

07,13

## Влияние механического воздействия на рельеф поверхности металлического стекла $\text{Fe}_{77}\text{Ni}_1\text{Si}_9\text{B}_{13}$

© В.Е. Корсуков, А.В. Анкудинов, В.И. Бетехтин, П.Н. Бутенко, В.Н. Вербицкий, В.Л. Гиляров, М.М. Корсукова, М.В. Нарыкова, Б.А. Обидов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе,  
Санкт-Петербург, Россия

E-mail: Vjacheslav.Korsukov@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 19 ноября 2018 г.)

В окончательной редакции 19 ноября 2018 г.

Принята к публикации 28 ноября 2018 г.)

Методы сканирующей туннельной и атомной силовой микроскопии, сканирующей электронной микроскопии, а также метод рентгенофлуоресцентного анализа применены для изучения микро и нанорельефа нагруженных поверхностей фольг металлического стекла  $\text{Fe}_{77}\text{Ni}_1\text{Si}_9\text{B}_{13}$ . Мультифрактальный подход использовался для оценки фрактальных характеристик поверхностей. Установлено, что ширина спектра сингулярностей, рассчитанная из данных туннельной и атомной силовой микроскопии, может служить одним из признаков предстоящего разрыва. Увеличение разрывной прочности лент, подвергнутых гидростатическому сжатию, объясняется уменьшением микропористости приповерхностного слоя, что соответствует разглаживанию поверхности.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 18-08-00360.

DOI: 10.21883/FTT.2019.04.47417.322

### 1. Введение

Многие металлические стекла (МС) на основе железа выделяются своими высокими магнитными и механическими характеристиками. Роль поверхности в зарождении деформационных дефектов, развитии деформации и разрушения МС, фазовых переходах под влиянием нагрузки и температуры является предметом многочисленных исследований [1–12]. Однако известные в литературе экспериментальные и теоретические данные о поведении поверхностных слоев в процессе деформации и разрушение этих материалов являются часто противоречивыми и носят дискуссионный характер. В работах [1–6] рассматриваются различные аспекты влияния нагрузок и температур на структуру, ее деградацию, фрактальные характеристики. В работе [7] изучена эволюция фрактальных структур в дислокационных ансамблях в металлах во время их пластической деформации. В работе [8] рассмотрено влияние внешней нагрузки на фрактальную размерность, и мультифрактальные характеристики поверхности МС в одномерном случае вдоль сканов топограммы. В работе [9] отмечалось, что под влиянием растяжения происходит кристаллизация поверхности МС. В работах [10–11] рассматривались влияние внешнего напряжения и состояния исходной поверхности на рельеф поверхностей разрыва. В работе [12] исследовались стороны контактные и неконтактные относительно барабана, на который „выстреливается“ расплав, которые имеют различные скорости охлаждения. Это приводит к различию в свободном объеме, который содержит микропоры. Последнее обстоятельство влияет

на прочность разных сторон фольги МС. Кроме того, контактная сторона содержит на себе элементы, из которых состоит барабан, что еще более осложняет проблему. В связи с этим, исследования трансформации рельефа поверхности в поле механических сил является актуальной задачей.

В последнее время топограммы поверхности исследовались методом двумерного мультифрактального анализа. Рассчитывался спектр сингулярностей  $f(\alpha)$ . Алгоритм расчета описан в [12]. Поверхность покрывалась квадратной решеткой размера  $\varepsilon$ . В качестве мультифрактальной меры на этой решетке выбиралась высота поверхностного профиля. Вероятность заполнения квадратной ячейки определялась средней высотой профиля (сумма высот точек принадлежащих данной ячейке, нормированная на общую сумму высот рассматриваемого участка поверхностного профиля). Статистическая сумма вычислялась стандартным способом. Далее из нее определялись скейлинговые экспоненты  $\tau(q)$ , где  $q$ -порядок момента обобщенной размерности Реньи, из которых рассчитывался искомый спектр  $f(\alpha)$ , где  $\alpha$  — показатель Липшица–Гельдера. Из функции  $f(\alpha)$  определяется ширина спектра сингулярностей ( $\Gamma$ ).

Исходя из вышесказанного, остались неясными, по крайней мере, несколько моментов. Во-первых, насколько адекватно применение одномерного мультифрактального анализа к описанию тенденции к монофрактальности поверхности МС перед разрывом образца. Во-вторых, насколько может влиять образование магистральной трещины на тенденцию к монофрактальности. В-третьих, как влияет гидростатическое сжатие образца

на структуру его дефектов и фрактальные характеристики его поверхности. Целью работы является выяснение этих моментов.

## 2. Объекты и методы исследования

Ленты МС  $Fe_{77}Ni_1Si_9B_{13}$  (промышленная марка 2НСР), полученные методом спиннингования использовались для изучения влияния внешней нагрузки на рельеф и химический состав поверхности. Методами сканирующей туннельной микроскопии (СТМ), атомной силовой микроскопии (АСМ), оптической и сканирующей электронной микроскопии (ОМ) и (СЭМ) изучался рельеф. Химический состав определялся методом рентгенофлуоресцентного анализа (РФА). Подготовка образцов описана в работах [8–11]. Исследовалась контактная поверхность ленты по отношению к диску; одноосное растягивающее напряжение прикладывалось в диапазоне 0–2.7 ГПа, гидростатическое сжатие — 1 ГПа в течение нескольких часов. В результате строились функции распределения неоднородностей по их размерам, определялись фрактальные характеристики поверхности с помощью методик Box Counting и Wavelet Transformation (BC и WT).

## 3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 помещены СЭМ изображение свободной поверхности нагруженного образца МС и микрорентгеновский спектр этой поверхности на конечной стадии разрушения. Из рис. 1, *a* видно, что при растяжении образца перед разрывом сформировалась довольно острая трещина. На рис. 1, *a* показан квадрат, из этой области был снят микрорентгеновский спектр части поверхности. На рис. 1, *b* показан микрорентгеновский спектр, видны пики Fe, Ni, Si. Химический состав поверхности по данным микрорентгена Fe — 88.8, Ni — 1.7, Si — 9.4 mass%. Из приведенных данных видно, что химсостав, за исключением бора, приблизительно соответствует формуле соединения. Бор не прописался потому, что он легкий элемент для записи в рентгеновском спектре, кроме того в нашей работе [11], где записывались оже спектры поверхности, бор проявил себя лишь с глубины  $\sim 20 \text{ \AA}$  от поверхности.

В настоящей работе изучалось влияние растягивающей нагрузки на рельеф поверхности образцов, полученных методом спиннингования. Основные результаты, получены методами СТМ и АСМ до начала формирования магистральной трещины.

Кроме того, часть образцов подвергалась гидростатическому давлению, исследовались их прочностные характеристики, избыточный свободный объем, связанный с микропорами. У этих образцов также исследовался рельеф их поверхности методом АСМ. Всего в работе получено около 100 топограмм методами СТМ и АСМ

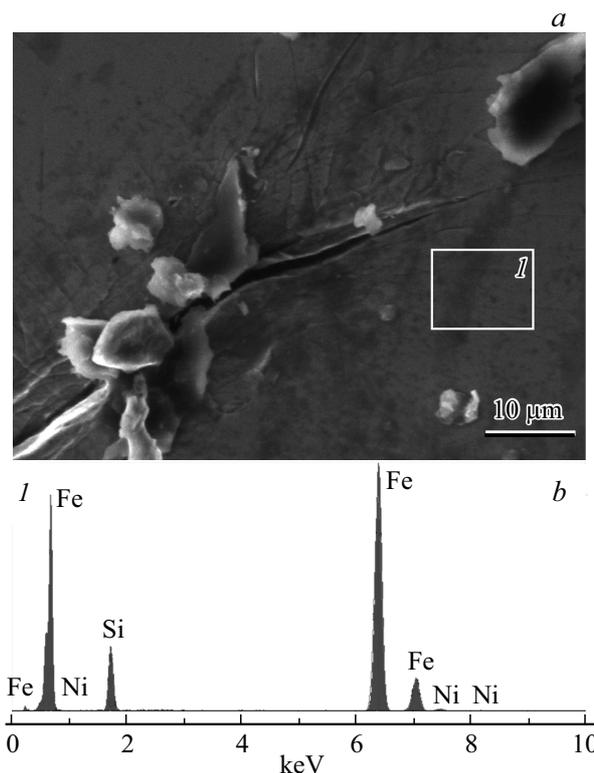
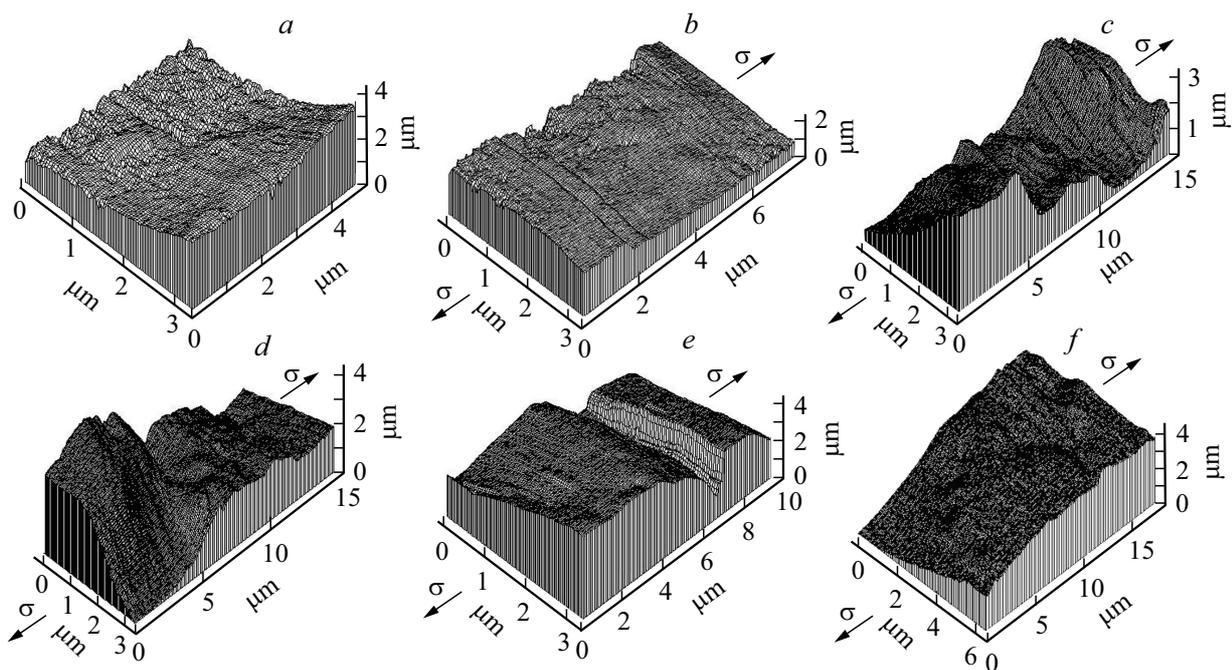


Рис. 1. СЭМ-изображение (*a*) и микрорентгеновский спектр (*b*) свободной поверхности нагруженного образца МС  $Fe_{77}Ni_1Si_9B_{13}$ .

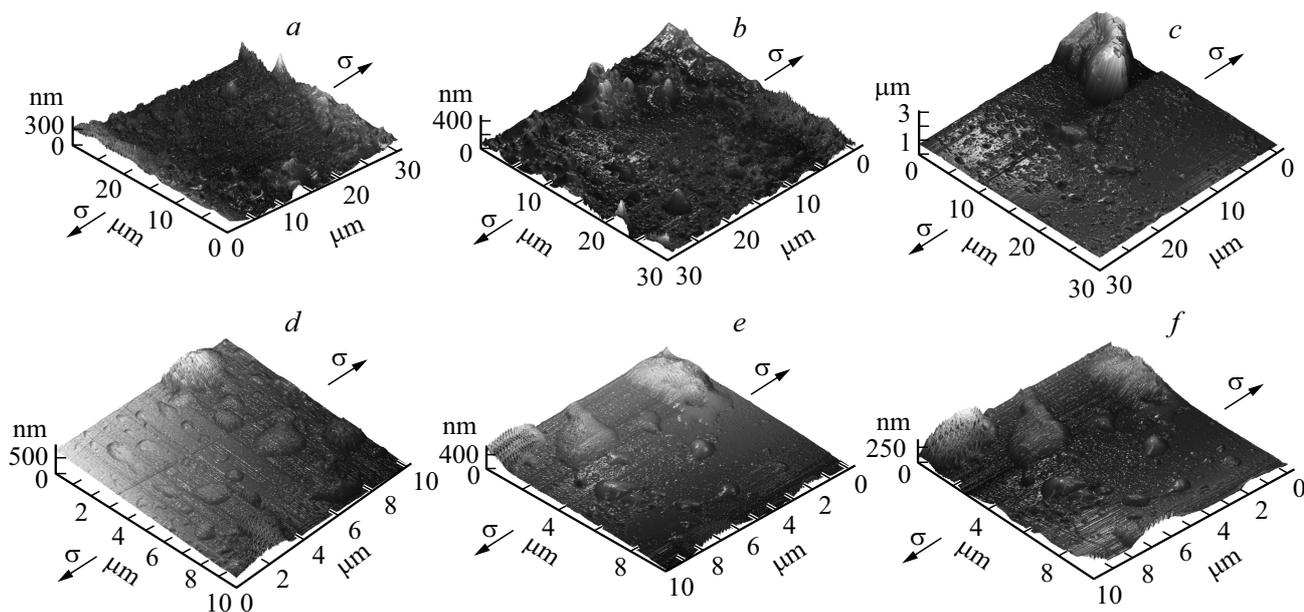
в разных масштабах. Некоторые из топограмм будут проанализированы и обсуждены в данной работе.

На рис. 2 и 3 показаны рельефы неконтактной поверхности образца, полученные методом СТМ и АСМ. Рельефы получены *in situ*, образец при этом подвергался одноосному растяжению. При использовании метода СТМ исследовались площадки  $(45\text{--}90) \mu\text{m}^2$ . При использовании метода АСМ исследовались площадки  $(10 \times 10, 20 \times 20, 30 \times 30) \mu\text{m}^2$ . Видно, что растягивающая нагрузка сильно влияет на рельеф поверхности, проявляются следующие эффекты: дефекты линейные, перпендикулярные оси действия нагрузки, линейные дефекты под углом  $45^\circ$  оси действия нагрузки, кроме того, происходит частичное заглаживание рельефа, проявляются полосы сброса, поверхностные трещины. Эти эффекты наблюдались и в более ранних работах [8–11].

Рассмотрим вначале зависимости фрактальной размерности ( $D_f$ ) и ширины спектра сингулярностей ( $\Gamma$ ) в зависимости от приложенного к образцу напряжения. На рис. 4, *a* показаны зависимости фрактальной размерности  $D_f$ , а на рис. 4, *b* ширины спектра сингулярностей  $\Gamma$ , полученные по данным СТМ для изучаемых поверхностей. Видно, что фрактальная размерность перед разрывом образца растет, а ширина спектра сингулярности ведет себя не однозначно. В одной области образца она перед разрывом образца уменьшается, а в другой увеличивается.



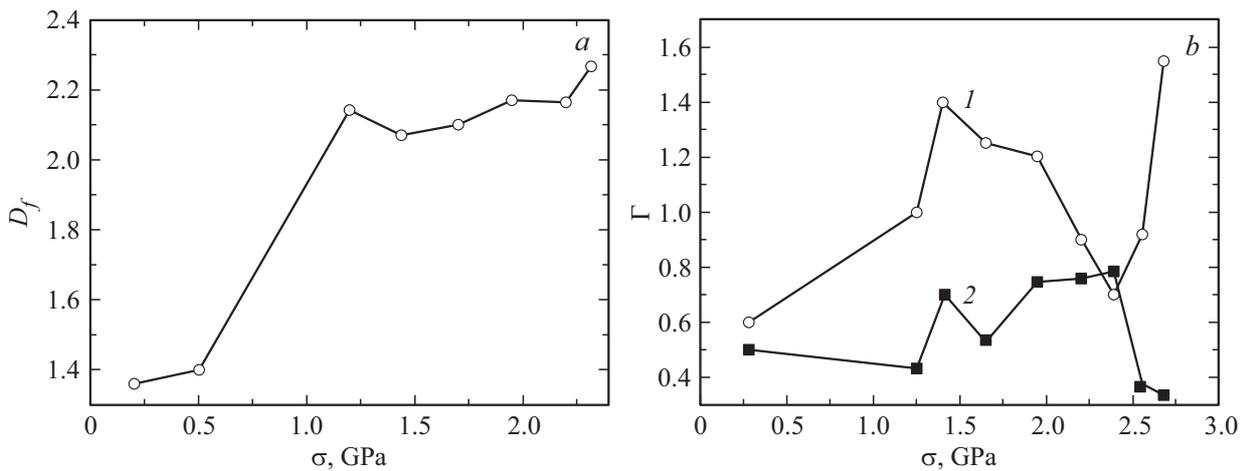
**Рис. 2.** СТМ-изображения поверхности МС  $\text{Fe}_{77}\text{Ni}_1\text{Si}_9\text{B}_{13}$ ,  $a - \sigma \approx 0$ ,  $b - \sigma = 0.2 \text{ GPa}$ ,  $c - \sigma = 0.5 \text{ GPa}$ ,  $d - \sigma = 1.1 \text{ GPa}$ ,  $e - \sigma = 2.3 \text{ GPa}$ ,  $f(a) - 2.6 \text{ GPa}$ .



**Рис. 3.** АСМ-изображения поверхности МС  $\text{Fe}_{77}\text{Ni}_1\text{Si}_9\text{B}_{13}$ :  $a, b, c$  — площадки  $(30 \times 30) \mu\text{m}^2$ ,  $d, e, f$  — площадки  $(10 \times 10) \mu\text{m}^2$ ,  $a - \sigma = 0.2 \text{ GPa}$ ,  $b - \sigma = 0.6 \text{ GPa}$ ,  $c - \sigma = 2 \text{ GPa}$ ,  $d - \sigma = 0.2 \text{ GPa}$ ,  $e - \sigma = 1.4 \text{ GPa}$ ,  $f - \sigma = 2.5 \text{ GPa}$ .

Анализ предыдущих работ показал, что по изменению фрактальной размерности поверхности в образцах при их растяжении нельзя однозначно судить о предстоящем разрыве. Если система мультифрактальна, то  $D_f$ , измеренная от поверхностей малого размера, может сильно отличаться от  $D_f$ , измеренной от поверхностей большого размера [8]. Кроме того, к рассмотрению изменений мультифрактальности при тех же воздействиях нужно

подходить более осторожно. В работе было зафиксировано различие в поведении коэффициента Гельдера  $H$  и ширины спектра сингулярности  $\Gamma$  в предразрывном состоянии для разных областей поверхности образца. На рис. 5 представлены спектры сингулярностей в зависимости от приложенного напряжения ( $\sigma$  от 0.2 до 2.5 GPa). Необходимо отметить, что в [8] был рассмотрен одномерный случай.



**Рис. 4.** Рассчитанные по данным СТМ зависимости фрактальной размерности (а) и ширины спектра сингулярностей (b) от величины внешнего напряжения.

Типично для поверхности образца перед предстоящим разрывом  $\Gamma$  падает, что свидетельствует о стремлении системы к монофрактальности. Это, на наш взгляд, является одним из признаков предстоящего разрыва. Однако в одной из областей для той же серии падение  $\Gamma$  сменяется ее ростом перед разрывом образца, что дает некие сомнения для признака предстоящего разрыва.

В настоящей работе мы данный вопрос изучили особо. Во-первых, в предыдущих работах метод wavelet transform (WT) был применен для одномерного случая. Не ясно, как будет вести себя преобразование для двумерного случая. Во-вторых, в области, где наблюдается рост  $\Gamma$  перед разрывом образца, может происходить начальный рост магистральной трещины, что может оказать влияние на величину  $\Gamma$ .

### 3.1. Зависимости $D_f$ и $\Gamma$ от приложенного к образцу напряжения

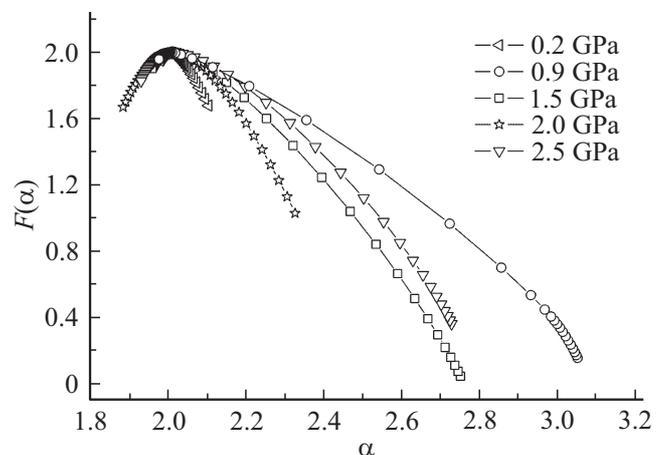
На рис. 4, а показана зависимость фрактальной размерности, которая получена методом box counting (BC), которая рассчитывалась из данных СТМ по программе Gwiddion. Зависимость от растягивающей нагрузки получена вплоть до разрыва образца. Из рисунка видно, что фрактальная размерность  $D_f$ , в общем, растет, однако, как отмечалось выше, считать это надежным признаком предстоящего разрыва нельзя [8].

На рис. 4, б показано влияние внешней нагрузки на ширину спектра сингулярностей, полученного из одномерного подхода. На графике мы видим два случая: 1 и 2. Эти зависимости относятся к одной серии опытов, однако случай 1 говорит о стремлении поверхности к монофрактальности, а случай 2 это опровергает. В работе [8] отступление от монофрактализации связывалось с не очень хорошей статистикой (максимально 200 точек на скан) и область получения топограмм с поверхности, площадью не более  $60 \mu m^2$ . Поэтому в настоящей работе область сканирования расширена до 512 точек на скан.

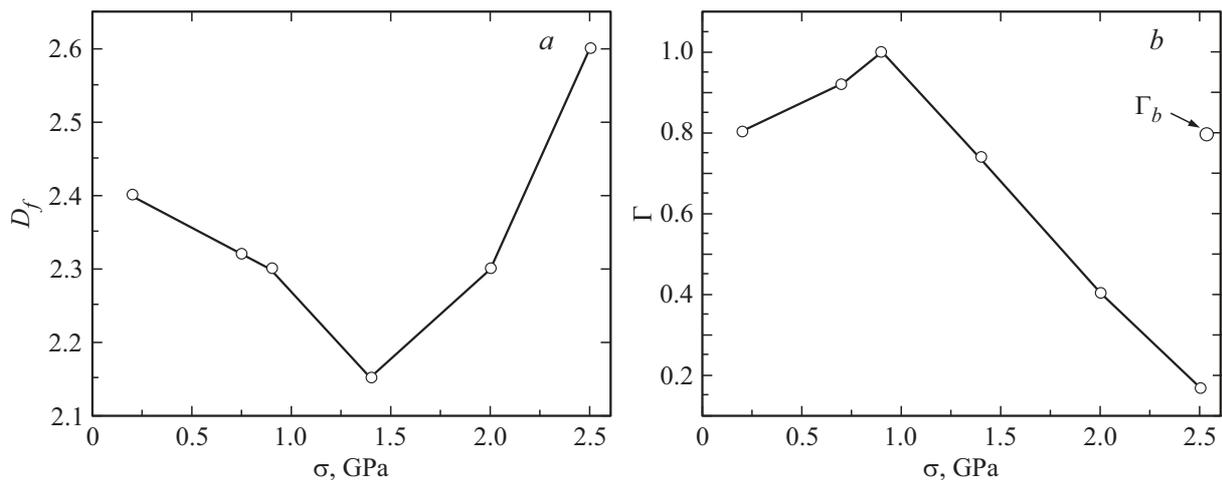
Кроме того части поверхности, от которых получены топограммы были  $10 \times 10$ ,  $20 \times 20$ ,  $30 \times 30$  микрометров, то есть их площади ( $100$ ,  $400$  и  $900 \mu m^2$ ).

В работе получены зависимости  $f(\alpha)$  от  $\alpha$  при различных напряжениях, приложенных к образцу. Это было сделано для разных площадок, для которых сняты рельефы. Мы будем сравнивать результаты, полученные методами СТМ и АСМ (одномерный и двумерный случаи); для этого нужно выбрать схожие размеры площадок. Площадки для СТМ ( $45-90 \mu m^2$ ), площадки для АСМ ( $100 \mu m^2$ ).

На рис. 2 помещены рельефы поверхностей образцов, полученных с помощью метода СТМ. Был произведен расчет  $D_f$  и ширины спектра сингулярностей  $\Gamma$  для этих поверхностей, данные которого приведены на рис. 4. Данные, показанные на рисунке очень близки к данным, полученным в [8]. Фрактальная размерность —  $D_f$  с ростом внешней нагрузки увеличивается, а для зависимости  $\Gamma$  от нагрузки имеем два случая. Случай 1:



**Рис. 5.** Рассчитанные из топограмм АСМ-спектры сингулярностей для площадок  $(10 \times 10) \mu m^2$  при различных напряжениях.



**Рис. 6.** Рассчитанные из топограмм АСМ-зависимости фрактальной размерности (а) и значения ширины спектра сингулярностей (b) различных напряжений.

перед разрывом образца растет ширина спектра сингулярностей. Случай 2: перед разрывом ширина спектра сингулярностей уменьшается, и это, согласно [8] является одним из признаков предстоящего разрыва образца. Однако остается вопрос, почему наблюдается и случай 1.

На рис. 5 показана зависимость  $f(\alpha)$  для указанных поверхностей, подвергнутых растяжению. Из рисунка видно, что рельеф поверхностей сильно зависит от нагрузки, как и в методе СТМ.

Был произведен расчет спектра сингулярностей  $f(\alpha)$  для поверхностей, которые приведены на рис. 3. На рис. 5 показана зависимость  $f(\alpha)$  для указанных поверхностей. Видно, что они различны. Из спектра сингулярностей можно определить ширину спектра сингулярностей —  $\Gamma$ . Поскольку приведенные поверхности образцов находятся при различных нагрузках, то можно построить зависимость ширины сингулярности поверхности от величины механического напряжения.

Из рис. 5 видно, что значения функции  $f(\alpha_{\min}) > f(\alpha_{\max})$  для всех исследованных поверхностей. Согласно [12] это означает, что на поверхности число возвышенностей преобладает над числом впадин. Однако, отмеченное неравенство может быть связано с аппаратными особенностями эксперимента: игла зондового микроскопа может легко подняться над поверхностью, но проникнуть в глубокую крутую впадину ей значительно сложнее.

На рис. 6, а показана зависимость фрактальной размерности от напряжения. Видно, что эта зависимость близка к зависимостям, полученными из СТМ топограмм. Нам больше интересуют зависимость ширины спектра сингулярностей поверхности от внешнего напряжения. Эта зависимость получена при большой статистике ( $512 \times 512$ ) точек на поверхности. Зависимость показывает стремление поверхности к монофрактальности, что может служить признаком предстоящего разрыва образца. Таким образом, реализуется случай 2: при

увеличении внешней нагрузки перед разрывом образца ширина спектра сингулярностей уменьшается.

### 3.2. Возможное влияние формирования магистральной трещины на ширину спектра сингулярностей

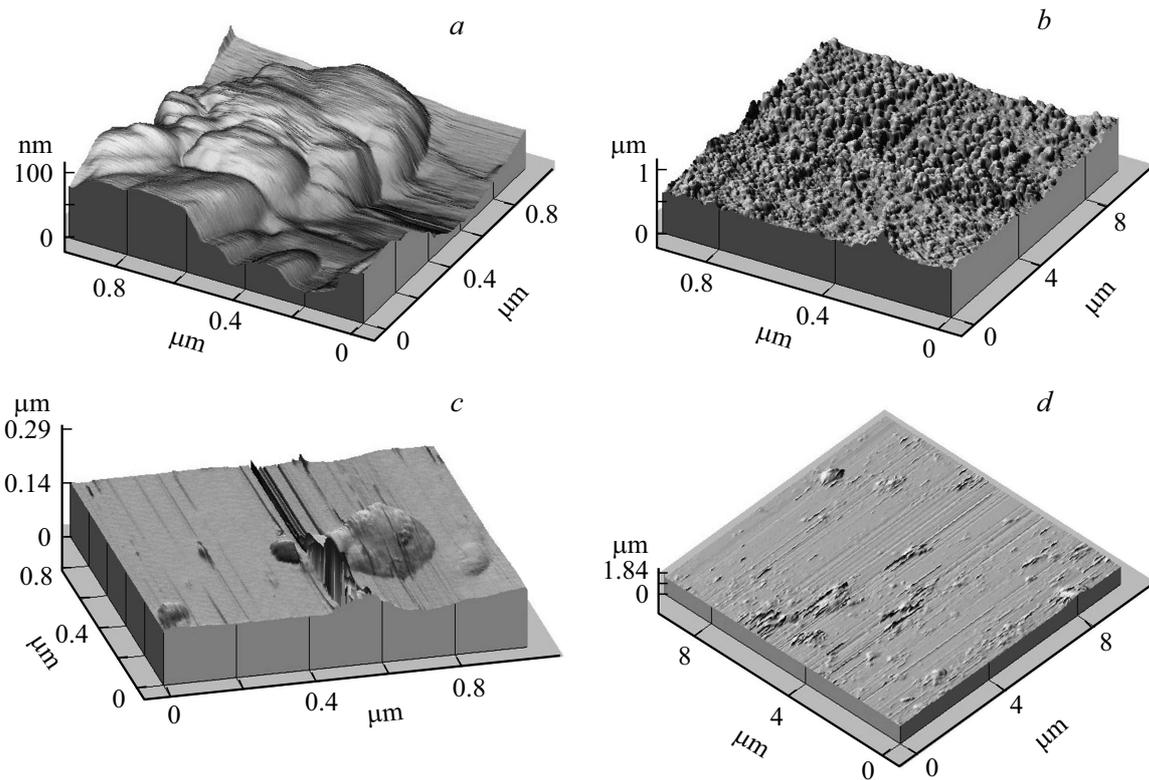
Мы рассмотрели внимательно оптическим методом и методом СЭМ область, где рост  $\Gamma$  и  $H$  меняется на уменьшение. Действительно, в этой области начинает формироваться трещина, а перед ее вершиной происходит частичное разглаживание поверхности, это может нарушать монофрактальность системы (смотри рис. 2, е).

Для подтверждения данной гипотезы мы сняли топограммы АСМ у разорванного образца вблизи к поверхности разрыва для площадок  $(10 \times 10) \mu\text{m}^2$ . Величина ширины спектра сингулярностей для разорванного образца —  $\Gamma_b = 0.8$ , что фактически совпадает с величиной  $\Gamma$  для исходной поверхности, смотри рис. 6, b. В точке  $\Gamma_b$ , изображенной на рис. 6, b фактически напряжение равно нулю. Это означает, что гипотеза о вкладе вершины магистральной трещины в поведение ширины, достаточно весома.

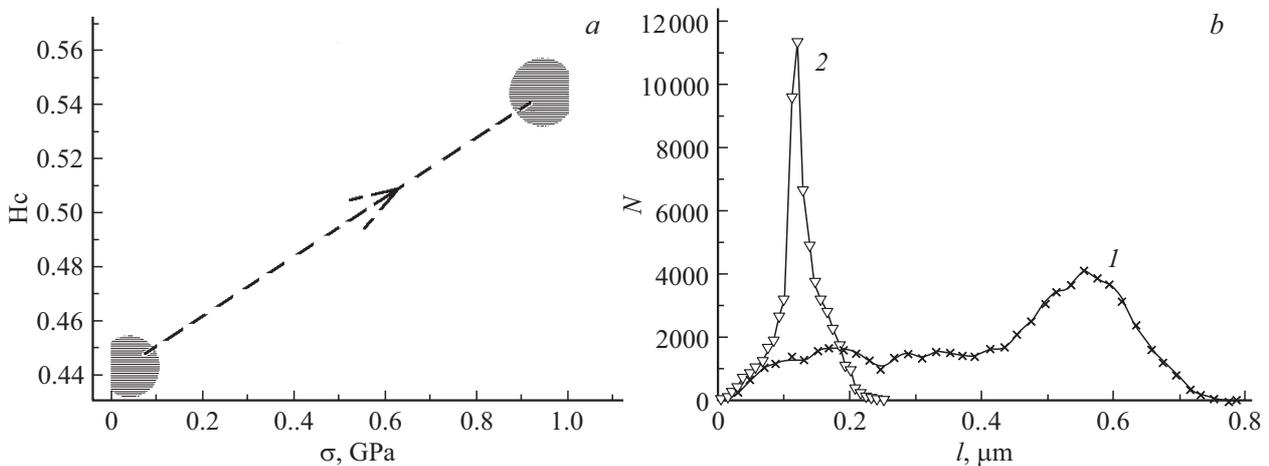
### 3.3. Влияние гидростатического давления на фрактальные свойства поверхности

Интересно посмотреть, как влияет гидростатическое сжатие на рельеф поверхности. На рис. 7 приведены разных масштабов топограммы поверхности образцов до и после гидростатического сжатия, полученные методом АСМ.

Видно, что гидростатическое сжатие сильно влияет на рельеф. Сильно бугристые поверхности (рис. 7, а, b) после выдержки образцов под давлением  $\sim 1$  GPa в течение нескольких часов разглаживаются. Количественно этот эффект показан на рис. 8, а. Рис. 8, а показывает



**Рис. 7.** Влияние гидростатического сжатия на свободную поверхность МС  $Fe_{77}Ni_1Si_9B_{13}$ . *a* и *b* — до гидростатического воздействия, *c* и *d* — поверхность после гидростатического воздействия. *a* и *c* — площадки  $(1 \times 1) \mu m^2$ , *b* и *d* — площадки  $(10 \times 10) \mu m^2$ .



**Рис. 8.** Области значений показателя Гельдера для поверхности образца МС  $Fe_{77}Ni_1Si_9B_{13}$  до и после выдержки образца под гидростатическим давлением 1 GPa (*a*), распределение внешних дефектов по размерам (*b*), до (1) и после гидростатического воздействия (2).

увеличение коэффициента Херста ( $H_c$ ) после выдержки образца под гидростатическим давлением. Это означает, что фрактальная размерность уменьшается, происходит разглаживание и уменьшение площади поверхности.

Рис. 8, *b* демонстрирует уменьшение относительного количества крупных и увеличение мелких дефектов. В работе [13,14] показано, что выдержка образцов

при гидростатическом сжатии приводит к уменьшению свободного объема, связанного с микропорами и повышению разрывной прочности образцов. В нашем случае это проявляется в разглаживании поверхности. Необходимо отметить факт, который демонстрируется на рис. 8, *b* — формирование узкого распределения поверхностных дефектов в латеральном направлении со

средним размером  $\sim 150$  nm под воздействием гидростатики. По нашему мнению это может быть связано с нанокристаллизацией и образованием нанокристаллов такого размера при воздействии на образец гидростатического давления.

#### 4. Выводы

Исходные поверхности, а также поверхности, подвергнутые гидростатическому сжатию и растяжению — мультифрактальны.

Характеристики геометрии поверхности образцов, подвергнутых одноосному растяжению, изменяются немонотонно. Перед критическим событием наблюдается тенденция перехода поверхности от мультифрактального к монофрактальному состоянию, которое в ряде случаев осложняется влиянием вершины магистральной трещины.

Поверхности, подвергнутые гидростатическому сжатию, неравномерно разглаживаются (коэффициент Херста увеличивается), происходит уменьшение площади поверхности. Это может происходить за счет уменьшения микропор на свободной поверхности.

Авторы выражают благодарность И.В. Гилярову за помощь в создании программы двумерного мультифрактального анализа поверхности.

#### Список литературы

- [1] Y. Yang, J.F. Zeng, A. Volland, J.J. Blandin, S. Gravier, C.T. Liu. *Acta Mater.* **60**, 5260 (2012).
- [2] Meng Gao, Dong Peng Wang, Yong Feng Huang, Sheng Meng, Wei Hua Wang. *Mater. Des.* **95**, 612 (2016).
- [3] E. Bouchaud, D. Boivin, J.-L. Pouchou, D. Bonamy, B. Poon, G. Ravichandran. *EPL* **83**, 66006 (2008).
- [4] M.Q. Jiang, J.X. Meng, J.B. Gao, X.-L. Wang, T. Rouxel, V. Keryvin, Z. Ling, L.H. Dai. *Intermetallics* **18**, 2468 (2010).
- [5] В.Л. Гиляров, М.С. Варкентин, В.Е. Корсуков, М.М. Корсукова, В.С. Куксенко. *ФТТ* **52**, 1311 (2010).
- [6] W. Pilarczyk, A. Zarychta. *J. Therm. Anal. Calorim.* **125**, 1453 (2016).
- [7] A. Vinogradov, I.S. Yasnikov, Y. Estrin. *Phys. Rev. Lett.* **108**, 205 504 (2012).
- [8] В.Л. Гиляров, В.Е. Корсуков, П.Н. Бутенко, В.Н. Светлов. *ФТТ* **46**, 1806 (2004).
- [9] V. Korsukov, P. Butenko, A. Chmel. *EPL* **90**, 26007 (2010).
- [10] В.Е. Корсуков, В.И. Бетехтин, М.С. Варкентин, В.Л. Гиляров, А.Г. Кадомцев, М.М. Корсукова, Б.А. Обидов. *ФТТ* **55**, 729 (2013).
- [11] В.И. Бетехтин, П.Н. Бутенко, В.Л. Гиляров, А.Г. Кадомцев, В.Е. Корсуков, М.М. Корсукова, Б.А. Обидов. *ФТТ* **50**, 1800 (2008).
- [12] M. Nasehnejad, M. Cholipour Shahraki, G. Nabiyouni. *Appl. Surf. Sci.* **389**, 735 (2016).
- [13] В.И. Бетехтин, А.Г.Кадомцев, Т.В. Ларионова, М.В. Нарыкова. *Металловедение и термическая обработка материалов* **10**, 38 (2014).
- [14] В.И. Бетехтин, А.Г. Кадомцев, О.В. Толочко. *ФТТ* **43**, 1815 (2001).

*Редактор К.В. Емцев*