

纳米压痕硬度尺寸效应分析及其试验研究

周亮 姚英学

(哈尔滨工业大学机电学院 哈尔滨 150001)

摘要：针对材料纳米压痕硬度的压痕尺寸效应(Indentation size effect, ISE)，利用纳米压痕技术测得单晶铝和单晶硅的载荷—压深曲线，获得最大载荷和最大压深，并结合原子力显微镜，获得压痕的三维形貌，计算出压痕的真实残余面积。根据最大压深和残余面积提出了一个新的模型——残余面积最大压深模型，此模型能更好地理解 and 描述材料硬度的压痕尺寸效应，并与其他几种典型的理论和模型进行了比较和分析。

关键词：压痕尺寸效应 纳米压痕 原子力显微镜 硬度 残余面积最大压深模型

中图分类号：TB302.3

0 前言

硬度是评价材料力学性能的一种简单、高效的手段。纳米压痕设备具有高分辨率的致动器和传感器，非常适合于较浅的压痕深度^[1]。纳米压痕技术通过实时获得载荷和压深数值，得到载荷—压深曲线。常用的计算材料硬度的方法 Oliver-Pharr 方法，即通过卸载曲线计算出接触深度，并得到压头与试件之间接触表面的投影面积，从而计算出材料的硬度值。

在对许多工程材料的纳米压痕硬度测试试验中，都出现了压痕尺寸效应(Indentation size effect, ISE)，即材料的硬度值具有随载荷增大而减小的趋势。硬度的压痕尺寸效应将严重影响硬度参数在材料检测与评价中的应用^[2]，对同种材料的不同载荷下，或不同材料的相同载荷下，硬度值都缺乏可比性。因此，材料硬度的压痕尺寸效应一直是学术界研究的前沿和热点之一。

针对材料硬度的尺寸效应，许多学者建立了一些模型和公式，进行了有意义的探讨，比如：Meyer 方程、弹性恢复模型、Hays-Kendall 方法、试样比例阻力模型(PSR)及其修正模型等^[2-3]，并根据相应的模型和公式对硬度压痕尺寸效应作了一些解释和描述。

原子力显微镜(Atomic force microscopy, AFM)由于具有很高的纵向和横向分辨率，可以得到材料微纳米级表面的真实三维形貌。从三维形貌图中可以得到材料更多的信息，所以一些研究人员将其与纳米压痕技术结合起来，对材料的力学性能进行了

相关研究^[4-7]。

通过对单晶铝和单晶硅的纳米压痕试验，得到其最大载荷 F_{\max} 和最大压深 h_{\max} ，并利用 AFM 得到压痕的真实三维形貌，结合 Matlab 软件强大的数据计算和处理功能，得到压痕的实际残余面积 A 。根据 h_{\max} 和 A 这两个真实的数值，提出一个新的模型——残余面积最大压深模型，此模型能更好地理解 and 描述材料压痕硬度的压痕尺寸效应，并对此模型与其他几种模型和公式进行了比较分析。

1 试验过程与结果

单晶铝试件为 $f25\text{ mm} \times 5\text{ mm}$ 的圆柱体，通过超精密车床，利用金刚石刀具车削加工而成，表面粗糙度 $R_a < 10\text{ nm}$ 。单晶硅试件为 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 1\text{ mm}$ 的整体材料，表面粗糙度 $R_a < 5\text{ nm}$ 。纳米硬度计是 MTS 公司生产的 Nano，其载荷分辨率为 $\pm 75\text{ nN}$ ， z 向位移分辨率为 $\pm 0.04\text{ nm}$ ，压头为 Berkovich 压头。通过纳米硬度计获得的单晶铝和单晶硅载荷—压深曲线分别如图 1、2 所示，其他压深下的载荷—压深曲线类似。从中可以获得压痕的最大载荷 F_{\max} 和最大压深 h_{\max} ，每组数据为多次试验结果的平均值。

AFM 是 Digital Instruments 公司的 Dimension 3100 型扫描探针显微镜 / 原子力显微镜，其 z 向分辨率为 0.05 nm ， x 、 y 向误差为 1%。利用 AFM 获得的压痕三维形貌如图 3(单晶铝)和图 4(单晶硅)所示。从中可以看到在压痕周围有凸起，在三条边中间处最多，而在三个夹角处最小。对单晶铝的试验一共做了 4 组，每组 5 次，压深分别为 400 nm 、 800 nm 、 $1\ 200\text{ nm}$ 和 $1\ 700\text{ nm}$ ；对单晶硅的试验一共做了 5 组，每组 4 次，压深分别为 500 nm 、 800 nm 、 $1\ 000\text{ nm}$ 、 $1\ 200\text{ nm}$ 和 $1\ 500\text{ nm}$ 。

* 国家自然科学基金(59571263)和霍英东基金资助项目。20050618收到初稿，20051011收到修改稿

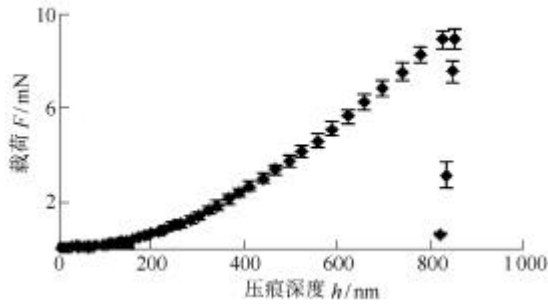


图1 单晶铝的载荷—压深曲线

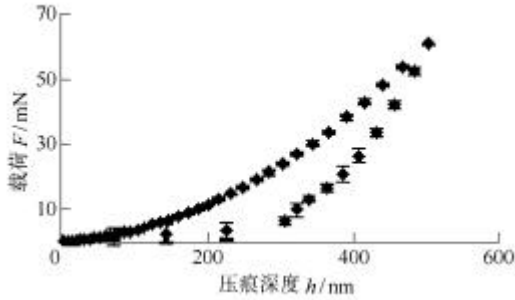


图2 单晶硅的载荷—压深曲线

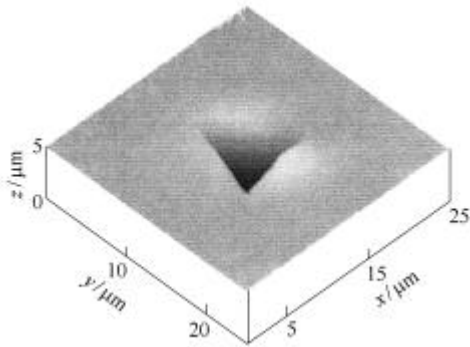


图3 AFM 测得的单晶铝压痕三维形貌图

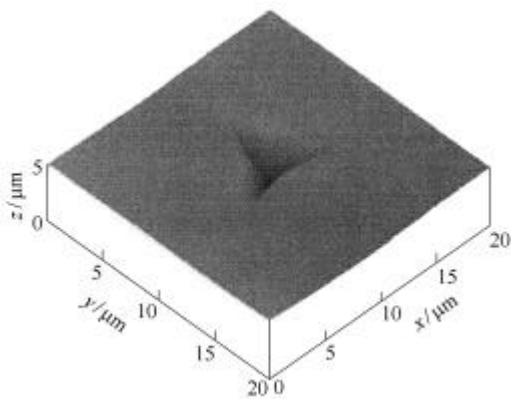


图4 AFM 测得的单晶硅压痕三维形貌图

根据 Oliver-Pharr 方法(式(1)~(4))可得到压痕的接触深度 h_c 、压头与试件接触表面的投影面积 A_c 、硬度值 $HM_{OP}^{[1]}$

$$HM_{OP} = F / A_c \tag{1}$$

$$S = (dF/dh)_{h=h_{max}} = Bm(h_{max} - h_f)^{m-1} \tag{2}$$

$$h_c = h - eF_{max} / S \tag{3}$$

$$A_c = 24.56h_c^2 + \sum_{i=0}^7 C_i h_c^{1/2^i} \tag{4}$$

式中 HM_{OP} ——硬度值

F ——载荷

A_c ——接触表面的投影面积

S ——弹性接触刚度

h_c ——接触深度

B, m ——卸载曲线的拟合参数

h_f ——完全卸载后的位移

e ——与压头形状有关的常数, 对于 Berkovich 压头, $e=0.75$

C_i ——与压头形状有关的标定出的常数

由式(1)~(4)得到单晶铝和单晶硅的 A_c 和 HM_{OP} 分别列入表 1 和表 2 中。

表1 单晶铝的试验数据

压深 h/nm	400	800	1 200	1 700
最大载荷 F_{max}/mN	2.506	8.705	17.422	33.314
最大压深 h_{max}/nm	428.4	850.4	1 254.8	1 785.3
硬度值 HM_{OP}/GPa	0.564	0.505	0.454	0.431
硬度值 HM_r/GPa	0.851	0.558	0.423	0.404
压痕面积 $A_c/\mu m^2$	4.443	17.237	38.373	77.295
压痕面积 $A_r/\mu m^2$	2.946	15.599	41.203	82.493

表2 单晶硅的试验数据

压深 h/nm	500	800	1 000	1 200	1 500
最大载荷 F_{max}/mN	61.6	149.9	221.5	313.4	477.7
最大压深 h_{max}/nm	506.8	802.9	998.0	1 200.9	1 485.2
硬度值 HM_{OP}/GPa	15.03	14.92	13.95	14.28	13.82
硬度值 HM_r/GPa	22.89	18.37	16.68	16.92	16.01
压痕面积 $A_c/\mu m^2$	4.10	10.05	15.87	21.95	34.57
压痕面积 $A_r/\mu m^2$	2.69	8.16	13.28	18.53	29.84

从 AFM 获得的压痕三维形貌图(图 3、4)中可以看出：在压痕的三条边上有凸起现象，在夹角处最小，在三条边中间处最高，而且三条边处的凸起高度不一样。要精确计算压痕的真实残余面积，用肉眼观察易产生误差，也不易计算。可以将 AFM 测得的压痕三维形貌数据存入数据文件，再用 Matlab 软件强大的数据处理和计算功能，来处理这些数据。经 Matlab 处理后的压痕形貌正面图如图 5、6 所示，图 5、6 中白线为由压痕的三个顶点连成的三角形。从图 5、6 中可以看出，单晶铝的塑性变形较大，而单晶硅的弹性恢复较大。通过 Matlab 的计算，可以得到白色三角形内的黑色区域的面积 A_r (真实的压痕残余面积)，利用式(5)可求出相应的硬度值 HM_r 。 A_r 和 HM_r 的数值在表 1 和表 2 中列出

$$HM_r = F_{max} / A_r \tag{5}$$

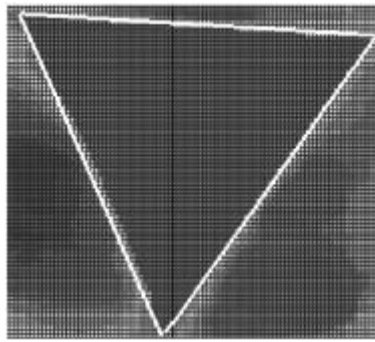


图 5 Matlab 处理后的单晶铝压痕正面图

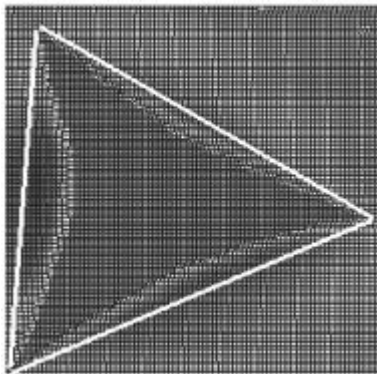


图 6 Matlab 处理后的单晶硅压痕正面图

单晶铝和单晶硅的硬度值 HM_{OP} 、 HM_r 与最大载荷 F_{max} 之间的关系如图 7、8 所示。从图 7、8 中可以看出， HM_{OP} 、 HM_r 具有随载荷变化相同的趋势，都有压痕尺寸效应，而 HM_r 更明显些。

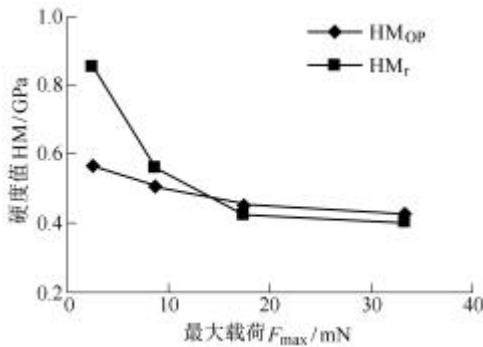


图 7 单晶铝硬度与最大载荷曲线图

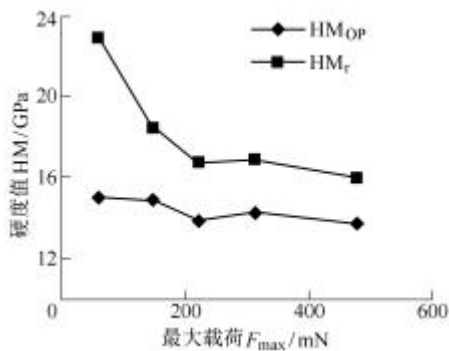


图 8 单晶硅硬度与最大载荷曲线图

2 分析与讨论

2.1 Meyer 方程

Meyer 方程是描述硬度压痕尺寸效应应用最广的方法^[3]，它的公式如式(6)所示，其中 a 和 n 是从试验数据中拟合出来的数据。结合试验，可将式(6)写成式(7)的形式， $\ln F_{max} - \ln A^{1/2}$ 的关系曲线如图 9、10 所示，可以看出它们有很好的线性关系。但 Meyer 方程中的参数 a 和 n 对解释压痕尺寸效应的物理意义不明确^[2]。

$$F_{max} = ah_c^n \tag{6}$$

$$F_{max} = a(\sqrt{A})^n \tag{7}$$

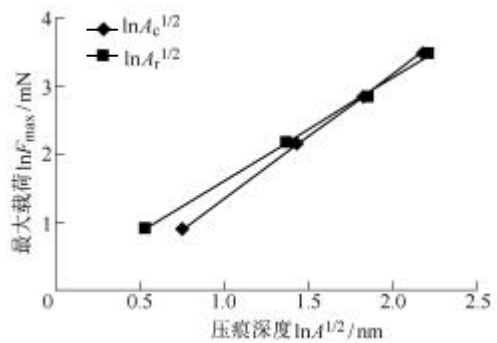


图 9 单晶铝的 $\ln F_{max}$ 与 $\ln A^{1/2}$ 关系图

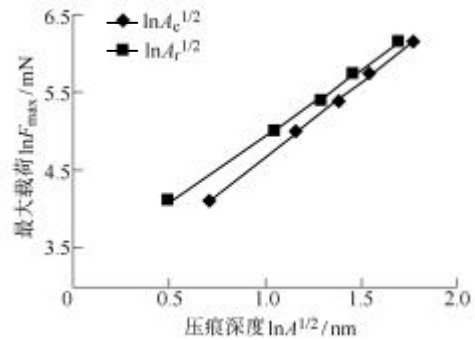


图 10 单晶硅的 $\ln F_{max}$ 与 $\ln A^{1/2}$ 关系图

2.2 Hays-Kendall 方法、弹性恢复模型、试样比例阻力模型及其修正模型

Hays-Kendall 方法、弹性恢复模型、试样比例阻力模型及其修正模型虽然解释和描述硬度的尺寸效应不同，但它们的表达式类似，用于导致材料发生塑性体积形变的有效外加载荷 F_{eff} 可以用式(8)表示出来^[3]。其中 Hays-Kendall 方法中的参数 W 被认为是试件中存在的一个最小的试验载荷，在低于此载荷时只有弹性变形，而没有压痕。在试样比例阻力模型中， a_1 和 a_2 分别表示与材料弹性和塑性有关的参数，其中 a_2 表示与材料的真实硬度 HM_0 相关的量^[3]， $HM_0 = a_2 / 24.5$ 。利用试验数据可得到 $F_{max} h_c^2$ 之

间的关系图(即 F_{\max} 与面积 A 之间的关系图),从中也可以看出它们之间有良好的线性(图 11、12)

$$F_{\text{eff}} = F_{\max} - W = F_{\max} - a_1 h_c = a_2 h_c^2 \quad (8)$$

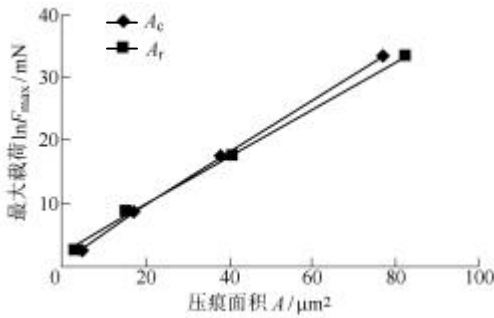


图 11 单晶铝的 F_{\max} 与 A 关系图

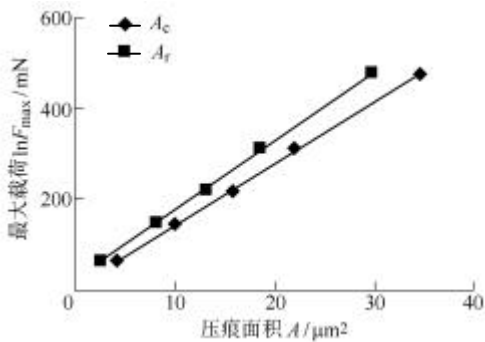


图 12 单晶硅的 F_{\max} 与 A 关系图

龚江宏等^[2-3]提出了一个修正的试样比例阻力模型(式(9)),在试样比例阻力模型的基础上引入了一个常数项 a_0 ,表示由于残余应力或测试系统误差引起的差值。最大载荷 F_{\max} 与接触深度 h_c 之间的关系图如图 13、14 所示,可以看出试验数据与式(9)很吻合,图 13、14 中 A_r 的接触深度 h_c 用 $A_r^{1/2}$ 来表示和计算得到

$$F_{\max} = a_0 + a_1 h_c + a_2 h_c^2 \quad (9)$$

2.3 残余面积最大压深模型

上述几种模型和公式都是建立在以 h_c 为变量的基础上进行分析和处理数据。虽然这些模型和公式与试验数据吻合,但 h_c 毕竟是个估算值,它必将影响这些模型和公式的准确性。在式(9)的基础上,提

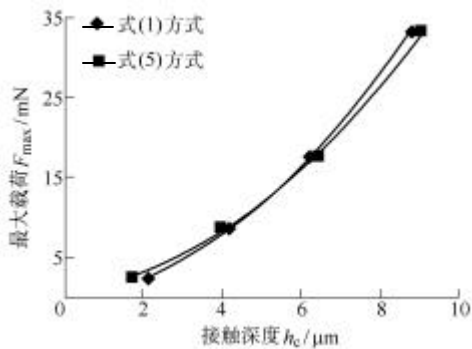


图 13 单晶铝的 F_{\max} 与 h_c 关系曲线

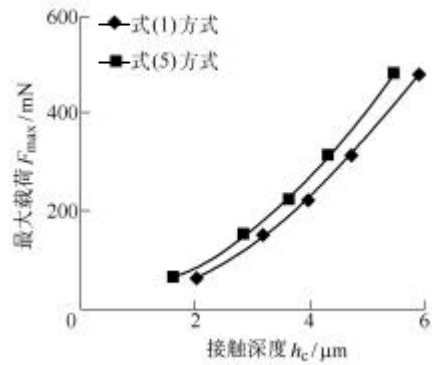


图 14 单晶硅的 F_{\max} 与 h_c 关系曲线

出一个新的模型——残余面积最大压深模型(式(10)),以 h_{\max} 来代替 h_c ,以 A_r 代替 h_c^2 , a_1 和 a_2 分别表示与材料弹性和塑性有关的参数, a_0 表示由于材料表面加工硬化、氧化层、表面粗糙度等引起的材料表面初始状态存在的一个载荷

$$F_{\max} = a_0 + a_1 h_{\max} + a_2 A_r \quad (10)$$

图 15、16 分别表示单晶铝和单晶硅的 $F_{\max} - a_0 - a_1 h_{\max}$ 与 A 之间的关系图,从中可以看出它们之间有很好的线性,线性度大于 0.999。表 3 列出了用 Matlab 中多变量最小二乘法求出的 a_0 、 a_1 、 a_2 的数值,

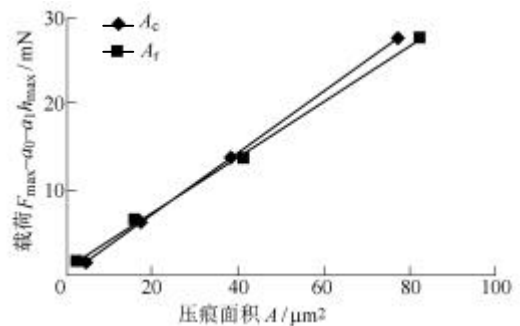


图 15 单晶铝的 $F_{\max} - a_0 - a_1 h_{\max}$ 与 A 关系图

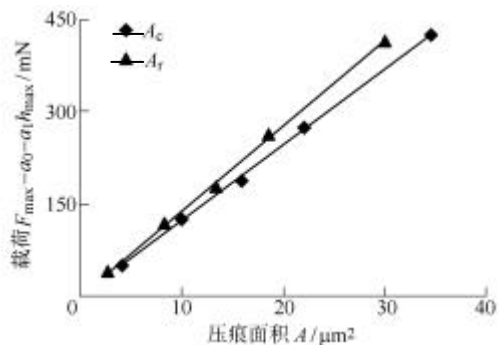


图 16 单晶硅的 $F_{\max} - a_0 - a_1 h_{\max}$ 与 A 关系图

表 3 试验数据按式(10)拟合的结果

	参数 a_0 /mN	参数 a_1 /(mN · μm^{-1})	参数 a_2 /GPa	
单晶铝	式(1)方式	-0.532	3.480	0.357
	式(5)方式	0.024	3.844	0.318
单晶硅	式(1)方式	-10.129	41.778	12.318
	式(5)方式	3.689	38.210	13.999

从中可以看出,用 A_c 得到的曲线拟合公式中 a_0 为负值,而用 A_r 得到的为正值,说明 A_c 中仍然有弹性成分在里面,而在 A_r 中已去除了弹性变形。 h_{\max} 和 A_r 都是真实的测量数据,而且与弹性有关的参数 a_1 不可能只作用在从开始到 h_c 的范围内,而是在从开始到最大压深范围内都有作用的量,式(10)更有利于对硬度压痕尺寸效应的理解。

3 结 论

通过对单晶铝和单晶硅的纳米压痕试验,测得其载荷—压深加载和卸载曲线,得到真实的最大压深 h_{\max} 和最大载荷 F_{\max} , 并利用 AFM 测得压痕的真实三维形貌,结合 Matlab 软件能测得压痕的真实残余面积 A_r 和硬度值 HM_r 。用 Oliver-Pharr 方法测得的硬度值 HM_{OP} 与 HM_r 都有压痕尺寸效应,但 HM_r 的压痕尺寸效应比 HM_{OP} 要更明显些。

Meyer 方程、弹性恢复模型、Hays-Kendall 方法、试样比例阻力模型(PSR)及其修正模型等虽然与试验数据相吻合,但在微纳米尺度下,都是建立在以 h_c 为变量的基础上进行分析和处理数据的, h_c 毕竟是个估算值,它必将影响这些模型和公式的准确性。

提出了一个新的模型——残余面积最大压深模型(式(10)),利用实际测得的最大压深 h_{\max} 和残余面积 A_r 代替式(9)中的估算值 h_c 和 h_c^2 , 其结果更具真实性和可靠性,也便于更好地理解 and 描述材料硬度的压痕尺寸效应,当然,此模型还需对更多材料进行试验,以作进一步的验证。

参 考 文 献

- [1] 张泰华 杨业敏. 纳米硬度技术的发展和应[J]. 力学进展, 2002, 32(3): 349-363.
- [2] 龚江宏, 赵喆, 吴建军, 等. 陶瓷材料 Vickers 硬度的压痕尺寸效应[J]. 硅酸盐学报, 1999, 27(6): 693-700.
- [3] PENG Zhijian, GONG Jianhong, MIAO Hezhan. On the description of indentation size effect in hardness testing for ceramics: analysis of the nanoindentation data[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2004 (24): 2 193-2 201.
- [4] RANDALL N X, JULIA-SCHMUTZ C, SORO J M.

Combining scanning force microscopy with nanoindentation for more complete characterization of bulk and coated materials[J]. Surface and Coatings Technology, 1998 (108/109): 489-495.

- [5] CHOWDHURY S, LAUGIER M T. The use of non-contact AFM with nanoindentation techniques for measuring mechanical properties of carbon nitride thin films[J]. Applied Surface Science, 2004 (233): 219-226.
- [6] SOIFER Y M, VERDYAN A, RAPOPORT L. Nanoindentation size effect in alkali-halide single crystals[J]. Materials Letters, 2002 (56): 127-130.
- [7] ASHOK V K, BHUSHAN B. Nanoscale mechanical property measurements using modified atomic force microscopy[J]. Thin Solid Films, 1996 (290/291): 206-210.

ANALYSIS AND EXPERIMENT STUDY OF INDENTATION SIZE EFFECT IN NANOINDENTATION HARDNESS TEST

ZHOU Liang YAO Yingxue

(School of Mechanical and Electrical Engineering, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001)

Abstract: Single crystal aluminium and single crystal silicon are used for nanoindentation experiment where peak load and max depth are obtained from experiment. 3D morphology images of nanoindentation are obtained by atomic force microscopy, and residual areas are obtained from atomic force microscopy (AFM) images. Based on maximal depth and residual area, a new model-residual area max depth model is proposed for indentation size effect (ISE) of nanoindentation hardness. The model can understand and describe ISE of material indentation hardness better. Finally, comparison and analysis are carried out between the model and other several typical theories and models.

Key words: Indentation size effect Nanoindentation Atomic force microscopy Hardness Residual area maximal depth model

作者简介:周亮,男,1975年出生,博士研究生,讲师。主要从事材料微纳米级表层质量检测系统的研究。

E-mail: lzhou75@163.com