

## بررسی چقرمگی شکست و حساسیت به نرخ کرنش لایه نازک نیتريد تانتالوم توليد شده به روش کندوپاش مغناطیسی واکنشی

سید سیاوش فیروزآبادی<sup>۱\*</sup>، کامران دهقانی<sup>۲</sup>، مالک نادری<sup>۳</sup>، فرزاد محبوبی<sup>۲</sup>

۱- دکتری مواد، دانشکده مهندسی معدن و متالورژی، دانشگاه صنعتی امیرکبیر، تهران، ایران

۲- استاد، دانشکده مهندسی معدن و متالورژی، دانشگاه صنعتی امیرکبیر، تهران، ایران

۳- دانشیار، دانشکده مهندسی معدن و متالورژی، دانشگاه صنعتی امیرکبیر، تهران، ایران

\*مسئول مکاتبات: s.firouzabadi@aut.ac.ir

(تاریخ دریافت: ۱۳۹۷/۰۴/۲۹، تاریخ پذیرش: ۱۳۹۷/۰۶/۱۷)

**چکیده:** نیتريد تانتالوم به دليل سختی بالا و مقاومت به خوردگی خوب توانسته است توجهات زیادی را به عنوان پوششی مناسب جلب نماید. اما چقرمگی شکست لایه‌های نازک نیتريد تانتالوم که یکی از عوامل تاثیرگذار بر طول عمر پوشش است، هنوز به خوبی بررسی نشده است. در این پژوهش، برای نخستین بار، چقرمگی شکست، پلاستیسیته و حساسیت به نرخ کرنش لایه‌های نازک نیتريد تانتالوم به کمک روش نانو فرورونده بررسی و ارزیابی شد. در این بررسی نشان داده شده که تغییرات چقرمگی شکست فازهای مختلف نیتريد تانتالوم از  $0.6 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$  تا  $8.7 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$  بسته به میزان نیتروزن موجود در سیستم لایه نشانی و به تبع آن نیتروزن موجود در شبکه نیتريد تانتالوم افزایش می‌یابد. همچنین دو فاز مهم نیتريد تانتالوم یعنی  $\delta$ - $\text{Ta}_2\text{N}$  و  $\gamma$ - $\text{Ta}_2\text{N}$  دارای حساسیت به نرخ کرنش منفی و مثبت هستند که می‌توان این رفتار را به تغییرات ساختار فازی حین انجام آزمون نسبت داد.

### واژه‌های کلیدی:

پوشش نیتريد تانتالم، کندوپاش مگنترونی، چقرمگی شکست، پلاستیسیته، حساسیت به نرخ کرنش، آزمون نانوفرورونده.

### ۱- مقدمه

سطح‌های بزرگ لایه‌نشانی کند [۵، ۱۱-۱۲]. امروزه استفاده از ترکیبات نیتريدی و اکسیدی فلزات انتقالی به عنوان پوشش‌های محافظ به دلیل سختی و مقاومت به خوردگی خوب در کنار پایداری حرارتی و مقاومت الکتریکی بالا گسترش یافته است [۱۱-۱۵]. عملکرد مناسب این گروه از پوشش‌ها معمولاً به دلیل خواصی همچون چقرمگی شکست، سختی و میزان تغییر فرم پلاستیک محدود می‌شود. بنابراین اندازه‌گیری دقیق خواص مکانیکی می‌تواند انتخاب پوشش مناسب را تسهیل نماید. علی‌رغم قیمت بالا و شرایط پیچیده تولید پوشش‌های نیتريد

مهندسی سطح یکی از بهترین و اقتصادی‌ترین روش‌ها جهت افزایش مقاومت خوردگی سازه‌های فلزی در برابر محیط‌های خوردنده است [۱-۳]. روش کندوپاش مگنترونی<sup>۱</sup> یکی از روش‌های لایه‌نشانی فیزیکی بخار (PVD)<sup>۲</sup> است که در دهه گذشته توسعه زیادی جهت تولید پوشش‌های سخت، مقاوم خوردگی، مقاوم سایش، روانکار، تزئینی و یا پوشش‌هایی با خواص خاص الکتریکی و یا نوری داشته است [۴-۱۰]. کندوپاش مگنترونی، روشی مقرون به صرفه است که می‌تواند پوشش‌های لایه نازک را با خلوصی بالا و چسبندگی عالی روی

لایه‌نشانی تارگت و زیرلایه به منظور چربی‌گیری و به منظور اطمینان از عدم وجود ترکیبات اکسیدی روی سطح، در حمام اولتراسونیک استون و الکل به مدت ۱۲ دقیقه شستشو داده شدند. پلاسما در محیطی با مخلوط گاز آرگون با خلوص ۹۹/۹۹۹٪ و نیتروژن با خلوص ۹۹/۹۹۹٪ تشکیل و درصد غلظت گاز نیتروژن به منظور بررسی اثر آن برابر با ۱۰٪، ۱۵٪ و ۲۵٪ در نظر گرفته شد.

ساختار فازی لایه‌های نازک به دست آمده به کمک روش پراش پرتو ایکس مورد بررسی قرار گرفت. همچنین میکروسکوپ الکترونی روبشی نشر میدانی (FESEM) به منظور بررسی سطح نمونه‌ها و تحلیل ساختار هندسی ترک‌های به وجود آمده ناشی از آزمون نانوفروروندگی، مورد استفاده قرار گرفت. خواص مکانیکی لایه‌ها به کمک روش نانوفرورونده با فرورونده برکویچ و با استفاده از روابط الیور-فار بررسی شد. نمودار نیرو-جابجایی حاصل از آزمون نانوفرورونده برای محاسبه مدول الاستیک، سختی و پلاستیسیته مورد استفاده قرار گرفت. با در نظر گرفتن هندسه ترک ایجاد شده و خواص مکانیکی به دست آمده، می‌توان به کمک رابطه ۱ چقرمگی شکست نمونه‌ها را به‌دست آورد [۳۰].

$$K_C = \alpha \left( \frac{E}{H} \right)^{\frac{1}{2}} \left( \frac{P_{\max}}{C^{3/2}} \right) \quad (1)$$

در این روابط  $K_C$  بیانگر چقرمگی شکست لایه نازک،  $P_{\max}$  بیشینه نیرو در آزمون نانوسختی،  $C$  بیانگر طول ترک از مرکز اثر فرورونده تا انتهای ترک و  $E$ ، مدول الاستیک و  $H$ ، سختی نمونه است که با استفاده از نمودار نیرو-جابجایی محاسبه شده است. سپس با استفاده از نتایج آزمون XRD و تحلیل خواص مکانیکی هر یک از نمونه‌ها، رفتار هر یک از فازهای متفاوت نیتريد تانتالوم در برابر نرخ‌های بارگذاری متفاوت مقایسه شد. به منظور بررسی اثر بارگذاری در آزمون نانوفرورونده و شناخت رفتار لایه نازک نیتريد تانتالوم تولید شده در نرخ‌های متفاوت نیتروژن در گاز ورودی، آزمون نانوفرورونده در مقادیر متفاوت نرخ

تانتالوم، این پوشش توانسته توجه زیادی را به عنوان پوشش محافظ در بسیاری از زمینه‌ها مانند کاربردهای مقاوم به سایش و مقاوم به خوردگی، سیستم‌های میکروالکترونیک و استفاده‌های پزشکی به خود جلب کند [۱۶-۲۰]. پوشش‌های نیتريد تانتالوم معمولاً با روش‌های لایه‌نشانی از فاز بخار ایجاد می‌گردند [۶، ۲۱-۲۲]. تولید لایه‌های نازک نیتريد تانتالوم به روش کندوپاش مغناطیسی واکنشی می‌تواند منجر به تشکیل فازهای پایدار و نیمه پایدار متعدهی گردد که با توجه به شرایط رشد، می‌تواند دارای خواص مکانیکی و شیمیایی متفاوتی باشند [۲۳-۲۴]. با توجه به این نکته و همچنین تحقیقات محدودی که در زمینه خواص مکانیکی لایه نازک نیتريد تانتالوم صورت گرفته است، نیاز به بررسی خواص مکانیکی لایه نازک نیتريد تانتالوم از جمله چقرمگی شکست و پلاستیسیته به خوبی احساس می‌شود. از آنجا که یکی از مهمترین کاربردهای لایه نازک نیتريد تانتالوم، استفاده در ابزارهای سنجش فشار و کرنش‌سنج‌هاست [۲۵-۲۷]، نحوه بارگذاری و سرعت اعمال نیرو به لایه نازک و تاثیر آن بر خواص مکانیکی این لایه نیز دارای اهمیتی خاص است.

در این پژوهش سختی، پلاستیسیته و چقرمگی شکست فازهای متفاوت لایه نازک نیتريد تانتالوم به کمک روش نانوفروروندگی که مطمئن‌ترین روش جهت ارزیابی خواص مکانیکی لایه‌های نازک شمرده می‌شود [۲۸-۲۹]، بررسی شده و نتایج آن با توجه به شرایط لایه‌نشانی و ساختار فازی نیتريد تانتالوم تحلیل شده است.

## ۲- مواد و روش انجام تحقیق

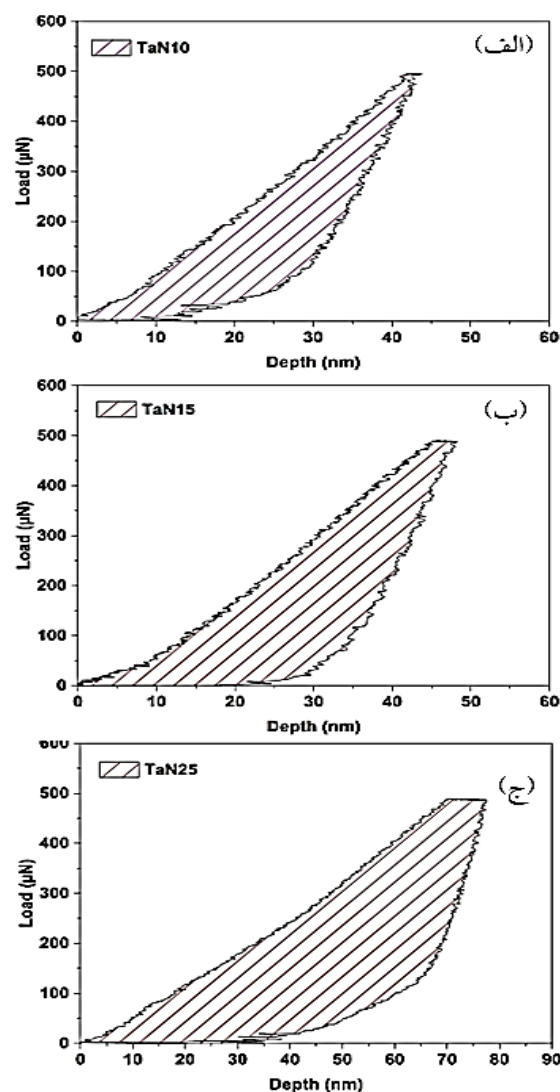
در این پژوهش، لایه‌های نازک نیتريد تانتالوم روی زیرلایه فولاد زنگ نزن آستنیتی ۳۱۶L به روش کندوپاش مغناطیسی واکنشی با جریان مستقیم ایجاد شده است. فشار پایه محفظه لایه نشانی  $1 \times 10^{-5}$  Torr و لایه‌نشانی در فشار  $1 \times 10^{-3}$  Torr انجام شد. تارگت تانتالوم با خلوص ۹۹/۹۵ به صورت موازی با زیرلایه در فاصله ۱۰ سانتیمتری قرار داده شد. قبل از عملیات

برای یک نیروی عمودی ثابت، افزایش داشته است. این رفتار بیانگر این نکته است که سختی نمونه‌ها با افزایش درصد نیتروژن از ۱۰٪ به ۱۵٪ و سپس ۲۵٪ روندی کاهشی داشته و از ۲۰ GPa به ۱۷/۵ GPa و سپس ۱۵ GPa تغییر کرده است. جدول خواص مکانیکی محاسبه شده از نمودار نیرو-جابجایی را برای سه نمونه لایه نازک نیتريد تانتالوم نشان می‌دهد. کار پلاستیک انجام شده در هر آزمون نانوفروردگی نیز با اندازه‌گیری سطح زیر نمودار نیرو جابجایی محاسبه و در جدول (۱) ارائه شده است. پر واضح است که کار پلاستیک انجام شده در نمونه TaN25 به میزان قابل توجهی از نمونه TaN15 و TaN10 بیشتر است. چقرمگی شکست نمونه‌ها نیز به کمک فرورونده برکویچ با نیروهای بالاتر اندازه‌گیری شد. استفاده از فرورونده برکویچ و اعمال نیروی زیاد منجر به پدید آمدن ترک‌های شعاعی در راستای گوش‌های تیز فرورونده خواهد شد. در شکل (۲) تصاویر میکروسکوپ الکترونی از سطح نمونه‌ها نشان داده شده است. بررسی هندسه ترک در این تصاویر نشان می‌دهد که طول ترک در نمونه TaN25 و نمونه TaN15 به ترتیب ۶ و ۴ برابر نمونه TaN10 است و به تبع آن چقرمگی شکست لایه نازک نیتريد تانتالوم در نمونه TaN25 نزدیک به ۱۰ برابر TaN15 و حدود  $7/8 \text{ mPa}\sqrt{\text{m}}$  است. چقرمگی شکست نمونه TaN10 از دیگر لایه‌های نازک کمتر بوده و نزدیک به  $6 \text{ mPa}\sqrt{\text{m}}$  دارد. همچنین اندیس تردی برای هر سه لایه نازک محاسبه شده که در جدول ارائه شده است. مقایسه این مقادیر به خوبی نشان می‌دهد که افزایش درصد نیتروژن در لایه نشانی لایه نازک نیتريد تانتالوم موجب کاهش تردی در این لایه خواهد شد که با مقادیر به دست آمده از چقرمگی شکست همخوانی کامل دارد. به منظور بررسی علت این رفتار، ساختار فازی لایه‌های ایجاد شده به کمک روش پراش پرتو ایکس مورد بررسی قرار گرفت. شکل (۳) نشان‌دهنده الگوهای پراش پرتو ایکس برای سه نمونه لایه نازک نیتريد تانتالوم نشانده شده روی زیرلایه فولاد است. همان‌طور که در شکل (۳) در نمونه با ۱۰٪ نیتروژن ورودی مشاهده می‌گردد، نمودار شامل یک پیک پهن بین  $30^\circ$

بارگذاری برای دو نمونه از لایه‌های نازک نیتريد تانتالوم اعمال و سختی نمونه‌ها اندازه‌گیری و بررسی شد.

### ۳- نتایج و بحث

نمودار نیرو جابجایی حاصل از آزمون نانو فروروندگی در شکل (۱) نشان داده شده است.



شکل (۱): نمودار نیرو-جابجایی حاصل از آزمون نانوفروردگی برای سه نمونه لایه نازک نیتريد تانتالوم: (الف): TaN10، (ب): TaN15 و (ج): TaN25

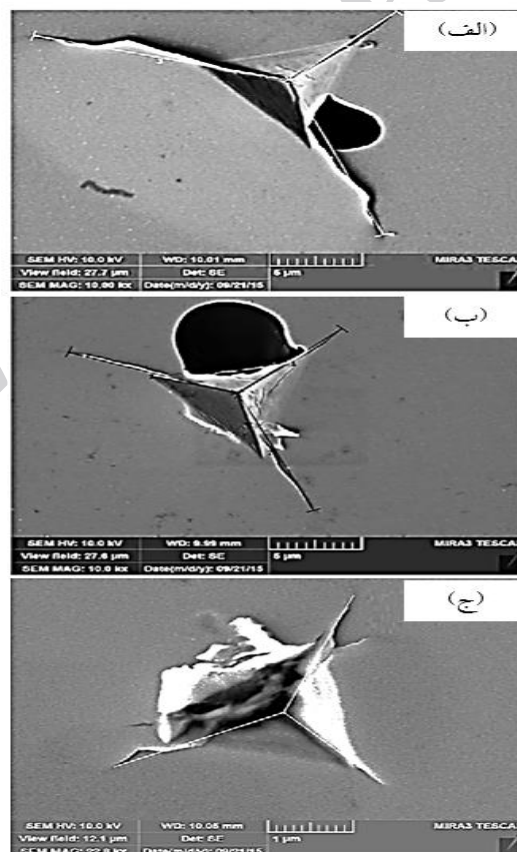
با دقت روی نمودار هر یک از نمونه‌ها می‌توان دریافت که عمق نفوذ فرورونده از نمونه TaN10 به TaN15 و سپس به TaN25

است. این نکته پیش از این نیز در لایه نشانی نیتريد تانتالوم با مقادير بسيار كم نيتروژن گزارش شده است [۲۳, ۳۱]. علت شكل گيري اين فاز در حقيقت نسبت بالاي اتم‌هاي كنده شده از سطح هدف تانتالوم به اتم‌هاي نيتروژن موجود در محفظه كندوپاش است كه موجب تشكيل فاز غني از تانتالوم خواهد شد. همچنين پيك‌هاي ضعيفي در نواحي  $43^\circ$ ،  $50^\circ$  و  $74^\circ$  مشاهده مي‌شود كه مربوط پراش زيرلايه است.

و  $40^\circ$  است كه مي‌تواند حاصل تجمع پراش صفحات (۰۱۱) و (۰۰۲) نيتريد تانتالوم با ساختار  $Ta_2N$  و شبكه هگزاگونال باشد. همچنين يك پيك پهن در محدوده  $67^\circ$  مشاهده مي‌شود كه ناشي از پراش صفحات (۱۱۰)، (۱۰۳) و (۱۱۲) در اين ساختار است. اين پيك‌هاي پهن بيانگر آن هستند كه ساختار فازی نمونه  $TaN_{10}$  كاملا بلوري نيست و داراي جهت گيري مشخص نبوده و همچنين ريزساختار از كريستاليت‌هاي بسيار ريز تشكيل شده

جدول (۱): خواص مكانيكي لايه نازك نيتريد تانتالوم حاصل از آزمون نانوفورونده

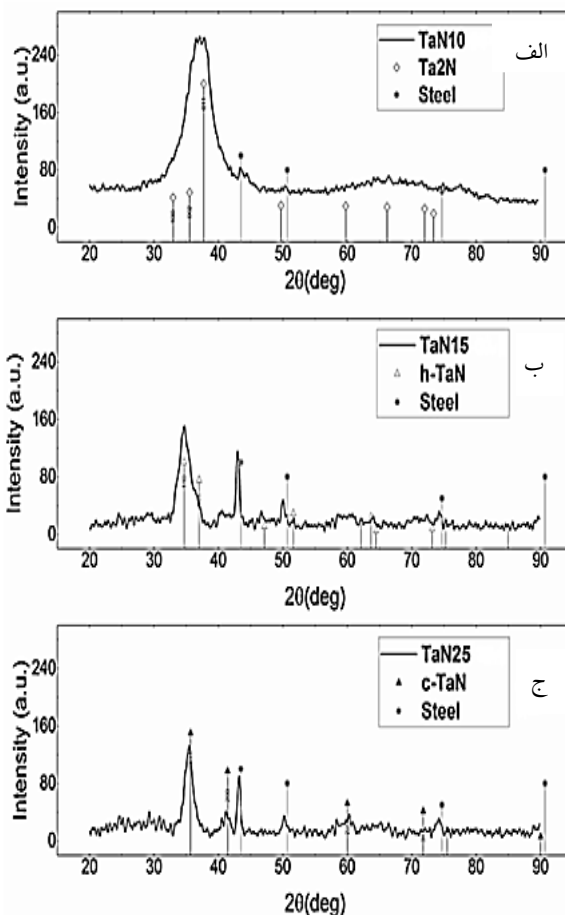
H	E	H <sup>3</sup> /E <sup>2</sup>	$\epsilon_p$	$\epsilon_p/\epsilon_{tot}$	طول ترك	شكست چقرمگي	ضريب تردی	ساختار فازی	N <sub>2</sub> /Ar	نمونه
GPpa	GPpa	GPpa		%	$\mu m$	mPa $\sqrt{m}$	(B)			
۲۰/۶۲	۲۰۱	۰/۲۱۷	۵/۲	۵۰	۱۲/۲۸	۵/۹۶E۵	3.46E-05	$\gamma$ - $Ta_2N$	۱۰	TaN10
۱۷/۴۹	۱۸۹	۰/۱۴۹	۶/۸	۵۷	۹/۷	۸/۱۷E۵			2.14E-05	$\epsilon$ -TaN ۱۵ TaN15
۱۵	۱۷۶	۰/۱۰۸	۱۳/۹	۸۰	۲/۱۴	۷/۸۳E۶	1.92E-06	$\delta$ -TaN	۲۵	TaN25



شكل (۲): تصاوير ميكروسكوپي الكتروني از سطح نمونه‌هاي نيتري تانتالوم تحت بارگذاري با نيروي بالا: (الف):  $TaN_{10}$ ، (ب):  $TaN_{15}$  و (ج):  $TaN_{25}$

دبی ثابت محفظه لایه‌نشانی، مقداری از ترکیبات نیتريدی سطح تارگت را پوشانده که به تبع آن تعداد اتم‌های تانتالوم فلزی که از سطح هدف کنده می‌شود کاهش یافته و در نتیجه نسبت تانتالوم افزایش می‌یابد [۳۲]. همچنین افزایش درصد نیتروژن محفظه لایه نشانی موجب افزایش مقدار این عنصر در ترکیب نهایی لایه نازک خواهد شد. همان‌طور که انتظار می‌رفت، با افزایش نیتروژن به ۲۵٪، تمامی  $\epsilon$ -TaN موجود در نمونه ناپدید و ساختار فازی نمونهی TaN25 تماماً از  $\delta$ -TaN با شبکه مکعبی مرکزدار تشکیل شده است. با بررسی پراش پرتو ایکس نمونهی TaN25 این نکته با بررسی پیک ۴۱ درجه و ۶۰ درجه در نمودار پوشش، قابل تایید است. همان‌طور که در الگوی پراش پرتو ایکس نمونه با مقدار نیتروژن ورودی ۲۵٪ مشخص است، بلندترین پیک کاملاً با مقدار مشخص شده توسط صفحه (۱۱۱) نیتريد تانتالوم با ساختار مکعبی ( $\delta$ -TaN) مطابقت داشته و همچنین پیک‌های ۴۱° و ۶۰° که مربوط به صفحات (۲۲۰) و (۲۰۰) نیتريد تانتالوم با شبکه مکعبی هستند در الگوی پراش با شدت بالایی ظاهر شده است. بنابراین می‌توان نتیجه گرفت با افزایش درصد نیتروژن در گاز ورودی به محفظه لایه‌نشانی، لایه‌های تشکیل شده به ترتیب دارای ساختار  $\gamma$ -Ta<sub>2</sub>N،  $\epsilon$ -TaN و  $\delta$ -TaN خواهد بود و این روند در لایه‌نشانی نیتريد تانتالوم که توسط دیگر محققین انجام شده است نیز مشاهده گردیده است [۳۳].

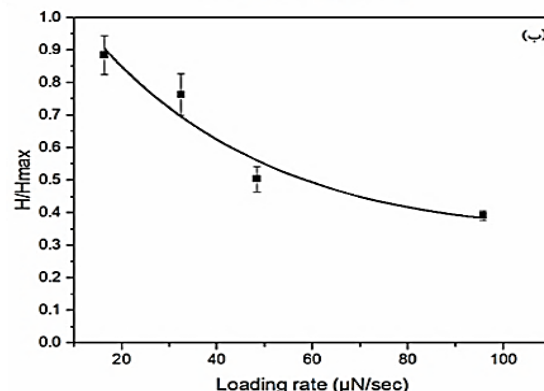
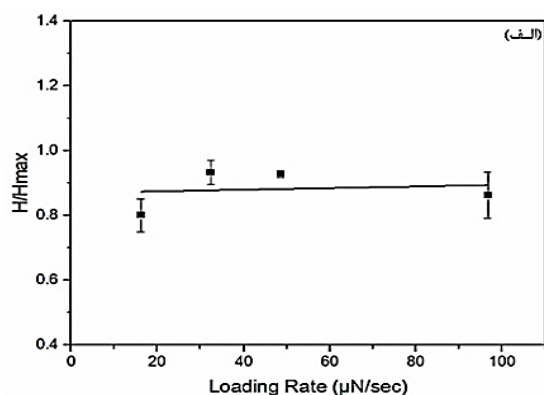
باتوجه به نتایج آزمون XRD مشخص می‌شود که تردی نمونه TaN10 و TaN15 می‌تواند به ساختار هگزاگونال دو فاز  $\gamma$ -Ta<sub>2</sub>N و  $\epsilon$ -TaN ارتباط داشته باشد، چراکه این ساختار دارای سیستم‌های لغزش کمتری نسبت به شبکه مکعب مرکزدار - $\delta$  TaN است که منجر به کاهش حرکت نابجایی‌ها در اثر اعمال تنش و به تبع آن کاهش تغییر فرم پلاستیک در نمونه خواهد شد. همچنین روش پراش پرتو ایکس نشان داد که جهت‌گیری غالب در نمونه Ta25 شامل صفحات (۱۱۱) بوده که در واقع صفحات فشرده در شبکه مکعب مرکز وجه دار است و دارای بالاترین ضریب فشرده‌گی در این ساختار است که حرکت بیشتر



شکل (۳): آنالیز اشعه ایکس برای سه نمونه لایه نازک نیتريد تانتالوم: (الف): TaN10، (ب): TaN15 و (ج): TaN25

با افزایش نسبت نیتروژن گاز ورودی به ۱۵٪، فاز Ta<sub>2</sub>N تقریباً از بین رفته و ظهور پیک‌های شدید در محدوده ۳۴/۶° و ۳۷° مربوط به صفحات (۱۱۰) و (۱۰۱) نیتريد تانتالوم با شبکه هگزاگونال به خوبی نشان می‌دهد که بخش زیادی از ساختار حاوی نیتريد تانتالوم با نسبت استوکیومتری برابر ( $\epsilon$ -TaN) خواهد بود. همچنین صفحات (۱۱۱)، (۲۰۱)، (۳۰۰) و (۲۱۱) دارای پراش ضعیفی به ترتیب در نواحی ۴۷°، ۵۱/۶°، ۶۳/۶° و ۶۴/۴° می‌باشند. بنابراین می‌توان نتیجه گرفت که افزایش درصد نیتروژن در گاز ورودی به محفظه لایه نشانی موجب تغییر تمامی فاز  $\gamma$ -Ta<sub>2</sub>N به  $\epsilon$ -TaN گشته است. علت این تغییر فاز را می‌توان این‌طور بیان کرد که با افزایش درصد گاز نیتروژن در

میزان تغییر فاز افزایش یافته و چون فاز ثانویه دارای سختی کمتری نسبت به ماده اولیه است، سختی محاسبه شده نیز کاهش می‌یابد. با مقایسه نمودارهای الف و ب شکل به خوبی می‌توان دریافت که افزایش سرعت بارگذاری در لایه  $Ta_2N$  (با کاهش زمان بارگذاری در نمودار مشخص شده است). سختی از حدود  $2.0\text{ GPa}$  به حدود  $1.0\text{ GPa}$  کاهش یافته است در حالی که در نمونه  $TaN$  نه تنها کاهش چشمگیری در اثر افزایش سرعت بارگذاری مشاهده نمی‌شود، بلکه کمی افزایش نیز در میانگین سختی مشاهده می‌شود. این نتیجه را می‌توان از روی نمودارهای شبیه‌سازی دینامیک ملکولی نیز به خوبی مشاهده کرد (شکل ۵). همان طور که در این شکل مشاهده می‌شود، هیچ گونه تغییری در بیشینه نیروی وارد شده به فرورونده در اثر تغییر سرعت بارگذاری در عمق‌های یکسان مشاهده نمی‌شود. بنابراین می‌توان نتیجه گرفت که تغییر سرعت بارگذاری در سختی نمونه‌های  $TaN$  با شبکه مکعبی تاثیر گذار نیست.



شکل (۴): تغییرات سختی با نرخ بارگذاری برای لایه نازک نیتريد تانتالوم با ساختار: (الف):  $TaN$  و (ب):  $Ta_2N$  در آزمون نانوفروروندگی

و سریعتر نابعایی‌ها را امکان‌پذیر می‌سازد. از سوی دیگر، در نمونه  $TaN10$  و  $TaN15$  صفحات مرجح به ترتیب شامل صفحات (۱۱۰) و (۱۰۱) است که صفحات مناسبی برای ایجاد سیستم لغزش در شبکه هگزاگونال نیستند [۳۴]. علاوه بر این نشان داده شده است که شبکه هگزاگونال فشرده تنها دارای ۳ سیستم لغزش فعال است در حالی که شبکه FCC دارای ۱۲ سیستم لغزش فعال بوده که تغییر فرم پلاستیک را در این ساختار تسهیل می‌نماید [۳۵].

در نتیجه با تکیه بر آنالیز ساختار فازی سه نمونه لایه نازک نیتريد تانتالوم، می‌توان به این نتیجه رسید که افزایش درصد نیتروژن از ۱۰٪ به ۱۵٪ و ۲۵٪ در محفظه لایه نشانی منجر به تشکیل نیتريد تانتالوم با ساختارهای به ترتیب هگزاگونال  $\gamma-Ta_2N$ ، هگزاگونال  $\delta-TaN$  و  $\epsilon-TaN$  با شبکه مکعب مرکزدار خواهد شد که بنا بر تحلیل صورت گرفته و نتایج آزمون‌های تجربی، فاز اولی دارای کمترین چقرمگی شکست و بالاترین ضریب تردی و فاز آخری دارای بیشترین چقرمگی شکست همراه با کمترین ضریب تردی خواهد بود.

در ادامه تاثیر نرخ بارگذاری بر دو نمونه نیتريد تانتالوم با بیشترین و کمترین چقرمگی شکست (هگزاگونال  $\gamma-Ta_2N$  و  $\delta-TaN$  با شبکه مکعب مرکزدار) انجام شد و نتایج آن در شکل (۴) قابل مشاهده است. همان طور که نمودار تغییرات سختی با نرخ بارگذاری نشان می‌دهد، در نیتريد تانتالوم با ساختار فاز  $Ta_2N$  و شبکه هگزاگونال که از لایه‌نشانی در گاز ورودی با غلظت نیتروژن ۱۰٪ به دست آمده است، با افزایش نرخ بارگذاری، سختی کاهش می‌یابد. علت این رفتار غیر معمول ممکن است ناشی از تغییر فاز حین سختی سنجی باشد، چرا که مشابه این رفتار را می‌توان در لایه نازک تانتالوم خالص نیز یافت [۳۶-۳۷]. بنابراین می‌توان گفت افزایش سرعت‌های بارگذاری موجب تغییر فاز آن از  $Ta_2N$  به  $TaN$  گردد و میزان این تغییر فاز ارتباط مستقیم با افزایش دمای موضعی ناحیه زیر فرورونده خواهد داشت؛ بدین معنا که با افزایش سرعت بارگذاری، میزان افزایش دمای ناحیه نزدیک فرورونده نیز افزایش یافته که به تبع آن



#### ۴- نتیجه گیری

در این پژوهش لایه نازک نیتريد تانتالوم با روش کندوپاش مغناطیسی واکنشی به موفقیت روی زیرلایه فولاد زنگ نزن ایجاد شد. خواص مکانیکی لایه نازک با روش نانو فرورونده اندازه گیری و بررسی شد و نتایج زیر حاصل این ارزیابی است:

۱- نشان داده شد که سختی، پلاستیسیته و چقرمگی شکست نمونه ها به دلیل تفاوت های فازی در ساختار لایه های نازک، بسیار متفاوت است.

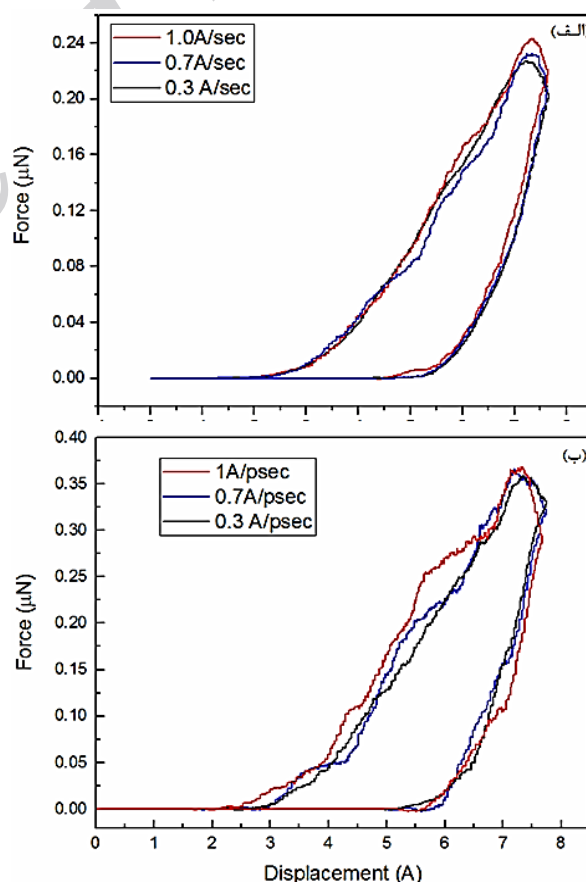
۲- نمونه TaN10 که کمترین میزان نیتروژن در گاز ورودی به محفظه لایه نشانی را داشت، دارای بالاترین سختی،  $21 \text{ GPa}$  و کمترین چقرمگی شکست و پلاستیسیته، به ترتیب  $0.6 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$  و  $50\%$  است.

۳- نمونه TaN25 به صورت کاملا متفاوت دارای بیشترین پلاستیسیته و چقرمگی شکست و پایین ترین میزان سختی، به ترتیب  $7/8 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$  و  $15 \text{ GPa}$  است. این موضوع را می توان به ساختار فازی مکعب مرکز وجه دار لایه نازک نیتريد تانتالوم ارتباط داد.

۴- آنالیز اشعه X نمونه ها نشان داد که تغییرات درصد نیتروژن در محفظه لایه نشانی منجر به تشکیل فازهای متفاوتی از نیتريد تانتالوم به شبکه های کریستالی متفاوت خواهد شد. طبق این بررسی، افزایش نیتروژن از  $10\%$  به  $15\%$  و سپس  $25\%$  منجر به تشکیل فازهای هگزاگونال  $\gamma\text{-Ta}_2\text{N}$ ، هگزاگونال  $\delta\text{-TaN}$  و  $\epsilon\text{-TaN}$  با شبکه مکعبی مرکز وجه دار می گردد.

۵- تغییرات فازی در لایه های نیتريد تانتالوم به نظر مهمترین عامل تاثیرگذار روی خواص مکانیکی لایه های نازک نیتريد تانتالوم بوده و از آنجا که سیستم هگزاگونال دارای کمترین سیستم های لغزش نابجایی است، بنابراین  $\gamma\text{-Ta}_2\text{N}$  دارای کمترین پلاستیسیته و چقرمگی شکست خواهد بود. از سوی دیگر، از آنجا که شبکه مکعب مرکز وجه دار دارای تعداد سیستم های لغزش به مراتب بیشتری از سیستم هگزاگونال است،  $\delta\text{-TaN}$  دارای پلاستیسیته و چقرمگی شکست بالاتری نسبت به سایر فازهای نیتريد تانتالوم خواهد بود.

شکل (۵) نمودار تغییرات نیرو-جابجایی را برای آزمون شبیه سازی شده سختی سنجی نانو در سرعت های متفاوت بارگذاری نشان می دهد. همان طور که در شکل نشان داده شده است، تغییر سرعت بارگذاری هیچ تاثیری بر نمودار نیرو-جابجایی نیتريد تانتالوم با شبکه مکعبی نداشته و تقریبا بیشینه نیرو در بیشترین عمق فرورفتگی برای هر  $3$  حالت برابر است. برای نمونه  $\text{Ta}_2\text{N}$  در سرعت های پایین، نمودار نیرو-جابجایی شکلی شبیه به نمودار نیرو - جابجایی نیتريد تانتالوم با شبکه مکعبی داشته و هیچ ناهمگونی در آن مشاهده نمی گردد. اما با افزایش سرعت بارگذاری، شکلی شبیه به پلاتو در نمودارها شروع به نمایان شدن می کند. وقوع این پدیده در واقع می تواند بیانگر تغییر فاز ماده حین اعمال نیرو در سرعت بالا باشد [۳۸].



شکل (۵): نمودار نیرو-جابجایی برای شبیه سازی دینامیک ملکولی نانو سختی در سرعت بارگذاری های متفاوت: (الف) نمونه TaN با شبکه مکعبی و (ب) نمونه  $\text{Ta}_2\text{N}$  با شبکه هگزاگونال

Redondo-Cubero, "Bonding structure and morphology of chromium oxide films grown by pulsed-DC reactive magnetron sputter deposition", *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 672, pp. 529-535, 2016.

[8] H. Gao, Y. Li, C. Li, F. Ma, Z. Song & K. Xu, "Tuning the electronic properties in TaN<sub>x</sub>/Ag nanocomposite thin films", *RSC Advances*, Vol. 6, pp. 30998-31004, 2016.

[9] N. Srinatha, Y. S. No, V. B. Kamble, S. Chakravarty, N. Suriyamurthy, B. Angadi, A. M. Umarji & W. K. Choi, "Effect of RF power on the structural, optical and gas sensing properties of RF-sputtered Al doped ZnO thin films", *RSC Advances*, Vol. 6, pp. 9779-9788, 2016.

[10] D. Zheng, J. Xiong, P. Guo, S. Wang & H. Gu, "AlN-based film buck acoustic resonator operated in shear mode for detection of carcinoembryonic antigens", *RSC Advances*, Vol. 6, pp. 4908-4913, 2016.

[11] H. N. Shah, R. Jayaganthan, D. Kaur & R. Chandra, "Influence of sputtering parameters and nitrogen on the microstructure of chromium nitride thin films deposited on steel substrate by direct-current reactive magnetron sputtering", *Thin Solid Films*, Vol. 518, pp. 5762-5768, 2010.

[12] Y. W. Lin, J. H. Huang & G. P. Yu, "Effect of nitrogen flow rate on properties of nanostructured TiZrN thin films produced by radio frequency magnetron sputtering", *Thin Solid Films*, Vol. 518, pp. 7308-7311, 2010.

[13] M. Cheviot, M. Gouné & A. Poulon-Quintin, "Monitoring tantalum nitride thin film structure by reactive RF magnetron sputtering: Influence of processing parameters", *Surface and Coatings Technology*, Vol. 284, pp. 192-197, 2015.

[14] D. C. Tsai, Z. C. Chang, B. H. Kuo, M. H. Shiao, S. Y. Chang & F. S. Shieu, "Structural morphology and characterization of (AlCrMoTaTi)N coating deposited via magnetron sputtering", *Applied Surface Science*, Vol. 282, pp. 789-797, 2013.

[15] F. M. Mostafa Alishahi, S. M. Musavi Khoei, M. Aparicio, E. Lopez-Elvira, J. Méndez & Ra. Gago "Structural properties and corrosion resistance of

۶- همچنین نشان داده شد که  $\gamma$ -Ta<sub>2</sub>N به شدت نسبت به نرخ بارگذاری حین انجام آزمون نانوفروورونده واکنش نشان می‌دهد. در این آزمون با افزایش نرخ بارگذاری از سختی لایه نازک نیتريد تانالوم کاسته می‌شود. حساسیت به نرخ کرنش منفی این لایه را می‌توان به تغییرات فازی ناشی از کرنش حین انجام آزمون نانو فروورونده ارتباط داد.

۷- لایه نازک  $\delta$ -TaN در آزمون تغییر نرخ بارگذاری، تغییرات مثبت سختی را با افزایش نرخ بارگذاری نشان داد. این امر ناشی از افزایش دانسیته نابجایی‌ها در شبکه کریستالی حین انجام آزمون نانوفروورونده است

## ۵- مراجع

[1] M. A. Rahmat, R. N. Ibrahim & R. H. Oskouei, "A stress-based approach to analyse fretting fatigue life behaviour of electroless Ni-P coated Al 7075-T6", *Materials Science and Engineering: A*, Vol. 631, pp. 126-138, 2015.

[2] F. Benjamin Lewis, "A study of adhesion of tantalum films at elevated temperatures via advanced", 2003.

[3] D. E. J. Talbot & J. D. R. Talbot, *Corrosion Science and Technology*, Second Edition, CRC Press, 2007.

[4] P. J. Kelly & R. D. Arnell, "Magnetron sputtering: a review of recent developments and applications", Vol. 56, pp. 159-172, 2000.

[5] C. Petrogalli, L. Montesano, M. Gelfi, G. M. La Vecchia & L. Solazzi, "Tribological and corrosion behavior of CrN coatings: Roles of substrate and deposition defects", *Surface and Coatings Technology*, Vol. 258, pp. 878-885, 2014.

[6] S. S. Firouzabadi, K. Dehghani, M. Naderi & F. Mahboubi, "Numerical investigation of sputtering power effect on nano-tribological properties of tantalum-nitride film using molecular dynamics simulation", *Applied Surface Science*, Vol. 367, pp. 197-204, 2016.

[7] R. Gago, M. Vinnichenko, R. Hübner & A.



- films prepared by reactive pulsed dc magnetron sputtering”, *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 509, pp. 6400-6407, 2011.
- [24] ح. ش. ع. شفيعی، "بررسی و مطالعه سختی و رفتار سایشی سه پوشش TiN-TiCN-TiN و TiCN، TiN اعمال شده بر روی فولاد ابزار D2 به روش تبخیر پرتو الکترونی EB—PVD"، فرآیندهای نوین در مهندسی مواد، ص ۱۳۱-۱۴۱، دوره ۹، ۱۳۹۴.
- [25] M. Grosser, M. Münch, H. Seidel, C. Bienert, A. Roosen & U. Schmid, "The impact of substrate properties and thermal annealing on tantalum nitride thin films", *Applied Surface Science*, Vol. 258, pp. 2894-2900, 2012.
- [26] Ayerdi, E. Castaño, A. Garcia-Alonso & F. Gracia, "Ceramic pressure sensor based on tantalum thin film", *Sensors and Actuators A: Physical*, Vol. 42, pp. 435-438, 1994.
- [27] M. Grosser, H. Seidel & U. Schmid, "Microstructure and mechanical properties of sputter deposited tantalum nitride thin films after high temperature loading", *Thin Solid Films*, Vol. 629, pp. 69-78, 2017.
- [28] R. Chen, J. P. Tu, D. G. Liu, Y. L. Yu, S. X. Qu & C. D. Gu, "Structural and mechanical properties of TaN/a-CN<sub>x</sub> multilayer films", *Surface and Coatings Technology*, Vol. 206, pp. 2242-2248, 2012.
- [29] S. Suresh, T. G. Nieh & B. Choi, "Nano-indentation of copper thin films on silicon substrates", *Scripta Materialia*, Vol. 41, pp. 951-957, 1999.
- [30] M. Laugier, "Effect of hardness on erosion of WC-Co composites", *Journal of Materials Science*, Vol. 21, pp. 3548-3550, 1986.
- [31] E. Liu, G. Jin, X. Cui, Q. Xiao & T. Shao, "Effect of gas Pressure on the Mechanical Properties of Sputtered TaN Films", *Physics Procedia*, Vol. 50, pp. 438-441, 2013.
- [32] T. C. Li, B. J. Lwo, N. W. Pu, S. P. Yu & C. H. Kao, "The effects of nitrogen partial pressure on the properties of the TaN<sub>x</sub> films deposited by reactive magnetron sputtering", *Surface and*
- tantalum nitride coatings produced by reactive DC magnetron sputtering”, *Royal Society of Chemistry*, Vol. pp. 2016.
- [16] S. Xu, P. Munroe, J. Xu & Z. H. Xie, "The microstructure and mechanical properties of tantalum nitride coatings deposited by a plasma assisted bias sputtering deposition process”, *Surface and Coatings Technology*, Vol. 307, pp. 470-475, 2016.
- [17] L. Mendizabal, R. Bayón, E. G-Berasategui, J. Barriga & J. J. Gonzalez, "Effect of N<sub>2</sub> flow rate on the microstructure and electrochemical behavior of TaN<sub>x</sub> films deposited by modulated pulsed power magnetron sputtering”, *Thin Solid Films*, Vol. 610, pp. 1-9, 2016.
- [18] D. k. Kim, H. Lee, D. Kim & Y. Keun Kim, "Electrical and mechanical properties of tantalum nitride thin films deposited by reactive sputtering”, *Journal of Crystal Growth*, Vol. 283, pp. 404-408, 2005.
- [19] N. R. Moodya, D. Medlina, D. Boehmea, D. P. Norwoodb, "Film thickness effects on the fracture of tantalum nitride on aluminum nitride thin film systems.pdf”, Vol. 61. No. 1, pp. 107-118, 1998.
- [۲۰] م علیشاهی، ف. محبوبی و س. م. موسوی خوئی، "بررسی رفتار خوردگی پوشش تانتالم لایه نشانی شده به روش کندوپاش مگنترونی"، فرآیندهای نوین در مهندسی مواد، دوره ۱۲، شماره ۲، ص ۱۳۹-۱۵۱، ص ۱۳۹۷.
- [21] M. Alishahi, F. Mahboubi, S. M. Mousavi Khoie, M. Aparicio, R. Hübner, F. Soldera & R. Gago, "Electrochemical behavior of nanocrystalline Ta/TaN multilayer on 316L stainless steel: Novel bipolar plates for proton exchange membrane fuel-cells”, *Journal of Power Sources*, Vol. 322, pp. 1-9, 2016.
- [22] M. Zhang, Y. F. Zhang, P. D. Rack, M. K. Miller & T. G. Nieh, "Nanocrystalline tetragonal tantalum thin films”, *Scripta Materialia*, Vol. 57, pp. 1032-1035, 2007.
- [23] T. Elangovan, S. Murugesan, D. Mangalaraj, P. Kuppusami, S. Khan, C. Sudha, V. Ganesan, R. Divakar & E. Mohandas, "Synthesis and high temperature XRD studies of tantalum nitride thin

Coatings Technology, Vol. 201, pp. 1031-1036, 2006.

- [33] H. B. Nie, S. Y. Xu, S. J. Wang, L. P. You, Z. Yang, C. K. Ong, J. Li & T. Y. F. Liew, "Structural and electrical properties of tantalum nitride thin films fabricated by using reactive radio-frequency magnetron sputtering", Applied Physics A Materials Science & Processing, Vol. 73, pp. 229-236, 2001.
- [34] B. Selvarajou, B. Kondori, A. A. Benzerga & S. P. Joshi, "On plastic flow in notched hexagonal close packed single crystals", Journal of the Mechanics and Physics of Solids, Vol. 94, pp. 273-297, 2016.
- [35] M. Yoo, "Slip, twinning, and fracture in hexagonal close-packed metals", Metallurgical Transactions A, Vol. 12, pp. 409-418, 1981.
- [36] Y. M. Wang, A. M. Hodge, P. M. Bythrow, T. W. Barbee & A. V. Hamza, "Negative strain rate sensitivity in ultrahigh-strength nanocrystalline tantalum", Applied Physics Letters, Vol. 89, pp. 081903, 2006.
- [37] J. Shi, Z. H. Cao & J. G. Zheng, "Size dependent strain rate sensitivity transition from positive to negative in Ti/Ni multilayers", Materials Science and Engineering: A, Vol. 680, pp. 210-213, 2017.
- [38] T. Juliano, V. Domnich & Y. Gogotsi, "Examining pressure-induced phase transformations in silicon by spherical indentation and Raman spectroscopy: A statistical study", Journal of Materials Research, Vol. 19, pp. 3099-3108, 2011.

۶- پی نوشت

- 
- [1] Magnetron sputtering deposition  
 [2] Physical vapor deposition  
 [3] Tantalum Nitride  
 [4] Field-emission scanning electron microscopy  
 [5] X-ray diffraction  
 [6] Nano-Indentation  
 [7] Fracture Toughness  
 [8] Strain Rate Sensivity  
 [9] Plasticity  
 [10] Brittleness Index

## Fracture toughness and plasticity evaluation of sputter deposited tantalum nitride thin film

Seyed Siavash Firouzabadi<sup>1\*</sup>, Kamran Dehghani<sup>2</sup>, Malek Naderi<sup>3</sup>, Farzad Mahboubi<sup>2</sup>

1- Ph.D, Amirkabir University of Technology, Department of Mining and Metallurgical Engineering, Tehran, Iran

2- Professor, Amirkabir University of Technology, Department of Mining and Metallurgical Engineering, Tehran, Iran

3- Associate professor, Amirkabir University of Technology, Department of Mining and Metallurgical Engineering, Tehran, Iran

\*Corresponding Author: s.firouzabadi@aut.ac.ir

### Abstract

Although tantalum nitride coatings have recently been attracted researchers' attentions due to their high hardness and corrosion resistance, the fracture toughness and deformation plasticity of thin tantalum nitride film has not been well investigated yet. In this research, for the first time, the fracture toughness, strain rate sensitivity and plasticity of sputter deposited tantalum nitride thin films have been evaluated using nano indentation technique and SEM micrographs. It was shown that the fracture toughness was increases from 0.6 to 7.8 MPa $\sqrt{m}$  with increasing the nitrogen in sputtering chamber. This increase was attributed to the structural evolution from a hexagonal  $\gamma$ -Ta<sub>2</sub>N phase to the hexagonal  $\epsilon$ -TaN and face centered cubic  $\delta$ -TaN phases, determined by X-Ray Diffraction analysis. The plasticity of the TaN films evaluations indicated that the ratio of plastic work to total work was increased from 50% to 57% and 80% with phase variation from  $\gamma$ -Ta<sub>2</sub>N to  $\epsilon$ -TaN and  $\delta$ -TaN, respectively.

**Keywords:** Tantalum Nitride Thin Films, Magnetron Sputtering, Fracture Toughness, Plasticity, Strain Rate Sensitivity, Nanoindentation.

Journal homepage: ma.iaumajlesi.ac.ir

### Please cite this article using:

Seyed Siavash Firouzabadi, Kamran Dehghani, Malek Naderi, Farzad Mahboubi, Fracture toughness and plasticity evaluation of sputter deposited tantalum nitride thin film, in Persian, New Process in Material Engineering, 2019, 13(1), 103-113.