

Mô phỏng quá trình chịu tải của màng mỏng nanocomposite TiC/a-C phủ bằng phương pháp phún xạ magnetron

- **ThS. NCS. LÊ VĂN AN** - Trường Đại học Sư phạm Kỹ thuật TP. Hồ Chí Minh
- **PGS. TS. BÙI XUÂN LÂM** - Trường Đại học Công nghệ TP. Hồ Chí Minh
- **PGS. TS. LÊ HIẾU GIANG** - Trường Đại học Sư phạm kỹ thuật TP. Hồ Chí Minh
- **ThS. TRINH THÁI HÙNG** - Trường Đại học Giao thông vận tải TP. Hồ Chí Minh

TÓM TẮT: Bài báo trình bày kết quả đo độ cứng nano màng nanocomposite TiC/a-C và mô hình tạo vết lõm nano sử dụng phương pháp phần tử hữu hạn. Phần mềm mô phỏng ABAQUS được sử dụng trong nghiên cứu này. Màng mỏng nanocomposite được chế tạo bằng phương pháp phún xạ magnetron đồng thời các hạt Ti và C trong plasma Ar. Các mô hình mô phỏng đường cong đặt tải - dỡ tải cho thấy ảnh hưởng của cấu trúc và tính chất vật liệu màng đến biến dạng dẻo trong suốt quá trình tạo vết lõm nano. Các kết quả mô phỏng bằng đường cong tải - chuyển vị phù hợp với kết quả thí nghiệm.

TỪ KHÓA: Phún xạ magnetron, ABAQUS, nanocomposite, vết lõm nano, mô phỏng

ABSTRACT. In this paper the process and result of hardness measurement of nanocomposite thin films TiC/a-C by nanoindentation were shown utilizing finite element method. The tool used is ABAQUS. The nanocomposite thin films were deposited via co-sputtering of Ti and C targets in an Ar plasma. The model simulates the load & unload curves, showing the influence of structure and properties of coating materials on the indentation response and the development of plastic deformation during indentation. Load-displacement curve indicates a good agreement between the simulation and experimental results.

KEYWORDS: Magnetron sputtering, ABAQUS, nanocomposite, nano-indentation, simulation

1. ĐẶT VẤN ĐỀ

Phương pháp tạo vết lõm nano được dùng rộng rãi để đo độ cứng, mô-đun đàn hồi, tính chống cào xước, độ dẻo của vật liệu. Phương pháp này kết hợp với các tài liệu tính toán với công cụ FEM đặc biệt hiệu quả để nghiên cứu cơ tính của màng mỏng [1,2].

Trong bài báo, chúng tôi phát triển một mô hình tạo vết lõm nano bằng phương pháp phần tử hữu hạn cho màng mỏng nanocomposite có các hạt nano TiC phân

tán trong nền vô định hình carbon giống kim cương (TiC/a-C). Việc mô hình hóa vết lõm được thực hiện với phần mềm ABAQUS thương mại. Quá trình tính toán mô phỏng về được đường cong gia tải - dỡ tải, thể hiện sự phát triển của biến dạng dẻo của màng TiC/a-C trong suốt quá trình chịu tác dụng của tải.

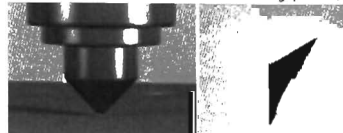
2. THÍ NGHIỆM

2.1. Thiết bị chế tạo màng

Màng nanocomposite với nền carbon giống kim cương được phủ bằng phương pháp phún xạ lên đế sử dụng hai âm cực (graphite và Ti). Hệ thống sử dụng là E303A. Sơ đồ của hệ thống được trình mô tả trong [3]. Mật độ năng lượng trên graphite là 10.5 W/cm², mật độ năng lượng trên Ti được thay đổi để tạo ra các hàm lượng Ti khác nhau. Áp suất quá trình phủ được giữ cố định ở 0.6 Pa và nhiệt độ trên vật cần phủ là 150°C. Các màng được phủ lên các tấm Si [100] (đường kính 100 mm, bề dày 450 μ m, độ nhám bề mặt $R_a = 2$ nm).

2.2. Thiết bị đo độ cứng và tạo vết lõm

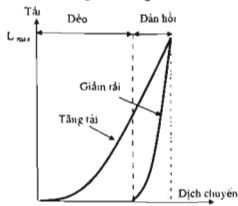
Độ cứng và mô-đun đàn hồi được xác định bằng thiết bị đo độ cứng nano (XP) với mũi kim cương Berkovich. Chiều sâu ấn vào màng của mũi kim cương được lập trình để không vượt quá 10% bề dày của màng để tránh ảnh hưởng của vật cần phủ đến kết quả đo độ cứng. Trên mỗi mẫu, 10 vị trí ngẫu nhiên được đo độ cứng và mô-đun đàn hồi. Giá trị độ cứng và mô-đun đàn hồi của mẫu được lấy trung bình của các lần đo (sai lệch chuẩn không quá 10%).



Hình 2.1: Tạo vết lõm nano bằng mũi tam giác Berkovich

Từ đường cong gia tải và giảm tải trên đồ thị của thiết bị đo độ cứng, độ dẻo của màng được xác định bằng cách chia khoảng dịch chuyển của mũi kim cương ứng với giai đoạn giảm tải cho dịch chuyển lớn nhất. Độ cứng màng được xác định bởi đường cong gia tải - biến dạng trong quá trình đầm với lực tăng dần từ 0.1 mN đến

3.2 mN và phân tích bằng phương pháp Oliver-Pharr [4]. Đường cong tải - biến dạng thể hiện biến dạng đàn hồi khi gia tải và biến dạng dẻo khi giảm tải.

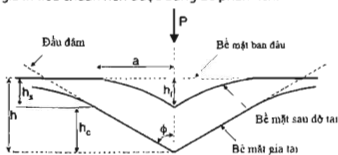


Hình 2.2: Đường cong gia tải - giảm tải

Phương pháp chính xác được dùng để đo H và E là dựa vào quá trình giảm tải, giả định rằng trạng thái đầu đằm Berkovich có thể được mô hình hóa bằng một đầu đằm hình nón với một nửa góc quay Φ ($\Phi = 70.3^\circ$). Chu vi ngoài biên tiếp xúc tạo vết lõm chìm vào vật thể được diễn tả bằng các mô hình đầu đằm cứng có dạng hình học đơn giản [5]. Giả định này giới hạn khả năng ứng dụng của phương pháp bởi vì nó không giải thích sự tích tụ của vật liệu ở chu vi ngoài biên tiếp xúc xảy ra khi thực hiện với vật liệu đàn hồi - dẻo. Tuy nhiên, nếu bỏ qua sự tích tụ, các mô hình đàn hồi cho thấy rằng lượng chìm vào h_s được xác định bằng:

$$h_s = \epsilon \frac{P_{max}}{S} \quad (1)$$

Trong đó: ϵ - Hằng số phụ thuộc vào hình dạng của đầu đằm ($\epsilon = 0.72$ cho dạng hình nón, $\epsilon = 0.75$ cho parapol xoay tròn, $\epsilon = 1.00$ cho dạng phẳng). Theo kinh nghiệm quan sát, đường cong giảm tải khi dùng đầu đằm có dạng parapol xoay tròn ($\epsilon = 0.75$) là gần đúng với giá trị tiêu chuẩn nên được dùng để phân tích.



Hình 2.3: Gián đồ gia tải - giảm tải

Độ sâu dọc theo lớp tiếp xúc được tạo ra giữa đầu đằm và mẫu là:

$$h_c = h_{max} - \epsilon \frac{P_{max}}{S} \quad (2)$$

Nếu $F(d)$ là một "hàm diện tích" miêu tả diện tích được chiếm (hoặc mất mát) của đầu đằm ở khoảng cách d từ bề mặt đến mũi của đằm, diện tích tiếp xúc A được xác định:

$$A = F(h_c) \quad (3)$$

Hàm diện tích là hàm hình dạng đầu đằm được hiệu chỉnh bằng các phép đo độ lệch để độ lệch từ hình dạng đầu đằm hình nón được đưa vào tính toán thay cho mũi

Berkovich là nhỏ nhất. Độ lệch này có thể là khá lớn so với đầu đằm Berkovich nếu có sự bo tròn xảy ra trong quá trình mài sắc. Pharr và công sự đã xác lập hàm diện tích A bằng biểu thức [6]:

$$A = \sum_{i=0}^n C_i (h_c)^{2i} = C_0 h_c^2 + C_1 h_c + C_2 h_c^{1/2} + C_3 h_c^{1/4} + \dots + C_n h_c^{1/n} \quad (4)$$

Để hoàn thành quá trình hiệu chỉnh hàm diện tích, các hệ số trong phương trình (4) phải được xác định thông qua điều chỉnh đường cong dữ liệu A đối với h_c . Đối với dữ liệu thực nghiệm, các hệ số cho hàm diện tích nhận được là [7] $C_0 = 24.65$, $C_1 = 202.7$, $C_2 = 0.03363$, $C_3 = 0.9318$, $C_4 = 0.02827$, $C_5 = 0.03716$, $C_6 = 1.763$, $C_7 = 0.04102$, và $C_8 = 1.881$.

Khi diện tích tiếp xúc được xác định, độ cứng được tính theo công thức:

$$H = \frac{P_{max}}{A} \quad (5)$$

Việc xác định độ cứng dựa vào diện tích tiếp xúc dưới tác dụng của tải có thể lệch so với độ cứng truyền thống được đo từ diện tích của vết lõm nên do có sự hồi phục đàn hồi đáng kể trong suốt quá trình giảm tải. Tuy nhiên, điều này chỉ quan trọng trong các vật liệu với các giá trị E/H rất nhỏ [8].

Phép đo mô-đun đàn hồi theo mối quan hệ hàm diện tích tiếp xúc và độ cứng giảm tải được thông qua hệ thức:

$$S = \beta \frac{2}{\sqrt{\pi}} E_r \sqrt{A} \quad (6)$$

Trong đó: β - Hệ số hiệu chỉnh do đối xứng trục của đầu đằm hình nón; E_r - Mô-đun đàn hồi hiệu dụng được xác định bởi:

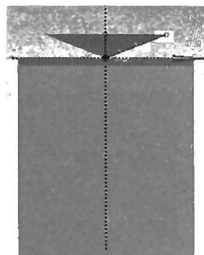
$$\frac{1}{E_r} = \frac{1 - \nu^2}{E} + \frac{1 - \nu_1^2}{E_1} \quad (7)$$

Trong đó: $Mô-đun$ đàn hồi E và hệ số Poisson ν là của vật liệu đầu đằm (kim cương) và mô-đun đàn hồi E_1 và hệ số Poisson ν_1 là của vật liệu cần đo (mẫu). Phương trình (6) là một hệ thức rất tổng quát áp dụng cho bất kỳ đầu đằm đối xứng trục nào (không hạn chế đối với một hình học đơn giản cụ thể nào, kể cả vết lõm tù). Phương trình này có thể áp dụng với tiếp xúc đàn hồi-dẻo [9].

3. MÔ HÌNH HÓA

Kích thước: Vật cần phủ (dê): Bán kính 5mm, chiều cao 5mm.
Màng mỏng: Bán kính 5 mm, chiều cao 1200 nm.

Indenter: Loại hình nón (đối xứng) đằm xuống màng tối đa 120 nm ~ 10% chiều dày màng để tránh ảnh hưởng của đế đến kết quả xác định tính chất cơ học của màng. Vì vậy, mặt đế và mặt bên cố định.



Hình 3.1: Mô hình màng chu tải

Trong mô hình này, quá trình tạo vết lõm nano của màng mỏng với tính chất cơ học đàn hồi đẳng hướng được mô phỏng bằng phần mềm ABAQUS. Đầu đũa cứng hình nón được dùng trong mô hình để định rõ một mô hình đối xứng trục (nửa góc 70.3°). Mẫu được mô hình hóa với 21047 phần tử và 34384 nút tích hợp rút gọn đối xứng trục 4-nút. Tại vị trí xung quanh đầu đũa chúng tôi đã tạo lưới mịn để giảm thời gian tính toán mà không ảnh hưởng đến tốc độ hội tụ.

Quá trình tạo vết lõm được mô phỏng trong suốt cả các bước gia tải và giảm tải. Trong suốt quá trình gia tải việc mô phỏng được thực hiện đến độ sâu 120 nm theo phương y vào trong mẫu. Trong quá trình giảm tải mũi đầu đũa trở về vị trí ban đầu (0,0,0).

Sự ràng buộc tiếp xúc được xác định bằng bề mặt chính và bề mặt phụ. Bởi vì, chỉ có bề mặt chính có thể thâm nhập vào bề mặt phụ, do đó hướng tiếp xúc được xác định dựa theo bề mặt chính. Mô hình đầu đũa được chọn làm bề mặt chính và mẫu thử là bề mặt phụ. Điều kiện biên được áp đặt dọc theo điểm góc, đường trung tâm và một đáy của mẫu bằng cách cố định mẫu vào trục hoành.

Mô hình vết lõm nano được phát triển trong điều kiện không có sự hóa cứng cơ học của vật liệu, vật liệu không bị tách trong suốt quá trình tạo vết lõm và không có ma sát giữa mũi đầu đũa và bề mặt mẫu.

Trong tính toán, sự biến dạng đàn hồi xảy ra trong lúc quá trình bắt đầu. Tiêu chuẩn chảy Mises được đặt trong quá trình xảy ra biến dạng dẻo. Phương trình ứng suất Mises được xác định như sau:

$$\sigma_{Mises} = \sqrt{\frac{(\sigma_1 - \sigma_2)^2 + (\sigma_2 - \sigma_3)^2 + (\sigma_3 - \sigma_1)^2}{2}} \quad (8)$$

Trong đó: $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$ - Ứng suất chính. Khi σ_{Mises} đạt tới giới hạn đàn hồi (σ_y), mẫu bắt đầu biến dạng dẻo. Trạng thái hóa cứng cơ học của mẫu được bỏ qua khi xem xét mô hình.

Trong nghiên cứu này, màng mỏng TiC/a-C phủ lên Si dùng làm vật liệu mẫu. TiC/a-C là một vật liệu đẳng hướng, độ cứng, mô-đun đàn hồi của màng phụ thuộc vào hàm lượng Ti và tỷ lệ sp^3 trong màng [10] (Bảng 3.1).

Bảng 3.1. Ảnh hưởng của mật độ năng lượng, hàm lượng Ti, C đến E, ν

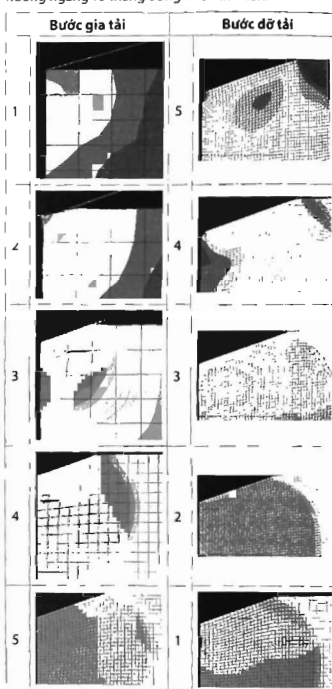
Mật độ năng lượng của Ti (W/cm ²)	Ti (at.%)	C (at.%)	Mô-đun đàn hồi (GPa)	Hệ số Poisson's
1.8	16	84	210	0.25
2.1	25	75	258	0.28
2.4	30	70	278	0.29
2.7	36	64	310	0.3

Các tính chất cơ học như độ cứng, mô-đun đàn hồi có thể nhận được từ đường cong tải - biến dạng đo được khi đặt tải - dỡ tải qua sự phân tích dữ liệu như đã trình bày.

4. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Quá trình gia tải - giảm tải tạo vết lõm nano trên màng mỏng TiC/a-C được mô phỏng như Hình 4.1. Biến dạng dẻo xảy ra trong mẫu ở bề tiếp xúc (giữa đầu đũa và mẫu) được bắt đầu và sau đó lan truyền sâu vào bên trong màng. Tại một độ sâu xác định, biến dạng dẻo diễn

ra quanh khu vực mũi đầu đũa và lan truyền cả theo hướng ngang và thẳng đứng như hình nón.



Hình 4.1: Các bước gia tải và dỡ tải

Độ lệch nhỏ giữa mô phỏng và thí nghiệm là do hình dạng đầu đũa thực tế và độ nhám bề mặt của màng khi thực hiện các thí nghiệm. Từ kết quả tính toán cho nút và nút 12093 được so sánh với kết quả thí nghiệm (Bảng 4.1 và 4.2).

Bảng 4.1. Chuyển vị - ứng suất

Kết quả thí nghiệm		Kết quả mô phỏng		
Chuyển vị (nm)	Ứng suất (GPa)	Thời gian (s)	nút 7	
			Chuyển vị (nm)	Ứng suất (GPa)
0.002	0.010	0.002	0.002	0.00
50.99	3.50	0.85	50.94	3.7

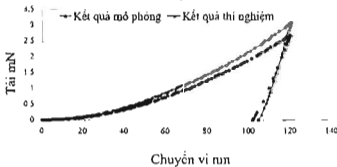
52.00	3.50	0.86	51.80	3.72
119.02	2.95	1.99	119.27	3.68
120.05	2.95	2.00	119.99	3.68
104.98	1.24	3.00	101.97	0.42
104.98	1.24	3.00	101.97	0.42

Bảng 4.2. Chuyển vị - ứng suất

Kết quả thí nghiệm			Kết quả mô phỏng	
Chuyển vị (nm)	Ứng suất (GPa)	Thời gian (s)	nút 12093	
			Chuyển vị (nm)	Ứng suất (GPa)
0.002	0.010	0.002	0.000	0.002
50.99	3.50	0.85	43.63	3.72
52.00	3.50	0.86	45.96	3.72
119.02	2.95	1.99	113.43	3.51
120.05	2.95	2.00	114.15	3.51
104.98	1.24	3.00	96.15	0.51
104.98	1.24	3.00	96.15	0.51

Hình 4.2 thể hiện đường cong lực - chuyển vị trên màng mỏng TiC/a-C dưới tác dụng của lực từ 0.1 mN đến 3.2 mN, độ sâu đâm xuyên tối đa 120 nm và dữ liệu đầu vào từ Bảng 3.1. Kết quả thí nghiệm và kết quả tính toán mô phỏng bằng phần mềm ABAQUS là tương tự nhau.

Tải - Chuyển vị



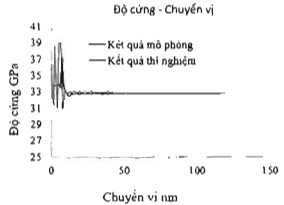
Hình 4.2: Đồ thị tải - chuyển vị của thí nghiệm và mô phỏng

Từ đó tải tải - chuyển vị, đường cong đỡ tải được dùng để tính giá trị độ cứng bằng kỹ thuật phân tích triển khai theo Oliver và Pharr [7]. Độ cứng được tính toán khoảng 33 GPa là phù hợp với kết quả thí nghiệm. Số dĩ độ cứng trong thí nghiệm thấp hơn mô phỏng là vì các mẫu thử trong thí nghiệm không sạch tuyệt đối và có hiện tượng chuyển hóa sp^1 (kim cương) thành sp^2 (graphite) trên bề mặt màng TiC/a-C.

Bảng 4.3. Độ cứng

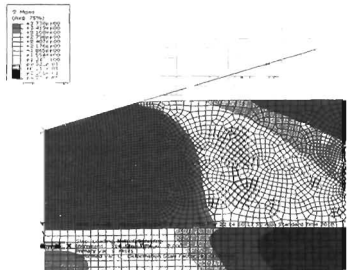
Kết quả thí nghiệm		Kết quả mô phỏng	
Chuyển vị (nm)	Độ cứng (GPa)	Chuyển vị (nm)	Độ cứng (GPa)
0.002	32.541	0.002	33.827
50.99	32.995	50.94	32.815
52.00	32.981	51.80	32.814

Kết quả thí nghiệm		Kết quả mô phỏng	
Chuyển vị (nm)	Độ cứng (GPa)	Chuyển vị (nm)	Độ cứng (GPa)
119.02	32.868	119.27	32.757
120.05	32.864	119.99	32.756



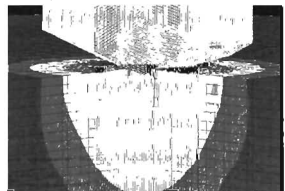
Hình 4.3: Độ cứng khi đo thí nghiệm và kết quả mô phỏng

Mô phỏng mở rộng sự phát triển của biến dạng đàn hồi trong màng mỏng TiC/a-C để thấy rõ hơn trạng thái biến dạng trong lớp màng và để được thực hiện với độ sâu vết lõm tăng dần (200 nm, 250 nm, 300 nm).



Hình 4.4: Khi tăng độ sâu đâm ứng suất hình thành trên bề

Ờ độ sâu lớn hơn, biến dạng dẻo lan truyền cả theo phương ngang và thẳng đứng vào trong lớp màng như Hình 4.4. Để quan sát rõ hơn, chúng tôi thực hiện mô phỏng trong không gian ba chiều để thấy vùng ứng suất lan truyền vào bên trong màng TiC/a-C trong không gian 3 chiều.



Hình 4.5: Sự lan truyền ứng suất trong mô hình 3D

Trong mô hình này, quá trình tạo vết lõm nano của màng mỏng với tính chất cơ học đàn hồi đẳng hướng được mô phỏng bằng phần mềm ABAQUS. Đầu đũa cứng hình nón được dùng trong mô hình để định rõ một mô hình đối xứng trục (nửa góc 70.3°). Mẫu được mô hình hóa với 21047 phần tử và 34384 nút tích hợp rút gọn đối xứng trục 4-nút. Tại vị trí xung quanh đầu đũa chúng tôi đã tạo lưới mịn để giảm thời gian tính toán mà không ảnh hưởng đến tốc độ hội tụ.

Quá trình tạo vết lõm được mô phỏng trong suốt cả các bước gia tải và giảm tải. Trong suốt quá trình gia tải việc mô phỏng được thực hiện đến độ sâu 120 nm theo phương y vào trong mẫu. Trong quá trình giảm tải mũi đầu đũa trở về vị trí ban đầu (0,0,0).

Sự ràng buộc tiếp xúc được xác định bằng bề mặt chính và bề mặt phụ. Bởi vì, chỉ có bề mặt chính có thể thâm nhập vào bề mặt phụ, do đó hướng tiếp xúc được xác định dựa theo bề mặt chính. Mô hình đầu đũa được chọn làm bề mặt chính và mẫu thử là bề mặt phụ. Điều kiện biên được áp đặt dọc theo điểm góc, đường trung tâm và mặt đáy của mẫu bằng cách cố định mẫu vào trục hoành.

Mô hình vết lõm nano được phát triển trong điều kiện không có sự hóa cứng cơ học của vật liệu, vật liệu không bị tách trong suốt quá trình tạo vết lõm và không có ma sát giữa mũi đầu đũa và bề mặt mẫu.

Trong tính toán, sự biến dạng đàn hồi xảy ra trong lúc quá trình bắt đầu. Tiêu chuẩn chảy Mises được đặt trong quá trình xảy ra biến dạng dẻo. Phương trình ứng suất Mises được xác định như sau:

$$\sigma_{Mises} = \sqrt{\frac{(\sigma_1 - \sigma_2)^2 + (\sigma_2 - \sigma_3)^2 + (\sigma_3 - \sigma_1)^2}{2}} \quad (8)$$

Trong đó: $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$ - Ứng suất chính. Khi σ_{Mises} đạt tới giới hạn đàn hồi (σ_y), mẫu bắt đầu biến dạng dẻo. Trạng thái hóa cứng cơ học của mẫu được bỏ qua khi xem xét mô hình.

Trong nghiên cứu này, màng mỏng TiC/a-C phủ lên Si dùng làm vật liệu mẫu. TiC/a-C là một vật liệu đẳng hướng, độ cứng, mô-đun đàn hồi của màng phụ thuộc vào hàm lượng Ti và tỷ lệ sp^3 trong màng [10] (Bảng 3.1).

Bảng 3.1. Ảnh hưởng của mật độ năng lượng, hàm lượng Ti, C đến E, v

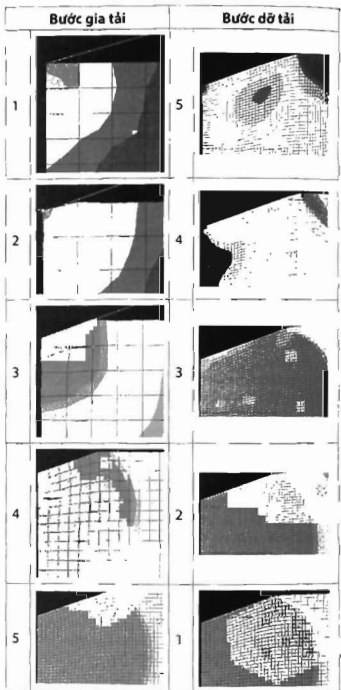
Mật độ năng lượng của Ti (W/cm ²)	Ti (at.%)	C (at.%)	Mô-đun đàn hồi (GPa)	Hệ số Poisson's
1.8	16	84	210	0.25
2.1	25	75	258	0.28
2.4	30	70	278	0.29
2.7	36	64	310	0.3

Các tính chất cơ học như độ cứng, mô-đun đàn hồi có thể nhận được từ đường cong tải - biến dạng đo được khi tải tại - dỡ tải qua sự phân tích dữ liệu như đã trình bày.

4. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Quá trình gia tải - giảm tải tạo vết lõm nano trên màng mỏng TiC/a-C được mô phỏng như Hình 4.1. Biến dạng dẻo xảy ra trong mẫu ở bề tiếp xúc (giữa đầu đũa và mẫu) được bắt đầu và sau đó lan truyền sâu vào bên trong màng. Tại một độ sâu xác định, biến dạng dẻo diễn

ra quanh khu vực mũi đầu đũa đâm và lan truyền cả theo hướng ngang và thẳng đứng như hình nón.



Hình 4.1: Các bước gia tải và dỡ tải

Độ lệch nhỏ giữa mô phỏng và thí nghiệm là do hình dạng đầu đũa thực tế và độ nhám bề mặt của màng khi thực hiện các thí nghiệm. Từ kết quả tính toán cho nút 7 và nút 12093 được so sánh với kết quả thí nghiệm (Bảng 4.1 và 4.2).

Bảng 4.1. Chuyển vị - ứng suất

Kết quả thí nghiệm		Kết quả mô phỏng		
Chuyển vị (nm)	Ứng suất (GPa)	Thời gian (s)	nút 7	
			Chuyển vị (nm)	Ứng suất (GPa)
0.002	0.010	0.002	0.002	0.006
50.99	3.50	0.85	50.94	3.72