shear band)^[30]

10 nm(样品编号为 MS10)时, 纳米晶 Cu 层内部的位错滑移不能承受施加的应变。因此, 这些薄的 Cu 层难以阻止源自非晶 CuZr 层的剪切带跨相传播。作用在非晶/晶体界面上的应力集中导致沿着剪切带路径产生局部大量的位错。当这些位错穿过 CuZr/Cu 界面时, 会将 Cu 原子拖入 CuZr 层, 导致化学混合, 甚至使晶体层局部非晶化。因此, MS10 样品的变形主要受到非晶中剪切带及其相间的化学混合的影响。当 Cu 层的厚度增加到 100 nm (MS100)时, 由于与非晶 CuZr 层相比, 其初始流变应力较低, 因此微柱初始变形仅由 Cu 层承担。传统的塑性变形机制, 如: 位错增殖、晶内位错滑移和塞积引起的加工硬化, 首先会主导 Cu 变形。随着变形的进行, Cu 层中的流变应力因应变硬化迅速接近非晶层的流变应力。当 Cu 层为“理想”厚度(如 50 nm, MS50)时, 2 种类型材料的强化作用耦合在一起, Cu 和 CuZr 层发生塑性共变形, 导致其强度的提高超过了其它厚度的复合薄膜。而 CuZr 非晶层能够抑制其内部的剪切带从而保持良好的本征塑性。Cu 层可以通过其内部非局域化的塑性变形进一步消散非晶层中剪切带引起的局部载荷。由于 Cu 层和非晶层的耦合变形机制, 在 MS50 样品中实现了强而韧的力学响应。

对于金属-纳米碳型 NLMMCs, 其变形方式主要是金属层的塑性变形及纳米碳层对其的约束, 即通过界面与位错的相互作用来调节复合材料的变形。金属-纳米碳界面能够阻碍位错穿过界面, 从而影响复合材料的力学响应^[32, 37, 40, 56]。例如, Kim 等^[32]采用离位和 TEM 中原位微柱压缩的方法研究了石墨烯-Cu 和石墨烯-Ni 复合材料的力学行为(图 14), 发现由于界面对位错的阻碍作用, 在 Cu 层中形核的位错最终堆积在界面处, 导致微柱塑性变形主要发生在其顶部(图 14b), 同时提高了复合材料的强度。在此基础上, Zhao 等^[37]通过对铝层厚度为 200 nm 的纳米叠层 RGO-Al 复合微柱开展不同应变速率下的单轴压缩测试, 结合应变速率敏感性指数 m 值和激活体积

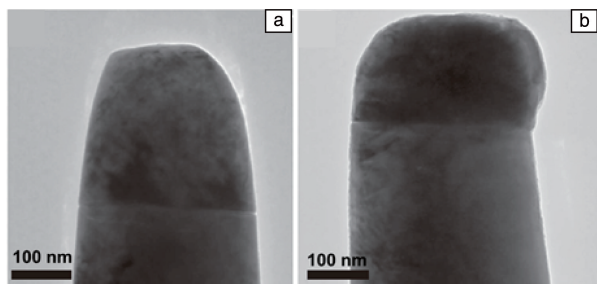


图 14 含有单个石墨烯界面的 Cu-石墨烯纳米柱变形前(a)和变形后(b)的 TEM 照片^[32]

Fig. 14 TEM images of a Cu-graphene nanopillar with a single layer of graphene before (a) and after (b) compression testing^[32]

V^* 值, 以及精确定点的微柱横截面显微结构分析, 进一步证实了 RGO/Al 界面比 Al/Al 晶界对位错的阻碍更有效, 进而使得在没有石墨烯承载的情况下 RGO/Al 复合材料仍然比纯铝材料有更高的强度。另外, 发现了与应变速率有关的变形机制: 低应变速率下($<5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$), 约束层滑移主导微柱的塑性变形; 高应变速率下($\geq 5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$), 位错被内层界面阻碍主导了微柱的塑性变形。

5 结 语

纳米叠层金属基复合材料(NLMMCs)因其优异的综合特性, 成为近年来的研究热点。由于大量异质界面的存在, NLMMCs 的力学行为不是简单地遵循混合法则, 而是取决于内在与外在特征尺度、叠层取向以及界面特性等诸多因素。采用微纳力学研究方法结合精确定点的显微结构分析, 能够深入探究 NLMMCs 的强韧化和变形机制。为了把 NLMMCs 推广应用于工程各个领域, 亟需对其在特定服役条件下的力学行为和特性进行系统深入的基础研究和应用研究。目前, 已有研究组对 NLMMCs 在循环加载^[38, 89]、辐照^[39, 90]、高温^[91, 92]以及高速冲击^[93, 94]等条件下的力学行为开展了探索性的研究。相应地, 材料领域科学家和设备工程师应合作开发适用于多物理场下工作的微纳尺度材料测试和表征系统, 以满足研究需要, 推动材料科学的发展。

参考文献 References

- [1] LIN Z G, YANG Q, TAN C H, *et al.* Journal of Materials Science [J], 2008, 43(23/24): 7344-7348.
- [2] REZAEI M R, SHABESTARI S G, RAZAVI S H. Journal of Materials Engineering and Performance[J], 2019, 28(5): 3031-3040.
- [3] CHOI H J, SHIN J H, BAE D H. Composites Science and Technology [J], 2011, 71(15): 1699-1705.
- [4] KHOSHGHADAM M, RAHMANIGARD R, OROVCIK L, *et al.* Materials Science and Engineering: A[J], 2020, 772: 138820.
- [5] SARAVANAN M, PILLAI R M, RAVI K R, *et al.* Composites Science and Technology[J], 2007, 67(6): 1275-1279.
- [6] TJONG S C. Advanced Engineering Materials[J], 2007, 9(8): 639-652.
- [7] MORTENSEN A, LLORCA J. Annual Review of Materials Research [J], 2010, 40: 243-270.
- [8] ZHAO Z Y, BAI P K, DU W B, *et al.* Carbon[J], 2020, 170: 302-326.
- [9] 郭强, 李志强, 赵蕾, 等. 中国材料进展[J], 2016, 35(9): 641-650.
- [10] GUO Q, LI Z Q, ZHAO L, *et al.* Materials China[J], 2016, 35(9): 641-650.
- [10] 耿林, 范国华. 中国材料进展[J], 2016, 35(9): 686-693.
- GENG L, FAN G H. Materials China[J], 2016, 35(9): 686-693.

- [11] 王慧远, 李超, 李志刚, 等. 金属学报[J], 2019, 55(6): 683–691.
WANG H Y, LI C, LI Z G, *et al.* Acta Metall Sin[J], 2019, 55(6): 683–691.
- [12] ZHANG X, ZHAO N Q, HE C N. Progress in Materials Science[J], 2020, 113: 100672.
- [13] ESPINOSA H D, RIM J E, BARTHELAT F, *et al.* Progress in Materials Science[J], 2009, 54(8): 1059–1100.
- [14] SHU R, JIANG X S, SUN H L, *et al.* Composites Part A: Applied Science and Manufacturing[J], 2020, 131: 105816.
- [15] LI N, LIU X Y. Journal of Materials Science[J], 2018, 53(8): 5562–5583.
- [16] KNORR I, CORDERO N M, LILLEODDEN E T, *et al.* Acta Materialia[J], 2013, 61(13): 4984–4995.
- [17] LI Z, GUO Q, LI Z Q, *et al.* Nano Letters[J], 2015, 15(12): 8077–8083.
- [18] MIRACLE D B, PANDEY A B, MAJUMDAR B S. Acta Materialia[J], 2001, 49(3): 405–417.
- [19] LI T, JIANG F, OLEVSKY E A, *et al.* Materials Science and Engineering: A[J], 2007, 443(1/2): 1–15.
- [20] HASSAN H A, LEWANDOWSKI J J. Scripta Materialia[J], 2009, 61(11): 1072–1074.
- [21] LAUNEY M E, MUNCH E, ALSEM D H, *et al.* Journal of the Royal Society Interface[J], 2010, 7(46): 741–753.
- [22] OLIVER W C, PHARR G M. Journal of Materials Research[J], 1992, 7(6): 1564–1583.
- [23] GREER J R, DE HOSSON J T M. Progress in Materials Science[J], 2011, 56(6): 654–724.
- [24] 张学习, 郑忠, 高莹, 等. 金属学报[J], 2018, 55(1): 109–125.
ZHANG X X, ZHENG Z, GAO Y, *et al.* Acta Metall Sin[J], 2018, 55(1): 109–125.
- [25] KIENER D, GROSINGER W, DEHM G, *et al.* Acta Materialia[J], 2008, 56(3): 580–592.
- [26] DI MMAIO D, ROBERTS S G. Journal of Materials Research[J], 2005, 20(2): 299–302.
- [27] BUREK M J, GREER J R. Nano Letters[J], 2010, 10(1): 69–76.
- [28] KIENER D, HOSEMAN P, MALOV S A, *et al.* Nature Materials[J], 2011, 10(8): 608–613.
- [29] NASIM M, LI Y, WEN C. Materialia[J], 2019, 6: 100347.
- [30] GUO W, JAGLE E, YAO J, *et al.* Acta Materialia[J], 2014, 80: 94–106.
- [31] YANG L W, MAYER C, CHAWLA N, *et al.* Philosophical Magazine[J], 2016, 96(32–34): 3336–3355.
- [32] KIM Y, LEE J, YEOM M S, *et al.* Nature Communications[J], 2013, 4(1): 1–7.
- [33] YANG K M, MA Y C, ZHANG Z Y, *et al.* Acta Materialia[J], 2020, 197: 342–354.
- [34] JIANG L, LI Z, FAN G, *et al.* Carbon[J], 2012, 50(5): 1993–1998.
- [35] JIANG L, LI Z, FAN G L, *et al.* Scripta Materialia[J], 2012, 66(6): 331–334.
- [36] ZHAO L, GUO Q, LI Z, *et al.* Materials Research Letters[J], 2018, 6(1): 41–48.
- [37] ZHAO L, GUO Q, LI Z, *et al.* International Journal of Plasticity[J], 2018, 105: 128–140.
- [38] LU A L, ZHAO L, LIU Y, *et al.* Metallurgical and Materials Transactions A[J], 2020, 51(4): 1463–1468.
- [39] LIU Y, ZENG Y, GUO Q, *et al.* Acta Materialia[J], 2020, 196: 17–29.
- [40] LI Z, ZHAO L, GUO Q, *et al.* Scripta Materialia[J], 2017, 131: 67–71.
- [41] LI Z, WANG H, GUO Q, *et al.* Nano Letters[J], 2018, 18(10): 6255–6264.
- [42] LI Z, FU X D, GUO Q, *et al.* International Journal of Plasticity[J], 2018, 111: 253–265.
- [43] SHI Y, ZHAO L, LI Z, *et al.* Materials Science and Engineering: A[J], 2019, 764: 138273.
- [44] MENG L L, HU X S, WANG X J, *et al.* Materials Science and Engineering A[J], 2018, 733: 414–418.
- [45] PAVITHRA C L P, SARADA B V, RAJULAPATI K V, *et al.* Scientific Reports[J], 2014, 4(1): 1–7.
- [46] KANG T J, YOON J W, KIM D I, *et al.* Advanced Materials[J], 2007, 19(3): 427–432.
- [47] YAO G C, MEI Q S, LI J Y, *et al.* Materials & Design[J], 2016, 110: 124–129.
- [48] WANG J, ZHOU Q, SHAO S, *et al.* Materials Research Letters[J], 2017, 5(1): 1–19.
- [49] SÁENZ-TREVIZO A, HODGE A M. Nanotechnology[J], 2020, 31(29): 292002.
- [50] NASIM M, LI Y, WEN M, *et al.* Journal of Materials Science & Technology[J], 2020, 50: 215–244.
- [51] HOAGLAND R G, HIRTH J P, MISRA A. Philosophical Magazine[J], 2006, 86(23): 3537–3558.
- [52] WANG J, HOAGLAND R G, HIRTH J P, *et al.* Acta Materialia[J], 2008, 56(13): 3109–3119.
- [53] WANG J, MISRA A. Current Opinion in Solid State and Materials Science[J], 2011, 15(1): 20–28.
- [54] ZHOU Q, XIE J Y, WANG F, *et al.* Acta Mechanica Sinica[J], 2015, 31(3): 319–337.
- [55] WANG Y M, HAMZA A V, BARBEE JR T W. Applied Physics Letters[J], 2007, 91(6): 061924.
- [56] ZHAO L, GUO Q, LI Z, *et al.* International Journal of Plasticity[J], 2019, 116: 265–279.
- [57] JIANG Y Y, TAN Z Q, FAN G L, *et al.* Carbon[J], 2020, 158: 449–455.
- [58] BONDERER L J, STUDART A R, GAUCKLER L J. Science[J], 2008, 319(5866): 1069–1073.
- [59] GUO Q, KONDOH K, HAN S M. MRS Bull[J], 2019, 44(1): 40–45.

- [60] KIM K T, CHA S I, GEMMING T, *et al.* *Small*[J], 2008, 4(11): 1936–1940.
- [61] LEE B, KOO M Y, *et al.* *Carbon*[J], 2014, 78: 212–219.
- [62] ZHANG D, ZHAN Z. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2016, 658: 663–671.
- [63] ZHOU W, BANG S, KURITA H, *et al.* *Carbon*[J], 2016, 96: 919–928.
- [64] LOTFIAN S, MAYER C, CHAWLA N, *et al.* *Thin Solid Films*[J], 2014, 571: 260–267.
- [65] WANG M, WANG D, KUPS T, *et al.* *Materials Science and Engineering: A*[J], 2015, 644: 275–283.
- [66] ZHU J, GU C, XU K W, *et al.* *Materials Science and Engineering: A* [J], 2018, 738: 219–228.
- [67] FAN Z, LIU Y, XUE S, *et al.* *Applied Physics Letters*[J], 2017, 110 (16): 161905.
- [68] ZHAO L, GUO Q, SHI Y, *et al.* *Metallurgical and Materials Transactions A*[J], 2019, 50(3): 1113–1118.
- [69] CUI Y, HUANG P, WANG F, *et al.* *Thin Solid Films*[J], 2015, 584: 270–276.
- [70] PENG W. *Mechanics of Materials*[J], 2020, 141: 103270.
- [71] MISRA A, HIRTH J P, HOAGLAND R G. *Acta Materialia*[J], 2005, 53(18): 4817–4824.
- [72] 张金钰, 刘刚, 孙军. *金属学报*[J], 2014, 50(2): 169–182.
ZHANG J Y, LIU G, SUN J. *Acta Metallurgica Sinica*[J], 2014, 50 (2): 169–182.
- [73] 张金钰, 刘刚, 孙军. *中国材料进展*[J], 2016, 35(5): 374–380.
ZHANG J Y, LIU G, SUN J. *Materials China*[J], 2016, 35(5): 374–380.
- [74] DANG C, OLUGBADE T, FAN S, *et al.* *Vacuum*[J], 2018, 156: 310–316.
- [75] WANG Y Q, LIANG X Q, WU K, *et al.* *Materials Science and Engineering: A*[J], 2018, 732: 29–34.
- [76] HU Y H, GUO Q, ZHAO L, *et al.* *Scripta Materialia*[J], 2018, 146: 236–240.
- [77] ZHANG J Y, LIU G, LEI S Y, *et al.* *Acta Materialia*[J], 2012, 60 (20): 7183–7196.
- [78] MAYER C R, YANG L W, SINGH S S, *et al.* *Acta Materialia*[J], 2016, 114: 25–32.
- [79] FU X D, LI Z, GUO Q, *et al.* *Metallurgical and Materials Transactions A*[J], 2018, 49(11): 5229–5234.
- [80] LI N, WANG H, MISRA A, *et al.* *Scientific Reports*[J], 2014, 4: 6633.
- [81] YANG L W, MAYER C R, CHAWLA N, *et al.* *Extreme Mechanics Letters*[J], 2020, 40: 100945.
- [82] WANG Y Q, FRITZ R, KIENER D, *et al.* *Acta Materialia*[J], 2019, 180: 73–83.
- [83] ZHANG J Y, LIU G, SUN J. *Acta Materialia*[J], 2014, 66: 22–31.
- [84] 李赞. 仿生构型石墨烯/铝基复合材料制备与性能研究[D]. 上海: 上海交通大学, 2017.
LI Z. Investigation on Fabrication and Mechanical Properties of Graphene/Al Composites with a Biomimetic Microstructure[D]. Shanghai: Shanghai Jiao Tong University, 2017.
- [85] 刘志颖. 石墨烯-Al 纳米叠层复合材料的断裂韧性研究[D]. 上海: 上海交通大学, 2018.
LIU Z Y. Study on the Fracture Toughening Mechanisms in Graphene-Al Nano-Laminated Composites[D]. Shanghai: Shanghai Jiao Tong University, 2018.
- [86] GUO Q, HAN Y, ZHANG D. *Nano Materials Science*[J], 2020, 2 (1): 66–71.
- [87] ZHANG J Y, LIU Y, CHEN J, *et al.* *Materials Science and Engineering: A*[J], 2012, 552: 392–398.
- [88] CUI Y, ABAD O T, WANG F, *et al.* *Scientific Reports*[J], 2016, 6: 23306.
- [89] HWANG B, KIM W, KIM J, *et al.* *Nano Letters*[J], 2017, 17(8): 4740–4745.
- [90] FAN Z, FAN C, LI J, *et al.* *Journal of Materials Research*[J], 2019, 34(13): 1–11.
- [91] LOTFIAN S, RODRÍGUEZ M, YAZZIE K E, *et al.* *Acta Materialia* [J], 2013, 61(12): 4439–4451.
- [92] YANG L W, MAYER C, LI N, *et al.* *Acta Materialia*[J], 2018, 142: 37–48.
- [93] LIU X Y, WANG F C, WU H A, *et al.* *Applied Physics Letters*[J], 2014, 104(23): 231901.
- [94] LONG X J, LI B, WANG L, *et al.* *Carbon*[J], 2016, 103: 457–463.

(编辑 张雨明)