Размерный эффект при микро- и наноиндентировании и его компенсация с учетом особенности начального контакта

С. А. Фирстов^а, С. Р. Игнатович⁶, И. М. Закиев⁶

^а Институт проблем материаловедения им. И. Н. Францевича НАН Украины, Киев, Украина

⁶ Национальный авиационный университет, Киев, Украина

Диаграмма внедрения, регистрируемая при индентировании, представляется в виде квадратичной функции с началом координат, смещенным по оси абсцисс влево. Этим моделируется плавность внедрения индентора при его начальном контакте с поверхностью. Регистрируемая глубина внедрения увеличивается на величину смещения. Использование квадратичной функции и скорректированной глубины внедрения обеспечивает постоянство значений твердости при различных нагрузках.

Ключевые слова: индентирование, размерный (масштабный) эффект, диаграмма внедрения, работа индентирования, поверхностный эффект.

Введение. Для изучения физико-механических свойств поверхностного слоя материалов в сверхмалых масштабах, включая нанометровый, используется метод микро- и наноиндентирования (Depth Sensing Indentation – DSI) [1, 2]. В последнее время данный метод получил широкое развитие, для него характерны простота тестирования, универсальность, отсутствие особых требований к образцу и окружающей среде. Тестирование материалов непрерывным вдавливанием индентора с регистрацией зависимости силы вдавливания P от глубины внедрения h (диаграммы внедрения) позволяет определять твердость, модуль упругости и другие физико-механические свойства материалов, а также моделировать элементарные акты пластического деформирования, разрушения, усталости, резания, трения, скалывания, ползучести, упругости, массопереноса и т.п. [3]. При использовании метода DSI для твердых тел возникают физические явления, которые нехарактерны макроскопическим масштабам. В зоне микро- и наноконтакта при высокой степени локализации нагрузки имеют место значительное упрочнение материала, высокие градиенты напряжений и деформаций с существенным ограничением возможности пластической релаксации, явления массопереноса, структурные изменения (аморфизация, фазовые переходы), сверхвысокие значения скорости деформации, микроразрушение [3, 4].

К одной из особенностей контакта, существенно влияющей на результаты измерений, относится размерный (масштабный) эффект при индентировании (Indentation Size Effect – ISE) [5]. Суть данного явления, которое называют еще масштабным эффектом микротвердости, состоит в увеличении значений твердости конкретного материала в области малых глубин внедрения, особенно при $h \le 1$ мкм, при уменьшении силы вдавливания. Результатом ISE является нарушение инвариантности показателя твердости как механической характеристики материала.

Существует несколько подходов к обоснованию природы ISE, но ни один из них нельзя назвать исчерпывающим. К факторам, определяющим ISE, относят отсутствие геометрического подобия формы индентора и отпечатка, особенности заточки индентора, наличие навалов при выдавливании материала. Однако величина поправок с учетом этих факторов не превышает 20% при $h \ge 200...300$ нм, тогда как ISE может составлять порядка сотни процентов [6].

Физически обоснованные подходы к объяснению природы ISE базируются на дислокационной теории пластического деформирования и на концепции поверхностного эффекта.

Используя концепцию геометрически необходимых дислокаций (geometrically necessary dislocations) и теорию дислокационного упрочнения Тейлора, в работе [7] показано, что для геометрически подобных инденторов зависимость твердости H от глубины внедрения h описывается соотношением

$$H = H_0 \sqrt{1 + \frac{h^*}{h}},\tag{1}$$

где H_0 – макроскопическая твердость; h^* – характеристическая длина, которая зависит от формы индентора, вектора Бюргерса и статистически аккумулированной плотности дислокации.

Зависимость (1) удовлетворяет экспериментальным данным (при глубине внедрения меньше 100 нм) для монокристаллической (111) меди, холоднообработанной поликристаллической меди, монокристаллического (100), (110) серебра.

Другой механизм ISE связан с так называемым поверхностным эффектом [8, 9], зависящим от изменения характеристик тонкого поверхностного слоя по сравнению с остальным объемом материала. Такие изменения обусловлены окислением или упрочнением, а также особенностями контакта при индентировании шероховагой поверхности. Относительно толстый или тонкий слой окислов всегда существует на поверхности металлического образца из-за влияния окружающей среды. Упрочненный поверхностный слой может формироваться при изготовлении образцов, при их механической обработке или полировке. Окисленный или упрочненный слой, как правило, является более твердым, чем объем материала, и при увеличении силы вдавливания и глубины внедрения наблюдается градиент показателя твердости.

Для обоснования влияния поверхностного эффекта на размерную зависимость твердости введено понятие мнимого поверхностного напряжения f(apparent surface stress), которое представляет энергию, рассеиваемую на единице площади поверхности при индентировании, и предложена зависимость твердости от глубины внедрения для различных материалов [8]:

$$H = H_0 + g \frac{f}{h}, \qquad (2)$$

где g – численный коэффициент, равный $2\sqrt{3}$, 1,1827 и 2,2406 соответственно для инденторов Northstar, Берковича и Виккерса. Показано, что зависимость (2) удовлетворительно описывает экспериментальные данные для моно- и поликристаллических металлов, пленок, полимеров и керамики [8].

Представляя работу, совершаемую при внедрении, как сумму работ, расходуемых на деформирование объема и искажение поверхности в зоне отпечатка, авторы работ [8, 9] объединили выражения (1) и (2) и предложили зависимость

$$H = H_0 \sqrt{1 + \frac{h^*}{h}} + g \frac{f}{h},$$
 (3)

в которой член $g \frac{f}{h}$ описывает влияние поверхностного эффекта, а соотношение $\sqrt{1 + h^*/h}$ – вклад от деформирования объема.

Функция (3), как и (2), не противоречит экспериментальным данным по ISE для довольно широкого круга металлических материалов [8, 9].

Следует отметить, что среди факторов, определяющих ISE или оказывающих на него влияние, не исследованы особенности начального контакта индентора и поверхности. Исследованию данного вопроса посвящена настоящая работа.

Решение задачи. Согласно многочисленным данным [10, 11], диаграмма внедрения (ДВ) при индентировании может быть описана степенной функцией вида

$$P = Ch^{\alpha}, \tag{4}$$

где C – постоянная, зависящая от геометрии индентора и упругопластических свойств материала; α – показатель степени, $\alpha \leq 2$.

Значение α зависит от материала. Например, для алюминия или алюминиевых сплавов α принимает значения от 1,75 до 1,90, для сплава Sn-3,5Ag-0,75Cu – $\alpha \approx 1,5$. Для материалов с выраженной деформацией ползучести в процессе внедрения имеем $\alpha = 2/(m+1)$, где m – чувствительность к скорости деформирования [12]. Определено, что показатель α изменяется при возрастании глубины внедрения при вдавливании. Так, на начальном участке ДВ, где величина h соизмерима с неровностями шероховатой поверхности, было получено $P \propto h$, при преобладании упругой составляющей в условиях упругопластического деформирования под индентором – $P \propto h^{1,5}$ и при больших глубинах, при которых преобладает пластическая деформация, – $P \propto h^2$ [13].

Поскольку твердость $H \propto h^{-2}$, при $\alpha = 2$, согласно зависимости (4), размерный эффект исключается. Это положение принимаем как базовое, основываясь на том, что ДВ (4) с $\alpha = 2$ подтверждается результатами численного моделирования для упруго-абсолютно пластичных и упругопластичных материалов [14, 15], а также некоторыми экспериментальными данными [16–18].

Другой подход к описанию ДВ предусматривает использование квадратичной функции вида

$$P = ah^2 + bh, (5)$$

где коэффициенты *а* и *b* зависят от механических свойств материала и геометрии индентора.

Функция (5) с хорошим приближением описывает экспериментальные данные для широкого круга материалов (поликристаллы, монокристаллы, керамика) [12, 19]. Следует отметить, что зависимость (5) теоретически обоснована и получена из анализа энергетического баланса при индентировании, согласно которому работа внедрения расходуется на работу пластического деформирования объема материала вокруг индентора (член ah^2) и работу, связанную с образованием дополнительной поверхности в отпечатке (слагаемое *bh*) [8, 20]. На основании (5) ISE описывается с учетом влияния поверхностного эффекта (2) [8] и (3) [9].

Согласно зависимостям (4) и (5), при h = 0 имеем P = 0. Однако в реальных условиях наноиндентирования данное условие не подтверждается.

Индентирование материалов, которые различаются твердостью и пластичностью, на индентометре "Микрон-гамма" [21, 22] показывает, что при начальном контакте индентора с поверхностью на ДВ возникает скачок силы величиной 1...3 мкН (рис. 1). Природа таких скачков не определена. К вызывающим их факторам можно отнести:

притупленность кончика индентора [23];

нестабильность процесса пластического деформирования, которая может быть обусловлена отрывом закрепленных дислокаций и проявиться в виде периодических скачков на ДВ [11];

локальное упрочнение материала при начальном контакте индентора с поверхностью перед началом процесса внедрения.

Не анализируя данное явление подробно, можно констатировать, что корректная форма представления уравнения (5) имеет вид

$$P = ah^2 + bh + P_0, (6)$$

где P_0 – величина скачка при h = 0.

Отмеченная выше особенность начального контакта при индентировании приводит к необходимости коррекции ДВ. Коррекция ДВ, заложенная в программном обеспечении, применяется в некоторых типах современных наноиндентометров. Так, нанотестеры UMIS (Uitra-Micro Indentation System) обеспечивают коррекцию ДВ путем ее интерполяции от скачка силы (рис. 1) влево до пересечения с осью абсцисс [24]. Отсекаемый на этой оси отрезок h_i интерпретируется как начальная глубина (initial depth), а истинная глубина внедрения индентора h' представляется как

$$h' = h + h_i, \tag{7}$$

где *h* – глубина внедрения, регистрируемая по экспериментальной ДВ.

Ранее [25] предложено вместо экспериментальной ДВ использовать квадратичную функцию вида (4). Индентирование осуществляется в автоматическом режиме до задаваемой величины максимальной силы вдавливания P_m , и по ДВ определяется соответствующая данному значению силы глубина внедрения h_m . Согласно зависимости (4), вычисляется значение постоянной $C = P_m / h_m^2$ и строится квадратичная кривая $P = Ch^2$. При совмещении данной кривой с экспериментальной ДВ до максимального их совпадения (при фиксированном значении точки h_m , P_m) начало координат сдвигается влево, что приводит к коррекции экспериментальных значений глубины внедрения в виде (7).



Рис. 1. Начальный участок диаграмм внедрения корунда (1), стали (2) и технически чистого алюминия (3) при индентировании пирамидами Виккерса (a) и Берковича (δ).

Предлагаемый в настоящей работе метод состоит в следующем.

Экспериментальная ДВ аппроксимируется функцией (6) и определяются коэффициенты a, b и P_0 . Экспериментальная ДВ заменяется квадратичной функцией $P = Ch^2$ в новой системе координат, сдвинутой влево по оси абсцисс на величину h_i . Положение начала координат квадратичной кривой

ISSN 0556-171Х. Проблемы прочности, 2009, № 2

на оси абсцисс (h_i) определяется из условия непрерывного внедрения на начальном участке, которое для квадратичной кривой и экспериментальной ДВ принимаем в виде $(dP/dh)_{h=h_i} = 0$. Для функции (6) получим

$$h_i = \frac{b}{2a}.$$
(8)

Таким образом, вместо экспериментальной ДВ используется квадратичная кривая

$$P = C(h_i + h)^2 = C(h')^2,$$
(9)

где постоянная C определяется из условия $P = P_m$ при $h = h_m$:

$$C = \frac{P_m}{\left(h'\right)^2}.$$
(10)

Значения параметра h_i , определенные по формуле (8), хорошо согласуются с результатами, полученными методом совмещения диаграмм внедрения (рис. 2) [25].



Рис. 2. Экспериментальная (1) и квадратичная (2) диаграммы внедрения при индентировании LiF с увеличенным изображением начального участка.

Обсуждение результатов. Как отмечалось выше, использование диаграммы деформирования в виде (9) с коррекцией глубины внедрения (7) обеспечивает постоянство показателя твердости при различных значениях силы вдавливания. Рассмотрим соответствие полученных результатов имеющимся экспериментальным данным.

При обосновании физической природы ISE авторы работ [8, 9] на основании обобщения обширного экспериментального материала отмечали удовлетворительное соответствие между теоретическими зависимостями (1)–(3) и экспериментальными данными при индентировании металлических материалов. Эти формулы получены с помощью разных подходов к моделированию ISE (дислокационный и энергетический) и различаются математическим представлением. Рассмотрим, как согласуются экспериментально подтвержденные зависимости (1)–(3) с моделью (9). Для этого запишем их в относительных координатах:

$$\frac{H}{H_0} = \sqrt{1 + \frac{h^*}{h}};$$
(11)

$$\frac{H}{H_0} = 1 + \frac{h^{**}}{h} = 1 + \bar{h};$$
(12)

$$\frac{H}{H_0} = \sqrt{1 + \frac{h^*}{h}} + \frac{h^{**}}{h} = \sqrt{1 + \frac{h^*}{h}} + \overline{h}, \qquad (13)$$

где $\bar{h} = h^{**}/h$; параметр $h^{**} = gf/H_0$ [8].

Разделив обе части уравнения (9) на проекцию контактной площади $A_c = kh^2$, получим

$$\frac{H}{H_0} = \left(1 + \frac{h_i}{h}\right)^2,\tag{14}$$

где H – твердость, определяемая по глубине внедрения h (при $h_i/h << 1$, $H \rightarrow H_0$); k – численный коэффициент.

Чтобы сопоставить зависимости (11)–(14) в единой системе координат, выразим параметры h^* и h_i через h^{**} . Функция (11) описывает изменение твердости в зависимости от глубины внедрения с учетом рассеяния энергии при индентировании исключительно на обеспечение пластического деформирования объема материала под индентором. В (12) эта составляющая энергии принята постоянной, а через параметр \bar{h} учитывается поверхностный эффект. Поскольку эти зависимости не противоречат экспериментальным данным, принимаем, что их наклон в начальной точке $(h^{**}/h = h^*/h = 0)$ одинаков. Дифференцируя (11) и (12) по h и приравнивая производные в начальной точке, получаем

$$h^* = 2h^{**}, (15)$$

что соответствует минимальной величине h^* $(h^* \ge 2h^{**})$ для критической глубины внедрения h_c , введенной при анализе уравнения (3) [8]. При $h < h_c$ преобладает поверхностный член в уравнении (3), при $h > h_c$ – объемный.

С учетом (15) выражения (11) и (13) принимают вид

$$\frac{H}{H_0} = \sqrt{1 + 2\overline{h}}; \tag{16}$$

$$\frac{H}{H_0} = \sqrt{1+2\overline{h}} + \overline{h}.$$
(17)

Полагаем, что производные функций (12) и (14) в начальной точке $(h_i/h = h^{**}/h = 0)$ также равны. После дифференцирования получим

$$h_i = \frac{h^{**}}{2}.$$
 (18)

Подставив (18) в (14), запишем

$$\frac{H}{H_0} = \left(1 + \frac{\overline{h}}{2}\right)^2.$$
(19)

Графики зависимостей (12), (16), (17) и (19) представлены на рис. 3. Поскольку эти зависимости подтверждаются экспериментальными данными для широкого круга материалов, можно утверждать, что функции (16) и (17) ограничивают область их рассеяния по ISE. Действительно, в работе [8] показано, что для многих металлических материалов эмпирические данные группируются вокруг зависимости (12), которая описывает влияние поверхностного эффекта на твердость при независимой от h объемной составляющей работы индентирования и расположена между кривыми 1 и 4 (кривая 3 на рис. 3). Следовательно, зависимость (19) соответствует области рассеяния экспериментальных данных по ISE. При $h > 2h^{**}$ ($\overline{h} < 0,5$) она совпадает с функцией (12). В области малых значений глубины внедрения ($0,4h^{**} < h < 2h^{**}$) зависимость (19) приближается к функции (17), описывающей совместное влияние на ISE объемной и поверхностной составляющих энергии внедрения.

Физическое представление параметра h_i в энергетической трактовке (18) подтверждается соотношением (5), полученным на основании энергетической интерпретации процесса внедрения. Так, разделив обе части уравнения (5) на проекцию контактной площади $A_c = kh^2$, получим выражение для зависимости твердости от глубины внедрения, аналогичное формуле (2). При этом получим $a = kH_0$ и b = kgf, что, согласно формуле (8), приводит к одинаковому с (18) результату: Размерный эффект при микро- и наноиндентировании ...

$$h_i = \frac{gf}{2H_0}.$$
 (20)

Численные значения параметра h_i , рассчитанные для различных металлов по данным работы [8], приведены в таблице.

Значения начальной глубины внедрения и параметров для ее расчета при индентировании различных металлов

Материал	g	<i>H</i> ₀ , ГПа	<i>f</i> , Дж/м ²	<i>h</i> _{<i>i</i>} , нм
Аg, монокристалл (110)	1,1827	0,378	44,7	70,0
Ag, монокристалл (100)	1,1827	0,351	81,6	137,5
Си, поликристалл	1,1827	0,885	108,0	72,0
Си, монокристалл (111)	1,1827	0,744	172,0	136,7
Си, монокристалл (111), механическая полировка	1,1827	0,662	60,0	53,6
Си, монокристалл (111), электрохимическая полировка	1,1827	0,718	18,9	15,5
W, монокристалл (111)	2,2406	3,270	191,0	65,4
W, монокристалл (110)	2,2406	3,250	269,0	92,7
W, монокристалл (100)	2,2406	3,040	390,0	143,7
Аи, пленка	1,1827	0,548	44,4	48,0
Al, пленка толщиной 1 мкм	1,1827	0,597	18,1	18,0
Al, пленка толщиной 2 мкм	1,1827	0,437	15,7	21,0



Рис. 3. Зависимости относительной твердости от относительной глубины внедрения: *1* – расчет по формуле (17); *2* – по (19); *3* – по (12); *4* – по (16).

Отметим, что величина начальной глубины внедрения h_i при заданном виде индентора (g) и известном значении макроскопической твердости (H_0) зависит от мнимого поверхностного напряжения f – параметра, характеризу-

ющего влияние поверхностного эффекта при индентировании. Функция (19) описывает возрастающее влияние объемной составляющей работы индентирования при уменьшении глубины внедрения (рис. 3).

Заключение. Представление диаграммы внедрения в виде функции (9) является обоснованным с позиции моделирования плавного и непрерывного внедрения индентора при его начальном контакте с поверхностью. При этом регистрируемая глубина внедрения увеличивается за счет прибавления так называемой начальной глубины – физически обоснованного параметра, отражающего влияние поверхностного эффекта при контакте индентора с поверхностью. Использование квадратичной функции (9) обеспечивает постоянство значений нано- и микротвердости в регистрируемом диапазоне глубины внедрения.

Резюме

Діаграма проникнення, що реєструється при індентуванні, має вигляд квадратичної функції, яка зсунена вздовж осі абсцис вліво. Цим моделюється плавність проникнення індентора при його початковому контакті з поверхнею. Глибина проникнення, що реєструється, збільшується на величину зсуву. Використання квадратичної функції та скорегованої глибини проникнення забезпечує постійне значення твердості за різного навантажування.

- Wolf B. Inference of mechanical properties from instrumented depth sensing indentation at tiny loads and indentation depths // Cryst. Res. Technol. 2000.
 35, No. 4. P. 377 399.
- 2. Van Landingham M. R. Review of instrumented indentation // J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. 2003. 108, No. 4. P. 249 265.
- 3. Головин Ю. И., Иволгин В. И., Коренков В. В., Рябко Р. И. Определение комплекса механических свойств материалов в нанообъемах методами наноиндентирования // Конденсированные среды и межфазные границы. 2001. 3, № 2. С. 122 135.
- 4. Головин Ю. И., Дуб С. Н., Иволгин В. И. и др. Кинетические особенности деформации твердых тел в нано- и микрообъемах // Физика твердого тела. 2005. 47, № 6. С. 961 973.
- Iost A. and Bigot R. Indentation size effect: Reality or artifact? // J. Mater. Sci. - 1996. - 31, No. 13. - P. 3573 - 3577.
- 6. Головин Ю. И., Иволгин В. И., Коренков В. В., Фарбер Б. Я. Размерный и зависящий от времени эффекты в нанотвердости керамик на основе ZrO₂ // Физика твердого тела. 2001. **43**, № 11. С. 2021 –2024.
- Nix W. D. and Gao H. Indentation size effects in crystalline materials: A law for strain gradient plasticity // J. Mech. Phys. Solids. – 1998. – 46, No. 3. – P. 411 – 425.
- 8. *Zhang T. Y. and Xu W. H.* Surface effects on nanoindentation // J. Mater. Res. 2002. **17**, No. 7. P. 1715 1720.

- Zhang T. Y., Xu W. H., and Zhao M. H. The role of plastic deformation of rough surfaces in the sizedependent hardness // Acta Mater. – 2004. – 52. – P. 57 – 68.
- 10. Zeng K. and Chiu C. An analysis of load–penetration curves from instrumented indentation // Ibid. 2001. **49**, No. 17. P. 3539 3551.
- Chinh N. Q., Csikor F., Kovacs Zs., and Lendvai J. Critical concentration of Mg addition for plastic instabilities in Al–Mg alloys // J. Mater. Res. – 2000. – 15, No. 5. – P. 1037 – 1040.
- 12. *Chinh N. Q., Gubicza J., Kovacs Zs., and Lendvai J.* Depth-sensing indentation tests in studying plastic instabilities // Ibid. 2004. **19**, No. 1. P. 31 45.
- Garcia I. A., Berasategui E. G., Bull S. J., and Page T. F. How hard is fullerene-like CNr? Some observations from the nanoindentation response of a magnetron-sputtered coating // Phil. Mag. – 2002. – 82, No. 10. – P. 2133 – 2147.
- 14. Lawn B. R. and Howes V. R. Elastic recovery at hardness indentations // J. Mater. Sci. 1981. 16, No. 10. P. 2745 2752.
- Sakai M. Energy principle of the indentation-induced inelastic surface deformation and hardness of brittle materials // Acta Met. Mater. – 1993. – 41, No. 6. – P. 1751 – 1758.
- 16. *Giannakopoulos A. E., Larsson P. L., and Vestergaard R.* Analysis of Vickers indentation // Int. J. Solids Struct. 1994. **31**, 19. P. 2679 2708.
- 17. Larsson P. L., Giannakopoulos A. E., Öderlund E. S., et al. Analysis of Berkovich indentation // Ibid. 1996. 33, No. 2. P. 221 248.
- Cheng Y. T. and Cheng C. M. Relationships between hardness, elastic modulus, and the work of indentation // Appl. Phys. Lett. 1998. 73, No. 5. P. 614 616.
- Осипов В. Н., Гурин В. Н., Деркаченко Л. И., Зимин И. Н. Анизотропия и масштабный эффект в микротвердости кристаллов сверхпроводящих фаз на основе висмута // Физика твердого тела. – 2000. – 42, № 5. – С. 850 – 853.
- 20. *Fröhlich F.*, *Grau P.*, *and Grellmann W.* Performance and analysis of recording microhardness tests // Phys. St. Solids. 1977. 42, No. 1. P. 79 89.
- Игнатович С. Р., Закиев И. М., Борисов Д. И., Закиев В. И. Методика исследования физико-механических свойств поверхностных слоев материалов при усталости с использованием многофункционального прибора "Микрон-гамма" // Авиац.-косм. техника и технология. – 2004. – Вып. 8 (16). – С. 163 – 166.
- 22. Игнатович С. Р., Закиев И. М., Борисов Д. И., Закиев В. И. Оценка поврежденности поверхностного слоя материалов при циклическом нагружении методами наноиндентирования и наносклерометрии // Пробл. прочности. – 2006. – № 4. – С. 132 – 139.
- Kindrachuk V. M., Galanov B. A., Kartuzov V. V., and Dub S. N. On elastic nanoindentation of coated half-spaced by point indenters of non-ideal shapes // Nanotechnology. – 2006. – 17. – P. 1104 – 1111.

- 24. *Ultra-Micro* Indentation System. Application Note 9. Initial penetration // www.atnf.csiro.au/pub/people/alexb/software/umispromotion.pdf.
- 25. Фирстов С. А., Игнатович С. Р., Закиев И. М. Коррекция диаграммы внедрения при наноиндентировании с учетом особенностей начального контакта // Проблеми тертя та зношування. 2007. Вип. 48. С. 64 71.

Поступила 30. 01. 2008