



# ИЗМЕРЕНИЕ ТВЕРДОСТИ. КОНТРОЛЬ ФОРМЫ НАКОНЕЧНИКА\*

А.Усеинов, к.ф.-м.н., К.Кравчук, К.Гоголинский, к.т.н. / useinov@mail.ru

**В** работе дан обзор способов определения формы наконечника для измерительного индентирования. Предложено его определение сканированием алмазным индентором острого выступа в режиме полуконтактной сканирующей зондовой микроскопии (СЗМ). Проведен анализ факторов, влияющих на определение этой формы и оперативность получения результирующей функции формы индентора.

Вдавливание твердого наконечника известной формы (индентора) – наиболее распространенный способ измерения твердости материала. Для таких измерений могут применяться наконечники различной формы: шарообразные (Бринелля), конусные (Роквелла), пирамидальные (Кнупа, Виккерса, Берковича, угол куба). В методах Бринелля и Виккерса твердость материала определяется по размеру отпечатка индентора, а в методе Роквелла – по глубине его проникновения. Для измерения твердости приповерхностного слоя в основном применяются трехгранные алмазные наконечники, характеризующиеся минимальным размером острия, причем современные технологии позволяют изготавливать алмазные наконечники с эффективным размером острия порядка 30–50 нм.

Для определения физико-механических свойств материалов в субмикронных и нанометровых масштабах используется метод измерительного индентирования (ИИ), теперь называемый наноиндентированием. Основы метода разработаны в 1960 годы в СССР [1–2]. Широкое распространение он получил после публикации [3], представившей наиболее согласованную модель анализа экспериментальных зависимостей.

В отличие от методов, в которых твердость измеряется по площади остаточного отпечатка или глубине внедрения индентора, в наноиндентировании она вычисляется при математической обработке зависимости нагрузки от глубины внедрения индентора. Твердость вычисляется как функция от указанных измеряемых физических величин и является средним контактным давлением под индентором с размерностью Н/м<sup>2</sup>.

Этот принцип позволил использовать ИИ на субмикронных и нанометровых глубинах, когда невозможно наблюдение отпечатка оптическими методами. Метод лежит в основе международного стандарта ISO 14577 [4]. Общее требование к различным применяемым конструкциям и кинематическим схемам – одновременное измерение абсолютных значений силы и перемещения.

Один из ключевых аспектов метода – необходимость точного знания формы наконечника. При анализе зависимости нагрузка–внедрение и расчете механических свойств (твердости, модуля упругости) форма наконечника точно задана функцией  $A(h)$ , представляющей собой зависимость площади сечения наконечника  $A$  от расстояния вдоль оси индентора  $h$ . Следует отметить, что его форма – один из основных источников ошибок в наноиндентировании [5].

При макро- и микромасштабах важно сохранить самоподобие геометрии наконечника, которая легко контролируется оптически. Однако при уменьшении глубины внедрения до уровня нанометров оценка размера наконечника уже недоступна для оптики. При переходе к субмикронным и нанометровым диапазонам даже ничтожное отклонение от идеальной пирамиды приводит к серьезной ошибке в измеряемой твердости. В данной работе проведено сравнение различных способов определения формы наконечника на примере индентора Берковича.

## ИЗМЕРИТЕЛЬНОЕ НАНОИНДЕНТИРОВАНИЕ

Метод наноиндентирования заключается в том, что твердый алмазный наконечник вдавливается в поверхность и при достижении заданной нагрузки

\* Технологический институт сверхтвердых и новых углеродных материалов (ТИСНУМ).

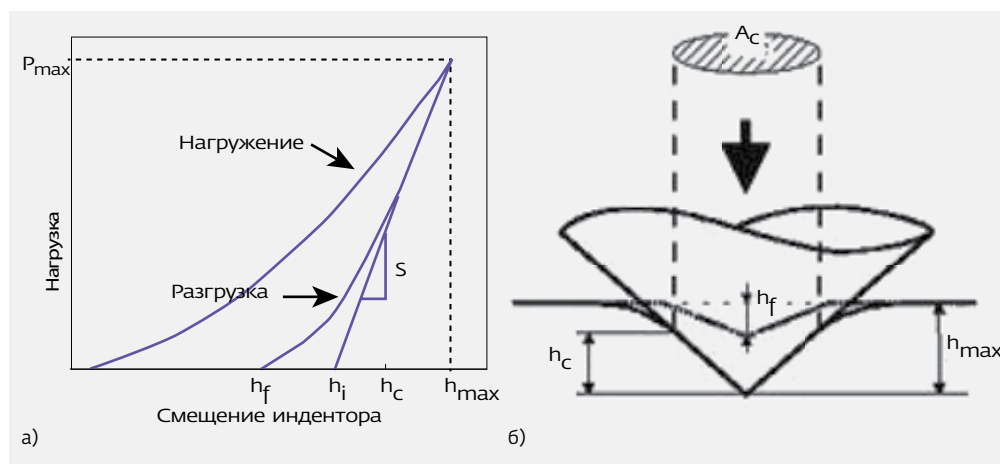


Рис.1. Типичная кривая нагружения/разгрузки (а); схема контакта индентора с поверхностью (б)

отводится обратно. При испытаниях производится запись нагрузки и соответствующего ей перемещения индентора. График результирующей зависимости называется кривой нагружения/разгрузки (рис.1).

При наноиндентировании скорость перемещения индентора поддерживалась равной 100 нм/с. Твердость  $H$  образца определялась выражением [6]:

$$H = \frac{P_{\max}}{A_c} \quad (1)$$

Здесь  $A_c$  - площадь проекции отпечатка при максимальной нагрузке  $P_{\max}$ .

Приведенный модуль упругости определялся выражением:

$$E_T = \frac{1}{\beta} \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{S}{\sqrt{A_c}} \quad (2)$$

где константа  $\beta$  зависит от формы индентора. В наноиндентировании чаще всего применяется трехгранная пирамида Берковича [7]. Угол при ее вершине составляет  $142^\circ$ , а  $\beta$  принимается равной 1,034 [5]. Жесткость контакта  $S$  определяется по углу наклона кривой разгрузки в точке  $P_{\max}$ :

$$S = \left( \frac{dP}{dh} \right)_{P=P_{\max}} \quad (3)$$

Контактная глубина при внедрении индентора в материал  $h_c$  вычисляется по формуле:

$$h_c = h_{\max} - \epsilon \frac{P_{\max}}{S} = h_{\max} - \epsilon(h_{\max} - h_i) \quad (4)$$

где константа  $\epsilon$  зависит от геометрии индентора ( $\epsilon \sim 0,75$  для пирамиды Берковича);  $h_i$  - расстояние, соответствующее пересечению касательной к кривой разгрузки в начальной части с осью внедрения.

Площадь проекции  $A_c$  определяется из заданной функции формы индентора  $A(h)$  при подстановке рассчитанного значения контактной глубины  $h_c$ :

$$A_c = A(h_c) \quad (5)$$

### НАНОТВЕРДОМЕР "НАНОСКАН"

Эксперименты выполнены с помощью сканирующего нанотвердомера "НаноСкан-3D" производства ТИСЧУМ (рис.2), совмещающего методы СЗМ и наноиндентирования.

Он предназначен для исследования рельефа и структуры поверхности, измерения механических свойств материалов (в том числе твердости и модуля упругости) с высоким пространственным разрешением [8-9].



Рис.2. Сканирующий нанотвердомер "НаноСкан-3D"

Главное отличие прибора от сканирующих зондовых микроскопов - применение пьезорезонансного зондового датчика-кантилевера камертонной конструкции с высокой изгибной жесткостью консоли (порядка 20 кН/м). На его свободном конце закреплен алмазный наконечник. Датчик может работать в режимах: динамическом резонансном и статического изгиба.

Использование резонансных колебаний позволяет контролировать контакт острия с поверхностью по изменению амплитуды и частоты колебаний зонда. Резонансный режим обеспечивает высокую стабильность и гарантирует мягкий контакт острия с поверхностью материала во время сканирования.



Сила прижима составляет несколько микроньютонов. Благодаря этому изображение рельефа поверхности большинства твердых материалов не уступает изображениям, полученным с помощью классических сканирующих микроскопов.

В то же время высокая изгибная жесткость консоли позволяет острию проникать сквозь вязкий слой до контакта с упругой поверхностью, а также индентировать и наносить царапины (склерометрия) с нагрузкой до нескольких сотен миллиньютонов. Изгиб зонда контролируется с помощью высокоточного датчика перемещений, позволяющего измерять силу нагружения при внедрении индентора в материал.

### АНАЛИЗ ОСТАТОЧНЫХ ОТПЕЧАТКОВ

На ранних этапах развития наноиндентирования стандартной процедурой определения функции формы индентора было нанесение серии уколов с разной глубиной внедрения в материал, для которого деформация носила преимущественно пластический характер [10]. Площадь измерялась по изображению отпечатка. Для этого подхода критична решающая способность прибора, с помощью которого производится наблюдение отпечатка. Для таких целей применялись различные виды микроскопии: оптическая, сканирующая электронная, просвечивающая электронная, атомно-силовая.

При субмикронных размерах отпечатков оптическая микроскопия не может применяться из-за недостаточного разрешения, однако для достаточно больших отпечатков иногда используется сканирующая электронная микроскопия [11]. Метод подходит не для всех материалов и плохо работает для малых отпечатков, поскольку их контуры на изображении сильно размыты.

Один из способов определения формы наконечника – изготовление углеродных реплик отпечатков в очень мягком материале и наблюдение их

в просвечивающем электронном микроскопе [12]. Для измерения механических свойств такая процедура чрезвычайно неэффективна, поэтому при анализе остаточных отпечатков оптимальна атомно-силовая микроскопия.

Для определения формы индентора по остаточному отпечатку выбран высокочистый алюминий, поскольку он отличается очень малым упругим восстановлением. Подготовка поверхности включала полировку и электрохимическое травление. Ее шероховатость ( $R_a=3$  нм) определялась в режиме СЗМ.

Для получения изображения применялся атомно-силовой микроскоп "Интегра Прима" [13]. Для удобства представления изображение отпечатка было инвертировано. Функция формы наконечника получена сечением изображения плоскостями, перпендикулярными высоте пирамиды (рис.3). При этом базовая плоскость изображения предварительно выравнивалась по горизонтали. Изображение отпечатка было также получено с помощью "НаноСкан-3D" в режиме полуконтактной СЗМ.

### КРИВЫЕ НАГРУЖЕНИЯ/РАЗГРУЗКИ

Наиболее распространенный метод определения функции формы индентора – нанесение серии уколов в эталонный материал. Для реализации этого подхода важно точно знать модули упругости и коэффициенты Пуассона эталонного материала и индентора. Кроме того, механические свойства эталонного материала не должны зависеть от направления. Тогда, переписав выражение (2) относительно  $A_c$ , можно получить:

$$A_c = \frac{\pi S^2}{4\beta^2 E_r^2} \quad (6)$$

Таким образом, для измерения при определенной нагрузке, из (4) и (6) получается точка на кривой  $A(h)$ . Если провести серию измерений с разными нагрузками, получится набор точек  $[h_i, A_i]$  для некоторого интервала глубины внедрения индентора, аппроксимируемого функцией, вид которой может быть произвольным [4]: таблица дискретных значений, кусочно-линейная аппроксимация, кубические сплайны, параболоиды [10], сложная полиномиальная функция с дробными степенями [6].

### ИЗОБРАЖЕНИЕ С ПОМОЩЬЮ СЗМ

Сканирующие зондовые микроскопы стали настольным инструментом при изучении поверхности [14]. В СЗМ решены многие проблемы, в том числе позиционирование иглы над объектом, скорость

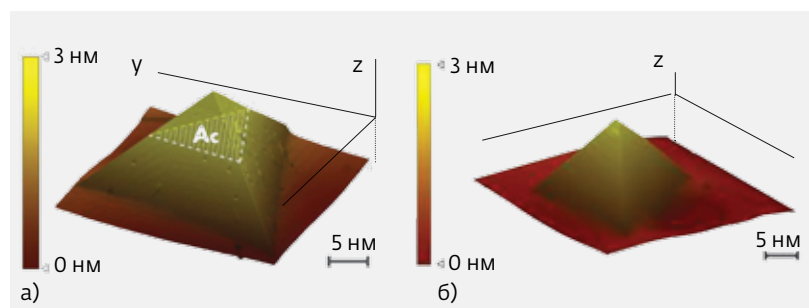


Рис.3. Перевернутое трехмерное изображение профиля отпечатка в алюминии, полученное с помощью АСМ "Интегра-Прима" (а) и сканирующего нанотвердомера "НаноСкан-3D" (б)



и качество сканирования, смена игл, настройка режимов работы. Улучшена стабильность, что значительно расширило круг решаемых задач [15]. В результате зондовые микроскопы успешно применяются для определения формы наконечников [16–18].

СЗМ "Интегра Прима" применялся для изображения рельефа вершины алмазного индентора (рис.4). Сканирование проводилось в полуконтактном режиме. Перед сканированием индентор промывался спиртом и обрабатывался в ультразвуковой ванне. Калибровка сканера осуществлялась с помощью периодической линейной меры.

СЗМ-сканирование отличается чрезвычайно малой силой воздействия на поверхность, поэтому кантилевер чувствителен даже к незначительным загрязнениям. Например, небольшие выступы на гранях индентора (рис.4а) являются, по-видимому, пылинками либо остатками материала после предыдущего испытания.

Поскольку размеры наконечника значительно превышают диапазон сканирования, важно подходить к процессу с особой осторожностью. Нередко кантилевер СЗМ касается индентора не основным острием иглы, а выступающим дефектом (прилипшая грязь, скол, паразитная вершина). В этом случае на изображении можно видеть характерные ступеньки (рис.4б), являющиеся ошибкой сканирования.

### АНАЛИЗ ИЗОБРАЖЕНИЯ ПЕРИОДИЧЕСКОЙ ТЕСТОВОЙ РЕШЕТКИ

Предложено определять форму наконечника сканированием алмазным наконечником линейной меры – периодической тестовой решетки, которая представляет собой упорядоченный массив кремниевых выступов конусообразной формы. Шаг меры – 3 мкм, высота выступов – 0,3–0,5 мкм, угол раствора выступов – порядка 50°, эффективный радиус закругления вершины – около 10 нм.

Подход реализован с помощью "НаноСкан-3D". Сканирование проводилось в режиме полуконтактной СЗМ. Угол раствора отдельного выступа существенно меньше, чем у алмазного наконечника (для пирамиды Берковича порядка 140°). Полученный рельеф представляет собой многократно

повторенные изображения индентора (рис. 5). Разрешение изображения сравнимо с достигаемым при использовании СЗМ. Функция формы определяется аналогично процедуре, описанной в предыдущем разделе.

Режим резонансных колебаний зондового датчика при измерении рельефа позволяет контролировать силу прижима индентора к поверхности в несколько микроньютонов.

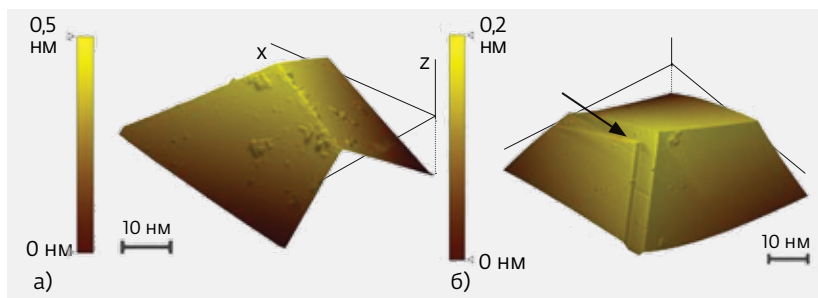


Рис.4. Изображение индентора с помощью "Интегра Прима": а – хорошее; б – ошибка при сканировании (ступенька обозначена стрелкой)

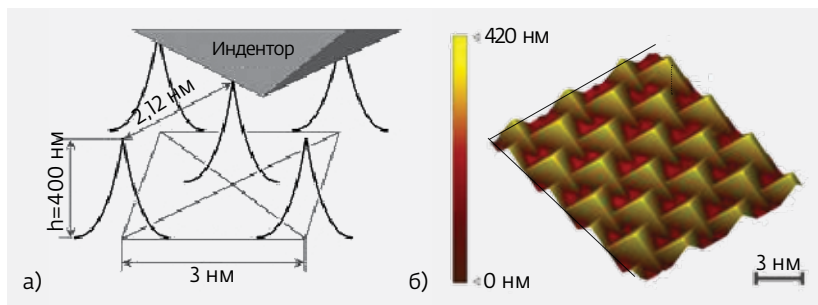


Рис.5. Схема контакта алмазной трехгранной пирамиды с рельефом линейной меры (а); изображение рельефа, полученное в результате сканирования (б)

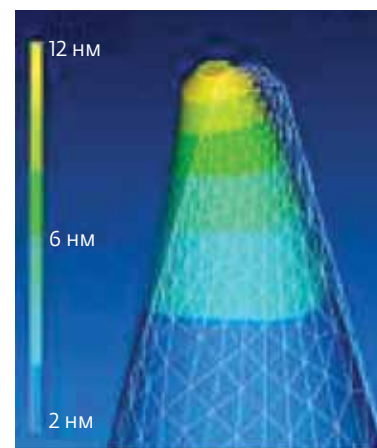


Рис.6. Моделирование в пакете Ansys. Сетчатый профиль – положение элемента меры в свободном состоянии, сплошной профиль – деформация элемента при сканировании



При такой силе кремниевая линейная мера не подвергается пластической деформации. Это подтверждено последовательным измерением рельефа поверхности в одной и той же области с незначительным смещением поля сканирования. Изображение рельефа не содержит видимых изменений поверхности из-за предыдущих измерений.

Проведено моделирование упругой деформации отдельного кремниевого выступа при прижиге к нему индентора с нормальной нагрузкой 1 мкН, с учетом его геометрии. Расчет показывает, что выступ упруго отклоняется на 10-12 нм в латеральной плоскости (рис.6). Такая деформация приводит к ошибке определения площади сечения в 5% при глубине 50 нм и 20% - при 10 нм.

### СКАНИРОВАНИЕ ОСТРОГО СВЕРХТВЕРДОГО ВЫСТУПА

Для устранения влияния деформации выступа линейной меры и увеличения диапазона глубин, на которых контролируется форма наконечника, предложено изготавливать острый выступ из синтетического алмаза. Современные технологии механической обработки и химического травления позволяют создавать алмазные наконечники с углом при вершине менее 50° и эффективным размером порядка 10 нм. Сканирование острия и определение функции формы наконечника производились аналогично процедуре, изложенной в предыдущем разделе.

Поскольку алмаз по механическим свойствам существенно превосходит кремний, то даже при увеличении силы прижима деформации выступа

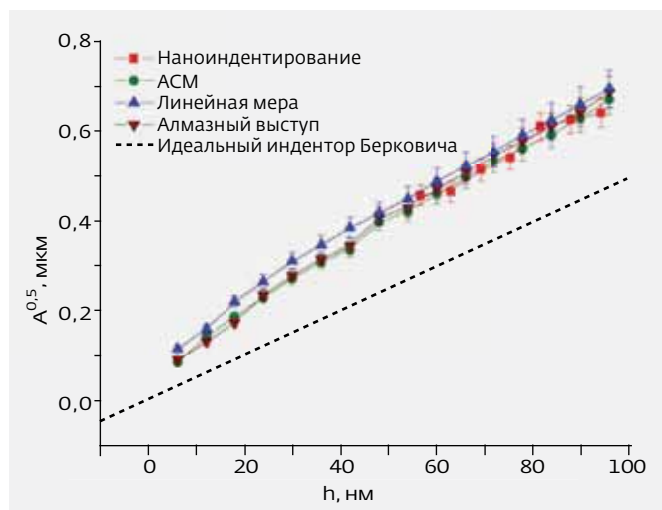


Рис.7. Функции формы индентора, полученные разными методами

не происходит. При этом обеспечивается максимально возможный диапазон по глубине. Такой подход может применяться для определения формы наконечника и оперативной очистки его от загрязнений, неизбежных при контакте с различными поверхностями.

### РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Функция формы наконечника была получена приведенными в статье методами (рис.7). Измерения проводились на нанотвердомере "НаноСкан-3D" и СЗМ "Интегра Прима". Использовался алмазный индентор в виде трехгранной пирамиды Берковича.

При кажущейся простоте анализа остаточного отпечатка подход не может применяться для определения функции формы индентора при глубине, меньшей микрометра. Это связано с особенностями упругого восстановления материала. В частности, для алюминия стенки отпечатка восстанавливаются неравномерно по глубине, что приводит к занижению рассчитанной площади сечения.

При глубине от 50 нм и более площадь сечения индентора, полученная наноиндентированием, СЗМ и сканированием острого выступа в пределах погрешности, совпадает. В приближении эти методы можно считать эквивалентными.

Площадь в диапазоне глубин проникновения, меньших 60 нм, полученная сканированием линейной меры, оказалась завышенной на 10-20%, по-видимому, из-за упругой деформации выступов. Результат совпадает с данными моделирования методом конечных элементов. Существенным ограничением метода является малая глубина, на которой может быть определена функция формы, что связано с параметрами стандартных линейных мер. Для использованных линейных мер [9] глубина не превышает 200 нм. Этот метод наиболее быстрый и технически простой и может применяться для оперативного контроля качества вершины, принимая во внимание возможность статистической оценки результатов, поскольку одна картина рельефа содержит несколько изображений индентора.

Наноиндентирование наиболее распространено в силу простоты и возможности автоматизации - от измерений до обработки полученных данных. Однако такой подход имеет и серьезные недостатки:

- он является косвенным;
- результат зависит от выбранной модели обработки данных и коррекций;



- значительны затраты времени на получение функции формы;
- дискретизация экспериментальных точек;
- зависимость от свойств эталонного материала.

Метод не дает устойчивых результатов при глубине внедрения индентора менее 50 нм вследствие загрязнения и шероховатости поверхности, необходимости введения поправки для учета асимметрии формы наконечника и поверхностного натяжения материала [16]. Перечисленные недостатки привели к поиску новых способов определения формы наконечника.

Методы, в основе которых СЗМ-сканирование вершины индентора, имеют ряд достоинств:

- интуитивно понятный способ измерений;
- оперативность получения функции формы;
- детализированная по сравнению с наноиндентированием кривая  $A(h)$ .

К недостаткам методик СЗМ можно отнести зависимость функции формы от загрязнения поверхности, ошибок сканирования, термодрейфа, качества иглы.

Вместе с тем, при сканировании алмазного выступа в нанотвердомере для определения формы наконечника не требуется снимать и устанавливать индентор, как это делается в СЗМ, поскольку его ориентация при измерении формы может отличаться от положения индентора в нанотвердомере. Кроме того, автоматически происходит очистка острия от возможного загрязнения.

В статье представлен обзор способов определения формы наконечника, применяемого для измерения физико-механических свойств методами вдавливания. Дан анализ этих методов с точки зрения факторов, влияющих на расчет функции формы наконечника, рассмотрены преимущества и недостатки разных подходов.

Предложено для определения формы наконечника сканирование алмазным индентором острого выступа в режиме полуконтактной СЗМ. Функция формы наконечника определяется с помощью анализа трехмерного изображения его рельефа непосредственно в сканирующем нанотвердомере в том положении, в котором он будет применяться для измерения физико-механических свойств. Обнаружено, что при увеличении силы прижима индентора к острому выступу происходит очистка наконечника от загрязнений. Показано, что для глубины более 50 нм площади сечения индентора, полученные наноиндентированием, СЗМ и сканированием острого выступа, совпадают в пределах погрешности.

Представленные методы определения функции формы индентора могут быть использованы

на разных стадиях его изготовления и применения: СЗМ-сканирование – выходной контроль на производстве, серия уколов – рабочая калибровка нанотвердомера, сканирование линейной меры и алмазного выступа – оперативный контроль качества и верификация формы индентора в процессе работы.

Для улучшения метрологических характеристик методов измерения твердости на нанометровой глубине необходимо более детальное изучение особенностей определения функции формы индентора на глубинах менее 50 нм.

*Авторы выражают благодарность А.Сошникову (ТИСНУМ) за моделирование упругой деформации кремниевой решетки при сканировании в режиме полуконтактной сканирующей силовой микроскопии в программе Ansys.*

*Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ (Государственный контракт № 16.523.12.3003).*

## ЛИТЕРАТУРА

1. **Калей Г.Н.** – Машиноведение, 1968, т.4, №3, с.105.
2. **Булычев С.И., Алехин В.П.** Испытание материалов непрерывным вдавливанием индентора. – М.: Машиностроение, 1990.
3. **Oliver W.C., Pharr G.M.** – J. Mater. Res., 1992, v.7, p.1564.
4. ISO 145771-3, 2002.
5. **Kese K.O., Li Z.C., Bergman B.** Materials Science and Engineering A 404 1, 2005.
6. **Oliver W.C., Pharr G.M.** – J. Mater. Res., 2004, v.19, p.13.
7. **Григорович В.К.** Твердость и микротвердость металлов. – М.: Наука, 1976.
8. **Useinov A.S., Useinov S.S.** – Philosophical Magazine, 2012, v.92, №25-27, p.3188.
9. **Useinov A., Gogolinskiy K., Reshetov V.** Int. – J. Mater. Res., 2009, v.7, p.968.
10. **Bhushan B.** Handbook of micro/nanotribology, 2-d edition. – CRC Press, 1999.
11. **Thurn J., Cook R.F.** – J. Mater. Res., 2002, v.17, №5, p.1143.
12. **Pethica J.B., Hutchings R., Oliver W.C.** Philosophical Magazine, A, 1983, v.48, p.593.
13. www.ntmdt.ru
14. **Миронов В.Л.** Основы сканирующей зондовой микроскопии. – Нижний Новгород, 2004.
15. **Birdi K.S.** Scanning probe microscopes. Applications in science and technology. – CRC press, 2003.
16. **Chudoba T., Lennett N.M.** – J. Apl. Phys, 2008, v.41, p.215407.
17. **Aldrich-Smith G., Jennett N.M., Hangen U. Z.** – Metallkd., 2005, v.96, №11, p.1267.
18. **VanLandingham M.R., Juliano T.F., Hagon M.J.** – Meas. Sci. Technol., 2005, v.16, p.2173.



## HARDNESS TESTING. INDENTER SHAPE CHARACTERIZATION\*

A. Useinov, PhD, K. Kravchuk, K. Gogolinsky, PhD / useinov@mail.ru

**A** review and comparison of different techniques for indenter shape characterization have been carried out. A novel approach to indenter apex characterization has been proposed based on a direct imaging of a very sharp tip by the indenter in a semi-contact scanning probe microscopy mode. The analysis of the factors affecting the indenter shape characterization and the efficiency of obtaining the resulting indenter area function is given.

Pushing a hard tip of a known shape (an indenter) into the material is the most common method for the material hardness measurement. Depending on the measurement technique, the indenters of various shapes can be applied: the spherical (Brinell), conical (Rockwell) or pyramidal ones (Knoop, Vickers, Berkovich, cube corner). In the Brinell and Vickers methods, the hardness value is determined by the residual imprint size, and the Rockwell method uses the indenter penetration depth into the surface. The triangular diamond tips are mainly used to measure the hardness in small volumes of the material. They are characterized by a minimum effective size of the tip, comparing to the other indenter shapes. Modern processing techniques allow to produce the diamond tips for mechanical tests with the effective tip size around 30-50 nm and even less.

In recent years, an instrumented indentation testing, also often referred to as nanoindentation, has been increasingly applied to determine the mechanical properties of materials at the submicron and nanometer length scale. The basic notions of this method were developed in 1960-70 in the USSR [1-2]. The paper of Oliver and Farr [3], proposing the most consistent analysis, made the technique a widespread one.

Unlike the traditional methods where hardness is measured over the residual imprint area or penetration depth, in nanoindentation it is calculated by a mathematical processing of the applied load dependency on the indenter penetration depth. The hardness value is calculated as a function of the measured physical quantities, and has a physical meaning of an average contact pressure under the indenter and is determined in  $N/m^2$ .

This principle allowed using this method for measurements for the submicron and nanometer penetration depth, when direct indent observation by the optical methods became impossible. An international standard ISO 14577 considers the nanoindentation method [4]. A requirement common to all the devices is a precise simultaneous measurement of the force and displacement absolute values.

One key aspect of this method is the need to precisely know the tip shape indented in the material. In analyzing the load-indentation dependency, and the mechanical properties calculation (hardness, elastic modulus), it is required to assume the fact that the tip shape is given exactly by the so-called shape function  $A(h)$ . The tip shape function represents the dependence of the cross-sectional tip area  $A$  on a distance along the indenter axis  $h$ . The indenter shape is a major source of error in nanoindentation [5].

In tests on micro- and macro-scales, it is important to maintain the tip geometry self-similarity. However, with decreasing penetration depth to several hundred nanometers, it is necessary to assess the appropriate tip size, which is not available for optics. In the transition to submicron and nanometer scale, even a tiny under the old standards deviation from the ideal pyramid leads to a huge error in the measured hardness values. In this experimental study we present a review and comparison of different techniques for indenter shape characterization, using a Berkovich indenter as an example, aimed at carrying out the nanoindentation measurements.

### INSTRUMENTED NANOINDENTATION TESTING

Nanoindentation method is as follows: a solid diamond tip (indenter) is pressed into the sample surface, and when a given load is reached,

\*FSI TISNCM.

the indenter is moved away in the opposite direction. During this test, the load values and the corresponding indenter displacement are recorded. The resulting function graph is called a loading/unloading curve. Fig. 1 presents a typical view of such a curve (Fig. 1a) and the indenter-surface contact scheme (Fig. 1b).

Fig.1. A typical loading/unloading curve (a) and an indenter-surface contact scheme (b)

Nanoindentation tests in this study were done with a constant indenter displacement during loading and unloading equal to 100 nm/sec. The sample hardness  $H$  is determined by the following equation [6]:

$$H = \frac{P_{\max}}{A_c} \quad (1)$$

here  $A_c$  - indentation projection area at a maximum applied load  $P_{\max}$  (Fig.1b).

The value of the reduced modulus of elasticity is determined by the following expression:

$$E_r = \frac{1}{\beta} \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{S}{\sqrt{A_c}} \quad (2)$$

Here the constant  $\beta$  depends on the indenter shape. A triangular Berkovich pyramid is most commonly used in nanoindentation [13]. For a Berkovich indenter with a  $142^\circ$  apex angle, the  $\beta$  value is taken to be 1.034 [11]. The contact stiffness  $S$  is determined from the unloading curve slope at the  $P_{\max}$  point:

$$S = \left( \frac{dP}{dh} \right)_{P=P_{\max}} \quad (3)$$

Contact depth of the indenter penetration into the surface,  $h_c$ , is given by:

$$h_c = h_{\max} - \varepsilon \frac{P_{\max}}{S} = h_{\max} - \varepsilon (h_{\max} - h_i) \quad (4)$$

Here, the constant  $\varepsilon$  depends on the indenter geometry ( $\varepsilon \sim 0.75$  for a Berkovich pyramid),  $h_i$  - the distance corresponding to the intersection of the tangent to the unloading curve in the initial part with the penetration axis (Fig. 1a).

The projection area  $A_c$  is defined by a predetermined indenter shape function  $A(h)$  by inserting the calculated values of the contact depth  $h_c$ :

$$A_c = A(h_c) \quad (5)$$

### NANOSCAN SCANNING NANOINDENTATION TESTER

This study presents the results obtained with a NanoScan-3D scanning nanohardness tester, produced by the Technological Institute for Superhard and Novel Carbon Materials (TISNCM), Russia (Fig.2). NanoScan Scanning Nanohardness Testers, combining the principles of a scanning probe microscopy (SPM) and nanoindentation, are used to study the surface topography and structure, to measure the mechanical properties (including hardness and elastic modulus) with a high spatial resolution [8-9].

Fig.2. NanoScan-3D scanning nanohardness tester: a general

This device has a major difference from the traditional scanning probe microscopes, and it is a piezoresonance sensor-cantilever of a tuning fork structure with a high bending stiffness of the console (approximately 20 kN/m). A diamond tip (an indenter) is mounted at the free end of the sensor. This sensor can operate in two modes: a dynamic resonant mode and a static bending mode.



A resonant oscillations mode allows to control the probe tip contact with the surface by two parameters: the amplitude change and the probe oscillation frequency. The resonant mode of the probe ensures a high stability of the amplitude and frequency fluctuations and provides a very soft tip touch to the material solid surface during the scan. The pressing force when scanning is several microNewtons. Due to this, the resulting surface topography image for most solid materials is not inferior in quality to the images obtained by the traditional scanning probe microscopes.

At the same time, a high bending stiffness of the console allows the probe tip of the indenter to penetrate the viscous layer to contact with the elastic surface, and to modify the surface as well – to make the indentation scratching (sclerometry) with a load of up to several hundred milliNewtons. Bending of the probe is controlled with a precision displacement sensor, which allows to measure the loading force during the surface indentation.

### RESIDUAL IMPRINT ANALYSIS

In the early stages of nanoindentation development, the standard procedure for indenter shape function included a series of indents with different penetration depth into the material with a mainly plastic deformation [10]. The area is measured by observing the imprint image. In this approach, the device resolution is very critical for observing the imprint. At various times, an optical microscopy, a scanning electron microscopy, a transmission electron microscopy, and an atomic force microscopy were used for this purpose.

In the submicron sizes of the residual imprint, the optical microscopy can not be applied due to its insufficient resolution. The scanning electron microscopy is sometimes used to study the large enough imprints on some materials [11]. However, this method is not suitable for all materials, and does not work in cases of small print sizes, as the indent contour becomes very blurred.

One of the earliest methods to determine the tip shape consisted in producing the carbon replicas of the imprints in a very soft material, and then observing them in a transmission electron microscope [12]. From the point of view of the modern requirements for the mechanical properties measurement, such a procedure is extremely inefficient. Today, the best choice for the residual imprints analysis is the atomic force microscopy.

High-purity aluminum was chosen for the experiment on the indenter shape characterization by the residual imprint, since this material has a very small elastic recovery. The surface preparation consisted of polishing and electrochemical etching. Surface roughness  $R_a = 3 \text{ nm}$ , is defined in the scanning probe microscopy mode.

An Integra Prima atomic force microscope made by the NT-MDT Company, Russia, was used to obtain the images [13]. During the analysis, the resulting imprint image was inverted to facilitate the visualization. The tip shape function was obtained by the image cross-sectioning by the planes perpendicular to the height of the pyramid, as shown on Fig.3, and the image plane was previously aligned horizontally. Also, we got an indent image with a NanoScan-3D scanning nanohardness tester in the tapping scanning probe microscopy mode (Fig.3b).

Fig.3. An inverted three-dimensional indent profile image in aluminum obtained by an Integra-Prima AFM (a) and a NanoScan-3D scanning nanohardness tester (b)

### A SERIES OF LOADING/UNLOADING CURVES

The most common method for indenter shape function determining without any imprint imaging, is to apply a series of indents by nanoindentation in the reference material. To implement this approach, it is critical to know exactly the elastic moduli and Poisson's ratios of the reference material and the indenter. In addition, the mechanical properties of the reference material ought to be independent from the direction. Then, by rewriting the equation (2) with respect to  $A_c$ , we get:

$$A_c = \frac{\pi S^2}{4\beta^2 E_r^2} \quad (6)$$

Thus, for one measurement with a certain load, a point on the curve  $A(h)$  is calculated from the equations (4) and (6). If a series of measurements with different loads is done, we obtain an experimental set of points  $[h_i, A_i]$  for some contact depth interval of the indenter penetration. The resulting set of points is approximated by a function, and its form can be chosen arbitrarily [4]: a table of discrete values, a piecewise-linear approximation, the cubic splines, paraboloids [10], or a complex polynomial function with fractional powers [6].

### SPM IMAGING

In the past 20 years, the scanning probe microscopes (SPM) have become part of the materials research science and practically turned into a desktop tool for studying the surface properties [14]. The SPM hardware and techniques are constantly evolving. Today, we see many problems solved in the SPM that previously complicated their application, including the needle positioning above the object, the scanning speed and quality, changing the needles and the operating conditions. The overall stability of the devices has been improved. All of this greatly expanded the range of challenges which can be addressed by the SPM methods [15]. Over several years, the probe microscopes have been successfully used for the indenter shape characterization in the mechanical testing [16-18].

In this study, an Integra Prima SPM was used to image the diamond indenter tip topography. The scanning was carried out in a tapping mode, some of the resulting images are shown on Fig.4. Before scanning, the indenter was washed with alcohol and treated in an ultrasonic bath to remove the possible contamination from its surface. The device scanner has been calibrated in advance with a periodic linear measure.

Fig.4. A three-dimensional image of the indenter obtained by an Integra Prima AFM: a) a good image, and b) a scanning error (step) is indicated by an arrow

Scanning with an SPM is distinguished by a very little power affecting the investigated surface, so the SPM cantilever is sensitive to even minor contamination. For example, the small protrusions on the indenter edges on Fig.4a are, apparently, the dust particles or some material remnants after the latest mechanical test which have not been removed by cleaning.

Since the tip size is much bigger than the SPM scanning area, it is necessary to deal with scanning very cautiously. One not uncommon situation is the SPM cantilever touching the indenter not with its main point of the needle, but, apparently, with a protruding needle defect (mud stuck, chip, spurious peak). In this case, the resulting image shows some characteristic steps (Fig.4b), which belong not to the topography here, but to a scanning error.

### A PERIODIC TEST LATTICE IMAGE ANALYSIS

Here we propose a new approach to the tip shape characterization by scanning a linear measure – a periodic test lattice – with a diamond tip set in a scanning nanohardness tester. A linear measure is an ordered array of silicon conical protrusions. A measure step is  $3 \mu\text{m}$ , a protrusion height is  $0.3-0.5 \mu\text{m}$ , the apex angle of the projections is about  $50^\circ$ , the effective radius of top curvature is about  $10 \text{ nm}$ .

This approach is implemented using a NanoScan-3D scanning nanohardness tester. The scanning was applied in a tapping scanning probe microscopy mode. The apex angle of a single protrusion is substantially less than that of a diamond tip (for a Berkovich pyramid it is about  $140^\circ$ ). Due to the convolution effect, the topography obtained by scanning such a structure is an indenter image repetition (Fig. 5). Such images have a resolution comparable to that achieved by SPM. The shape function is defined similarly to the procedure described in previous section.

Fig.5. A contact scheme for a diamond three-sided pyramid and a linear measure topography (a), and the topography image obtained by scanning (b)

A resonant oscillations mode of the scanning nanohardness tester probe for topography measuring allows to control the pressing force of the indenter to the surface within a few microNewtons.

With such force, a silicon linear measure is not subject to a plastic deformation. This was confirmed by serial measurements of the surface topography in the same area, with a slight displacement of the scanning





field. The subsequent topography image of does not contain any visible changes in the surface caused by the previous measurements.

An elastic deformation of a single silicon protrusion at indenting it with a normal indenter load of  $1 \mu\text{N}$  was simulated, taking into account the indenter geometry. The calculation shows that under these conditions, the protrusion is deformed by 10-12 nm in the lateral plane (see Fig.6). This protrusion deformation leads to an error in the cross sectional area calculation of 5% at a depth of 50 nm, and of 20% at a depth of 10 nm.

Fig.6. The simulation results in an Ansys package. The net profile indicates the position of a measure element in a free state; the solid profile represents the element deformation during the scanning

### SCANNING A SHARP SUPERHARD PROTRUSION

In order to eliminate the impact of a linear measure protrusion deformation and to increase the range of depths at which the tip shape is controlled, it was proposed to produce a sharp protrusion of a synthetic diamond. The state-of-the-art mechanical treatment and chemical etching technology can make a diamond tip with an apex angle less than  $50^\circ$  and an effective apex size of 10 nm. Scanning the tip and defining its shape is similar to the procedure described in previous section.

Since the diamond mechanical properties are significantly superior to those of silicon, even with increasing clamp force, there is no protrusion deformation during the scanning. This ensures the maximum possible range in depth. It should be noted that this approach can be applied not only for the tip shape characterization, but also for the rapid tip purification from dirt and dust that inevitably happens when working in contact with various surfaces.

### EXPERIMENTAL RESULTS

In the experiments, the tip shape function was obtained by all the methods described in the paper. The measurements were performed with a NanoScan-3D scanning nanohardness tester and an Integra Prima SPM. In all the experiments, we used the same diamond indenter in the shape of a three-sided Berkovich pyramid. The shape functions obtained by different methods are shown on Fig.7.

Fig.7. Indenter shape functions obtained by different methods

Despite the seeming simplicity of the residual imprint analysis method, this approach can not be used to determine the indenter shape function, at least at scales smaller than a micron deep. This is due to the elastic recovery of the material. In particular, for aluminum samples, the indent walls restore irregularly in depth. This leads to an underestimation in the calculated cross-sectional area.

At the depth scale of 50 nm or more, the values of the indenter cross sectional area obtained by nanoindentation, scanning probe microscopy and sharp protrusion scanning methods coincide within the error limits. Consequently, in some approximation, these methods can be considered equivalent. At the same time, each of them has its benefits and drawbacks.

The area value obtained by a linear measure scanning was overstated by 10-20% in the range of depths less than 60 nm. Apparently, this is due to the elastic deformation of the linear measure protrusions during the scanning. This result agrees with the results of the finite element simulation method. An important limitation of this method is a shallow depth, at which a shape function can be determined. This is associated with the standard linear measure parameters. For the TGT [9] linear measures used in this study, the depth is less than 200 nm. At the same time, this method is the fastest and the most technically simple, and can be used for operational monitoring of the indenter top quality, especially taking into account the possibility of statistical evaluation of results, as a topography pattern contains multiple images of the indenter.

A nanoindentation method is the most common today because of its simplicity and automation of all operations - from measurement to data processing. However, this approach has some serious drawbacks:

- This is an indirect method;

- The outcome depends on the data processing model and the corrections and adjustments applied;
- Significant time required to obtain the shape function;
- Digitization of the experimental points;
- Dependence on the reference material properties.

In addition, a nanoindentation method does not give consistent results at an indentation depth of less than 50 nm due to several factors caused by the surface contamination and roughness, the need to introduce a correction to account for the tip shape asymmetry and the material surface tension [16].

These shortcomings of the approach encouraged to search for the new ways for the tip shape characterization.

The methods based on the indenter top scanning by SPM, have a number of advantages:

- A direct, intuitive measurement method;
- Efficiency in the shape function obtaining;
- A more detailed  $A(h)$  curve compared to nanoindentation.

At the same time, the shortcomings of the SPM techniques include the dependence of the measured shape function on the surface contamination, scanning errors, thermal drift and the needle quality (when scanning a diamond, the silicon needles deteriorate rapidly).

When scanning a diamond protrusion directly in a nanohardness tester, the tip shape is determined "on site", i.e. for this operation, it is not required to remove and install the indenter, as is the case with the SPM scanning, where the indenter orientation when measuring the shape may differ from its position in a nanohardness tester. In addition, when using this method, the indenter tip is automatically cleaned from the possible contamination.

A review of existing tip shape characterization methods used for measuring the physical and mechanical properties by indentation has been done. These methods have been analyzed in terms of factors affecting the tip shape function calculation. The benefits and shortcomings of different approaches have been discussed.

A new approach to determine the tip shape by scanning a sharp protrusion with a diamond indenter in a tapping mode of the scanning probe microscopy has been proposed. The shape function is determined by analyzing a three-dimensional image of the tip topography. A feature of this method is that the tip shape is defined directly in a scanning nanohardness tester, i.e. in the position in which it will subsequently be used to measure the physical and mechanical properties. It has been found that with increasing force of pressing an indenter to a protrusion, an effect of cleaning the tip from contamination during the scanning is observed.

It is shown that at the depth scale of 50 nm or more, the values of the indenter cross sectional area, as obtained by nanoindentation, scanning probe microscopy and a new protrusion scanning method, coincide within the error limits.

Thus, all the presented methods for the indenter shape function characterization can be used at different stages of its manufacturing and implementation. An SPM scanning can be used for output control in the production, a series of injections - for the a nanohardness tester working calibration, scanning a linear measure and a diamond ledge - for operational quality control and the indenter shape verification in the work process.

To improve the metrological characteristics of the hardness measurement methods on the nanometer indentation depth scale, it is necessary to make a more detailed study of the indenter shape function characteristics in the various methods on the depth scale less than 50 nm.

*The authors acknowledge A.Soshnikov (FSI TISNCM) for simulating by the Ansys software the elastic deformation of the silicon lattice at scanning in the tapping mode of the scanning force microscopy. The present work was supported through a research grant from Ministry of Education and Science of Russian Federation (Contract No. 16.523.12.3003).*

### Literature

