

ДИНАМИКА И МИКРОМЕХАНИЗМЫ ДЕФОРМИРОВАНИЯ ИОННЫХ КРИСТАЛЛОВ ПРИ ИМПУЛЬСНОМ МИКРОИНДЕНТИРОВАНИИ

© Ю.И.Головин, А.И.Тюрин

Тамбовский государственный университет,
392000 Тамбов, Россия
(Поступила в Редакцию 19 июля 1995 г.
В окончательной редакции 28 ноября 1995 г.)

Новым импульсным методом исследованы динамика и микромеханизмы образования отпечатка при микроиндентировании ионных кристаллов. Установлено, что погружение индентора под действием скачкообразно приложенной нагрузки происходит в несколько четко выраженных стадий (в некоторых случаях до пяти), различающихся кинетикой и активационными параметрами. Предложена последовательность смены микромеханизмов массопереноса при формировании отпечатка в процессе индентирования ионных кристаллов.

Широко распространенный метод исследования механических свойств твердых тел (в особенности тонких пленок и приповерхностных слоев), основанный на внедрении жесткого индентора (рис. 1,а) и измерении установившегося размера отпечатка, значительно усовершенствовался в последние годы. Предложенное еще в начале 70-х годов [1] программируемое погружение индентора (рис. 1,б) с непрерывной регистрацией прецизионными датчиками зависимости силы сопротивления F от глубины внедрения h (в настоящее время типичные значения чувствительности составляют по силе $\sim \mu N$, по смещению $\sim \text{нм}$, а рекордные — на порядок выше) позволяют локализовать область исследования несколькими нм^3 , в связи с чем эту технику все чаще стали называть «наноиндентированием». Она дает возможность непрерывно определять твердость как функцию глубины погружения, упругие модули, упругую часть деформации и условия, в которых она составляет практически 100% от полной, обнаружить и исследовать фазовые переходы, индуцируемые высокими контактными напряжениями, а также наблюдать другие интересные особенности поведения материала в малых объемах [2–5]. Однако, как и в традиционной методике, где о свойствах материала судят *post factum* в методике наноиндентирования в качестве меры происходящих под индентором процессов принимают установившиеся размеры отпечатка. В результате исследование динамических свойств испытуемого материала и структурных дефектов

в нем остается недоступным при наноиндентировании, так как анализируется непрерывная последовательность квазиравновесных состояний при медленном принудительном опускании и подъеме индентора. Известно лишь несколько работ, посвященных изучению кинетики заключительной, медленной, стадии «додавливания» отпечатка в режиме ползучести, когда его размеры меняются на несколько процентов в течение $10^2 - 10^3$ s [6-9]. Вместе с тем спектры образующихся дефектов и механизмы массопереноса имеют решающее значение в условиях высокоскоростного локального нагружения, которое реализуется на начальной стадии внедрения и во многих других случаях (соударение мелких частиц, микроабразивный износ при сухом трении и т. п.).

Как известно, наиболее полно и просто динамические свойства системы могут быть исследованы путем анализа ее отклика на скачкообразное возмущение. Применительно к индентированию этот подход реализован в настоящей работе посредством «мгновенного» приложения испытательной нагрузки к индентору и непрерывной регистрации кинетики его погружения в материал с адекватным временным разрешением (рис. 1,с). В результате появилась возможность непрерывно *in situ* анализировать скорость деформации как функцию мгновенного значения контактных напряжений, выделять различные фазы процесса, проводить их термоактивационный анализ и по его результатам судить о микромеханизмах вытеснения материала из-под индентора.

1. Экспериментальная техника

Установка содержала вертикально расположенный подвижный шток, смонтированный на двух мягких плоских пружинах, обеспечивавших поступательное движение без трения. На нижнем конце штока монтировался стандартный индентор — алмазная пирамида Виккерса, а на верхнем могли устанавливаться грузики различной массы. В исходном состоянии вес подвижных частей компенсировался полем электромагнита с мягкой силовой характеристикой (суммарная жесткость подвеса с учетом действия пружин и магнитного поля составляла 10^{-3} N/ μ m). Затем образец с помощью микровинта плавно подводили снизу к индентору до касания. Момент касания, а затем глубину внедрения во времени $h(t)$ контролировали механотроном, управляющий электрод которого взаимодействовал со штоком. Чувствительность тракта к перемещению была 50 nm, а временное разрешение составляло 0.3 ms. Скачкообразное уменьшение тока в электромагните приводило к быстрому нарастанию нагрузки на индентор и его погружению без начальной скорости. Длительность фронта импульса нагрузки определялась временем, необходимым для деформации зоны контакта и штока, и обычно составляла 1-2 ms. Более подробно экспериментальная установка описана в [10].

Описанная выше методика и установка обеспечивали 1) независимость процесса погружения от действий оператора; 2) хорошую воспроизводимость результатов; 3) синхронизацию процесса внедрения индентора с работой быстродействующей аппаратуры; 4) значительное снижение склонности к трещинообразованию; 5) возможность работы с отпечатками, имеющими размеры $< 1 \mu$ m.

Для регистрации электрического сигнала, обусловленного образованием и перемещением заряженных дефектов структуры под инден-

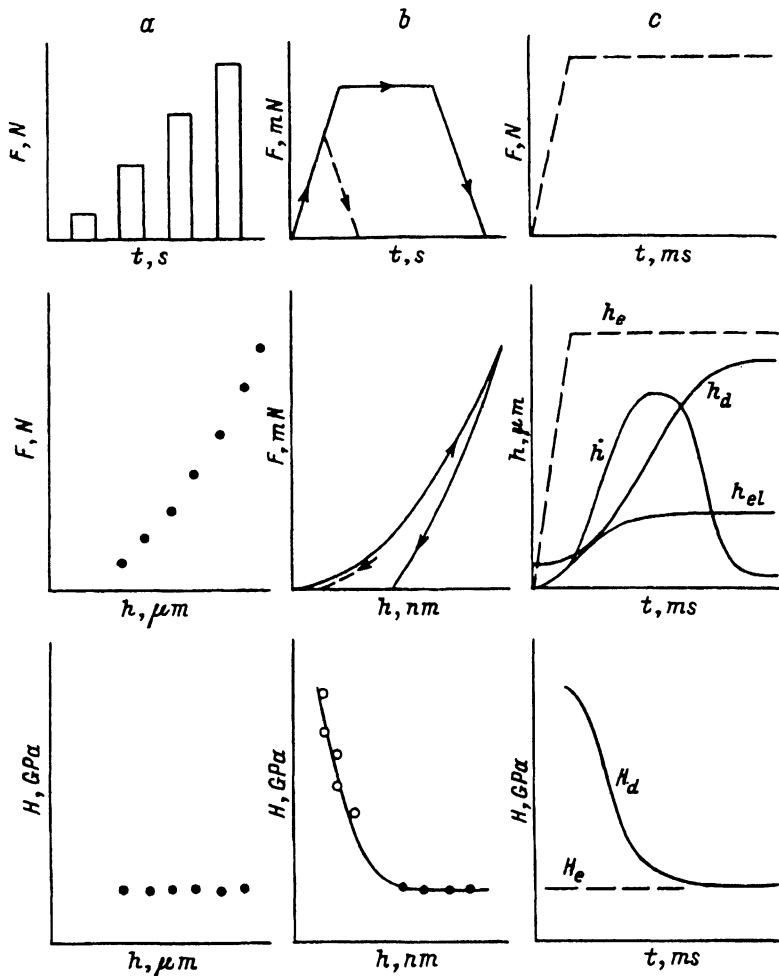


Рис. 1. Схематическое изображение процедуры и определяемых параметров для известных и предлагаемого метода.

a — традиционное микроинdentирование дискретно варьируемой нагрузкой; *b* — наноинdentирование с непрерывной записью зависимости глубины внедрения от приложенной силы: светлые кружки соответствуют чисто упругому деформированию, темные — пластическому; *c* — динамическое микроинdentирование с непрерывной регистрацией глубины и скорости погружения при скачкообразном приложении нагрузки: индекс *e* соответствует равносному значению величины, *d* — динамическому. *F* — усилие внедрения, *h* — глубина отпечатка, *t* — время, *H* — твердость.

тором, образец помещали между двух одинаковых зондов, разность потенциалов с которых подавали на дифференциальный вход широкополосного ($10^{-1} - 2 \cdot 10^6$ Hz) усилителя с входным сопротивлением $10^{11} \Omega$, а затем на самописец или запоминающий осциллограф (как и сигнал с механотрона). Это позволяло фиксировать синхронно с глубиной погружения и электрический дипольный момент $P(t)$, приобретаемый образцом, с временным разрешением $\sim 0.1 \mu s$. В [11,12] приводятся физические основания, позволяющие интерпретировать вариации $P(t)$ в терминах динамически заряженных дефектов структуры.

2. Результаты

Несмотря на значительное различие механических свойств исследованных кристаллов (более чем на порядок величины по модулю Юнга и почти на два порядка величины по твердости), кинетика погружения индентора в них носила качественно схожий характер (рис. 2). За первые 10–12 ms движения величина h достигала 80–90% от окончательно устанавливающегося значения, а P — 25–30% (исключая MgO, где поляризация не была обнаружена). Выход на стационарные или близкие к ним значения занимал для h от 10 до 100 s, а для P от 10 до 300 s в зависимости от типа кристалла, температуры и нагрузки. Образование трещин, обнаруживаемых после разгрузки оптической микроскопией, сопровождалось скачкообразными изменениями P с крутизной фронтов $\sim 1 \mu\text{s}$. Амплитуда этих скачков обеих полярностей достигала десятков процентов от величины сигнала, что делало их хорошо заметными на фоне обычных изменений P с миллисекундными характерными временами.

Первые 5–7 ms от начала движения ускорение $\ddot{h}(t)$ во всех кристаллах было положительным, а затем становилось отрицательным, но по абсолютной величине оно нигде не превышало $0.6 \pm 0.2 \text{ m/s}^2$. Столь малые значения $\ddot{h}(t)$ означают, что уже с первых миллисекунд движения, соответствующих глубине отпечатка $\sim 1 \mu\text{m}$, материал развивает сопротивление движению индентора, почти равное приложенной силе F_0 . Следовательно, действительно реализуется режим нагружения, близкий к оптимальному для исследования динамического отклика материала на приложенную постоянную нагрузку. В отсутствие контакта с образцом индентор начинал опускаться без задержки с ускорением, близким к 9.8 m/s^2 .

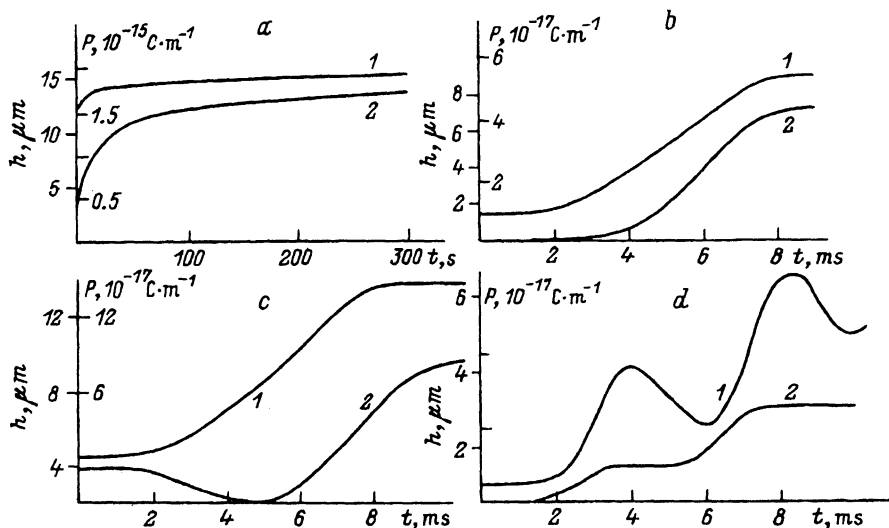


Рис. 2. Кинетика начальной стадии индентирования ионных кристаллов.
 а, б — LiF, $T = 293 \text{ K}$, с — KCl:Ba ($C = 10^{-1} \text{ mol.}\%$), $T = 77 \text{ K}$, д — LiF, $T = 77 \text{ K}$.
 1 — глубина внедрения индентора h , 2 — величина дипольного момента P .

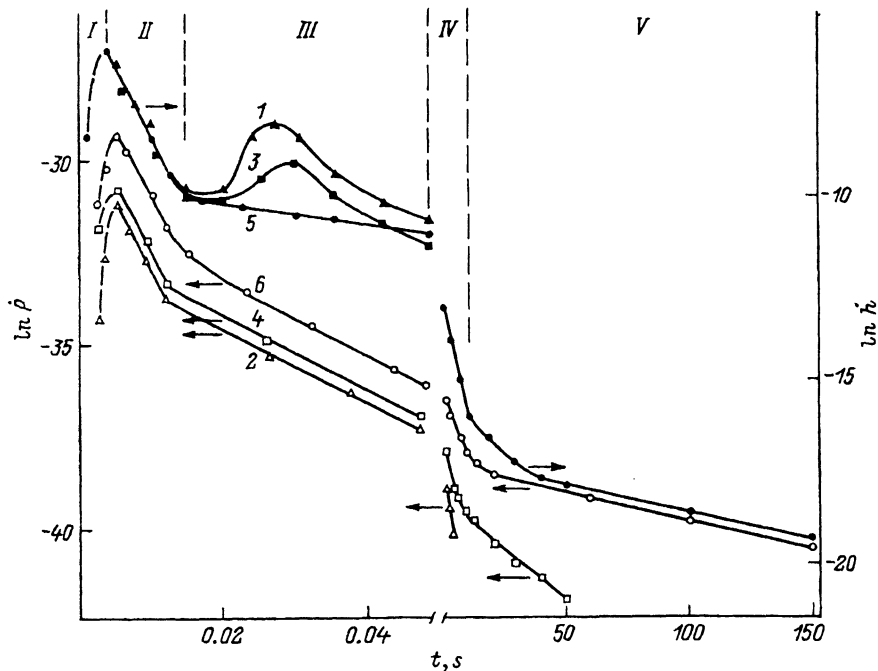


Рис. 3. Зависимости $\ln \dot{h}$ (1, 3, 5) и $\ln \dot{P}$ (2, 4, 6) от времени индентирования t монокристаллов LiF при $T = 293$ (1, 2), 196 (3, 4) и 77 K (5, 6). I-V — стадии индентирования.

Отметим некоторые особенности поведения P на начальной стадии погружения индентора. Во всех исследованных кристаллах наблюдалась задержка роста P относительно h на 1–4 ms (см., например, рис. 2, b), которая слабо зависела от температуры и приложенной нагрузки. В кристаллах KCl:Ba (0.1 mol.%) изменения P происходили с инверсией знака (рис. 2, c). При понижении температуры до 100–200 K в кристаллах LiF, KCl, NaCl наблюдался колебательный процесс погружения индентора (в MgO он возникал уже при $T = 293$ K), сопровождавшийся приостановкой или замедлением роста P в отрицательных полупериодах этих колебаний (рис. 2, d).

Из анализа кинетических кривых $\ln \dot{h} = f(t)$ и $\ln \dot{P} = f(t)$, построенных в полулогарифмических координатах, следует, что при индентировании ряда исследованных кристаллов (MgO, LiF, NaCl, KCl) имеются не две, как обычно полагают, а до пяти отдельных стадий погружения индентора. В качестве примера на рис. 3 показаны зависимости $\ln \dot{h} = f(t)$ и $\ln \dot{P} = f(t)$, построенные для кристаллов LiF. Близкий к линейному закон спада скорости процесса на каждом из участков (начиная со второго) отражает экспоненциальный характер релаксации. Различие в показателе экспоненты на разных стадиях τ_i достигало четырех порядков величины, а в предэкспоненте — пяти порядков величин. Ясно, что в условиях практически постоянной нагрузки (начиная с 2–3 ms) и неизменных контактных напряжений (начиная с 10–12 ms) это поведение $h(t)$ и $P(t)$ является следствием смены механизмов мас-

сопереноса в зоне контакта. Из рис. 3 также следует, что, несмотря на отсутствие полного подобия между кривыми $h(t)$ и $P(t)$ (косвенно это свидетельствует о независимости информации, содержащейся в них, и отсутствии тривиального эффекта «динамического конденсатора», сигнал с которого прямо пропорционален смещению электродов в поле), скоростные зависимости $h(t)$ и $P(t)$ имеют одинаковое число стадий, которые характеризуются близкими значениями τ_i .

3. Обсуждение

Значение реальной динамики погружения индентора позволяет извлечь ценную информацию относительно последовательности и природы процессов под индентором. Так, воспользовавшись уравнением динамики подвижного узла нагружающего устройства с известной массой m , можно найти мгновенное значение силы сопротивления материала погружению индентора $F(t)$ и контактных напряжений $\sigma(t) = F(t)A^{-1}(t)$

$$m\ddot{h}(t) = F_0 - F(t),$$

где $\ddot{h}(t)$ — ускорение индентора, определяемое двукратным дифференцированием полученной в эксперименте функции $h(t)$, $A = 24.5h^2$ — проекция площади контакта на поверхность образца. Одновременно можно найти и динамическое значение твердости $H_d = 0.935\sigma(t)$.

Из анализа зависимостей $h(t)$, $\dot{h}(t)$, $\ddot{h}(t)$, $F(t)$ и $\sigma(t)$ следует, что сила F приближается к величине прикладываемой нагрузки F_0 уже на 1–2 мс от начала движения и с вариациями ≤ 5 –7% сохраняет в дальнейшем это значение, вследствие чего $\sigma(t)$ и $H_d(t)$ могут достигать величин, сопоставимых с теоретической точностью. Их пиковые значения σ_{\max} и H_{\max} определялись отношением $F(t)$ к площади отпечатка A_0 , остающегося после предварительного касания индентором поверхности образца. В связи с малостью величины A_0 и низкой точностью ее измерения в наших экспериментах σ_{\max} и H_{\max} могли быть найдены с погрешностью в несколько десятков процентов. Однако уже через несколько миллисекунд, когда h достигала нескольких микрон, погрешности определения $\sigma(t)$ и $H(t)$ падали до единиц процентов.

Отметим, что, несмотря на невысокую абсолютную скорость перемещения индентора (около 1 мм/с в максимуме (рис. 3, 4)), из-за малости размеров области деформирования ($\approx h$) скорость относительной деформации материала под индентором $\dot{\epsilon}$ достигает в первые мс величины $\sim \dot{h}/h \sim 10^3 \text{ s}^{-1}$, что сопоставимо с величинами, характерными для высокоскоростного соударения макроскопических тел. Хорошо известно, что в этих условиях пластичность даже очень мягких кристаллов сильно подавляется. В результате остается возможным лишь квазиупругое деформирование, как при наноиндентировании сверхнизкими нагрузками [2–5], а соответствующие значения H_d приближаются к теоретическому пределу для чисто упругого контакта $\sigma_e \approx 0.11E_r$ (по данным [3–5]) или $\approx 0.17E_r$ (по данным [5]); здесь E_r приведенный модуль упругости контактирующей пары.

Вторая и последующие стадии погружения проходят в условиях падающих σ и \dot{h} и небольших изменений h . С понижением температуры

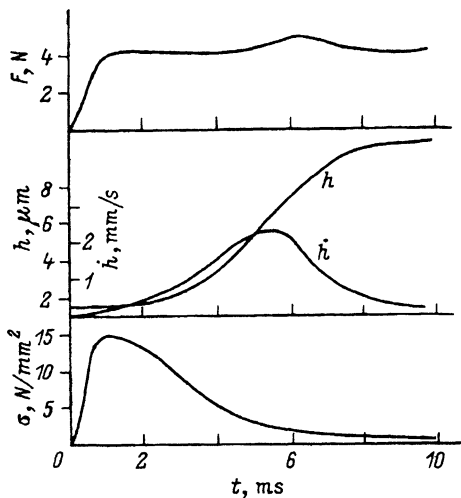


Рис. 4. Зависимости $h(t)$, $\dot{h}(t)$, $F(t)$, $\sigma(t)$ на активной стадии внедрения индентора в грань (001) NaCl при $T = 293$ К. Нагрузка на индентор ($F = mg$) составляла — 4.6 Н.

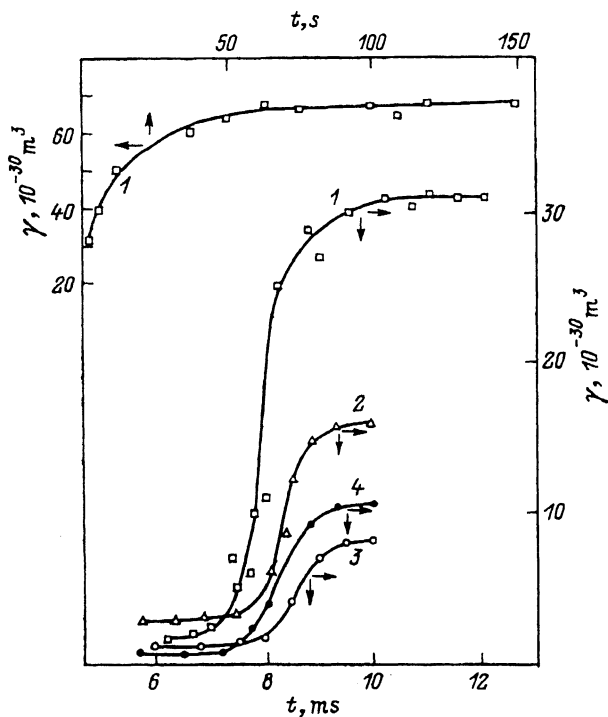


Рис. 5. Кинетика изменения величины активационного объема γ при комнатной температуре (по данным $h(t)$).

1 — LiF, 2 — NaCl, 3 — KCl:Ba, 4 — MgO.

уменьшается и h , так что имеется возможность проведения термоактивационного анализа. Вследствие неоднородности поля напряжений под индентором, зависимости \dot{h} от t и невозможности учета внутренних напряжений результаты такого анализа носят приближенный характер и дают представление лишь об усредненных по сдеформированному объему значениях активационных объемов γ и энергий U , входящих в уравнение Аррениуса $\dot{h}/h = \dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0 \exp\{-[U - \gamma\langle\sigma\rangle]/kT\}$, где $\langle\sigma\rangle \approx 0.56\sigma$ — средние напряжения в зоне пластической деформации.

Численные значения величин U и γ имеют тенденцию к росту по мере углубления индентора и перехода от одной стадии к другой. При этом величина U меняется в диапазоне от 0.03 до 0.2–0.3eV, а γ — от 10^{-30} до 10^{-28} м³ в зависимости от температуры и стадии индентирования. Более информативный (с точки зрения оценки механизма массопереноса) параметр γ на второй стадии погружения имел один порядок величины для всех кристаллов $\sim 10^{-30}$ м³ (рис. 5), т.е. был меньше среднего объема $(a/2)^3$, приходящегося на один ион в решетке с параметром a , и падал с понижением температуры.

Высокие значения σ и $\dot{\epsilon}$ и низкие значения температуры делают маловероятными диффузионные или дислокационные механизмы, лимитируемые переползанием (т.е., фактически, тоже диффузией), которые также характеризуются малыми значениями $\gamma \approx (a/2)^3$. Совокупность перечисленных выше особенностей поведения материала можно расценивать как свидетельство в пользу межузельных (краудионных) механизмов массопереноса [12–14]. На третьей и последующих стадиях величины U возрастали до 0.2–0.3eV, а γ — до $\sim 10^{-28}$ м³ (рис. 5), т.е. приближались к значениям, обычным для дислокационных механизмов в сильно сдеформированной области. При больших временах $t \sim 10^2$ s величины значений γ коррелировали с данными анализа зависимостей $d(t)$ (см. [7]) для соответствующих кристаллов и температур индентирования (где d — размер диагонали отпечатка индентора).

Список литературы

- [1] Булычев С.И., Алехин В.П., Шоршоров М.Х., Терновский А.П. Пробл. прочности, 9, 79 (1976).
- [2] Hainsworht S.V., Page T.F. J. Mater. Sci. 29, 21, 5529 (1994).
- [3] Oliver W.C., Pharr G.M. J. Mater. Res. 7, 6, 1564 (1992).
- [4] Pharr G.N., Oliver W.C., Brotzen F.R. J. Mater. Res. 7, 3, 613 (1992).
- [5] Murakami Yu., Tanaka K., Itokazu M., Shimamoto A. Phil. Mag. A69, 6, 1131 (1994).
- [6] Кац М.С., Рель В.Р. ФММ 40, 612 (1975).
- [7] Chu S.N.G., Li J.C.M. J. Mater. Sci. 12, 2200 (1977).
- [8] Edward Yu.C., Li J.C.M. Phil. Mag. 36, 4, 811 (1977).
- [9] Chu S.N.G., Li J.C.M. Mater. Sci. Eng., 39, 1 (1979).
- [10] Головин Ю.И., Тюрин А.И. Изв. РАН 59, 10, 49 (1995).
- [11] Головин Ю.И., Шибков А.А. Кристаллография 35, 2, 440 (1990).
- [12] Инденбом В.Л. Письма в ЖЭТФ, 12, 526 (1970).
- [13] Инденбом В.Л., Орлов А.Н. ФММ 43, 3, 469 (1977).
- [14] Головин Ю.И., Тюрин А.И. Письма в ЖЭТФ 60, 10, 722 (1994).