

薄膜/涂层材料界面结合强度评价方法研究进展

潘晓龙, 胡小刚, 赵婧, 邱龙时

(西安稀有金属材料研究院有限公司, 西安 710016)

摘要: 薄膜/涂层与基体间的结合强度作为评价膜层质量的关键指标之一, 是保证膜层满足力学、电学、光学以及磁学等使用性能的根本前提。薄膜/涂层材料界面结合性能的表征是表面科学与工程领域的重要组成部分, 亦是研判和预防界面失效的基本依据。近年来, 新材料、新装备、新技术和新工艺的不断涌现, 加剧了界面微观结构的复杂性和结果的不可预测性, 同时对膜/基界面结合强度的评价也提出了更高的要求。目前, 用于膜/基界面结合强度的评价方法种类繁多, 测试原理各异, 适用范围不同, 且尚无一种方法适用于所有的材料体系。准确评价膜/基界面结合强度对界面性能的控制、改善, 以及对膜层的服役行为和寿命的预估具有重要指导意义。首先, 简要介绍了界面结合强度的物理含义, 明晰了“本征结合强度”与“实际结合强度”间的差异, 并从断裂力学的角度描述了界面结合强度的表征模型。然后, 将当前常用的评价方法按照加载方式划分为静态加载方法(包括拉伸法、剥离法、划痕法、压入法、鼓泡法、弯曲法等)和动态加载方法(往复划痕法、冲击法、循环压入法、接触疲劳法等), 并进行了分类评述。系统梳理了各种评价方法的基本原理、技术特点、力学模型, 概括了不同评价方法的优势及不足。此外, 归纳了适用的涂层材料体系和涂层厚度范围, 综述了薄膜/涂层材料界面结合强度评价方法的研究现状。在静态评价方法中, 划痕法和表面压入法因具有测试简单、耗时少、试样无需特殊处理, 且有专业商用化设备可供使用等优点, 是目前最为常用的膜基结合强度测试方法。相较于静态方法, 采用动态方法来评价界面结合强度更加贴近服役工况, 可为薄膜/涂层材料失效提供更为准确的预判。在动态评价方法中, 滚动接触疲劳法和循环压入法具有对界面因素敏感、可定量化和可动态化监测等优点, 在膜基结合强度评价上展示出良好的应用前景。最后, 展望了界面结合强度评价方法未来的发展方向, 未来应当开发更加高效、准确的评价方法, 构建统一的评价标准和表征参量, 建立完整的界面安全和失效评价体系, 以期为膜/基界面结合强度的合理及准确评价提供参考, 拓展薄膜/涂层材料在新领域和新方向上的应用广度和深度。

关键词: 薄膜; 涂层; 界面; 结合强度; 评价方法

中图分类号: TB43 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3660(2022)04-0050-16

DOI: 10.16490/j.cnki.issn.1001-3660.2022.04.005

收稿日期: 2021-08-08; 修订日期: 2021-11-09

Received: 2021-08-08; **Revised:** 2021-11-09

基金项目: 国防科技工业核材料创新基金(ICNM-2021-ZH-15); 国家自然科学基金(52101099); 陕西省自然科学基础研究计划(2020JQ-924, 2021JQ-977); 陕西省重点研发计划(2021GY-233, 2021GY-249)

Fund: Innovation Center of Nuclear Materials for National Defence Industry (ICNM-2021-ZH-15); National Natural Science Foundation of China (52101099); Natural Science Basic Research Program of Shaanxi (2020JQ-924, 2021JQ-977); Key Research and Development Program of Shaanxi (2021GY-233, 2021GY-249)

作者简介: 潘晓龙(1979—), 男, 高级工程师, 主要研究方向为表面技术。

Biography: PAN Xiao-long (1979—), Male, Senior Engineer, Research focus: surface technology.

通讯作者: 邱龙时(1988—), 男, 博士, 主要研究方向为表面工程。

Corresponding author: QIU Long-shi (1988—), Male, Doctor, Research focus: surface engineering.

引文格式: 潘晓龙, 胡小刚, 赵婧, 等. 薄膜/涂层材料界面结合强度评价方法研究进展[J]. 表面技术, 2022, 51(4): 50-65.

PAN Xiao-long, HU Xiao-gang, ZHAO Jing, et al. Research Progress on Evaluation Methods of Interfacial Bonding Strength of Film/Coating[J]. Surface Technology, 2022, 51(4): 50-65.

Research Progress on Evaluation Methods of Interfacial Bonding Strength of Film/Coating

PAN Xiao-long, HU Xiao-gang, ZHAO Jing, QIU Long-shi

(Xi'an Rare Metal Materials Institute Co., Ltd., Xi'an 710016, China)

ABSTRACT: The bonding strength between the film/coating and the substrate as one of the key indexes to evaluate the quality of the film/coating is the basic premise to ensure that the film/coating meets the requirements of mechanical, electrical, optical and magnetic properties. The characterization of interfacial bonding properties of film/coating materials is one of the most important parts of surface science and engineering, as well as the basis for the study and prevention of interface failure. With the constant emergence of new materials, new equipment, new technologies and new process, the interfacial microstructure becomes more complex, the result becomes more unpredictable, and higher requirements are put forward for the evaluation of interface bonding strength. At present, various methods have been developed to evaluate the interfacial bonding strength of film/coating and substrate, the test principle and application scope are quite different. More importantly, there is no single method that is suitable for all material systems. It is of great significance to accurately evaluate the film/coating bonding strength for the control and improvement of the interface properties, and the prediction of the service behavior and life of the film/coating. The physical significance of interfacial bonding strength was introduced, the difference between “intrinsic binding strength” and “actual binding strength” was clarified, and the characterization model of interfacial bonding strength was described from the perspective of fracture mechanics. According to the loadings, the current commonly used evaluation methods were divided into static loading methods (including tensile test, peeling test, scratch test, pressing test, bubbling test, bending test, etc.) and dynamic loading methods (reciprocating scratch test, impact test, cyclic indentation test, contact fatigue test, etc.). The basic principles, technical characteristics, and mechanical models of evaluation methods were systematically reviewed. The advantages, disadvantages and applicable fields of different evaluation methods were induced. Furthermore, the applicable coating material system and coating thickness range were summarized. The research status of evaluation methods for interfacial bonding strength of film/coating materials was reviewed. Among the static evaluation methods, scratch test and surface indentation test were still the most commonly used methods due to the advantages of simple test, less time consuming, no special treatment for samples, and available professional commercial equipment. Compared with the static evaluation methods, the interfacial bonding strength characterized by dynamic evaluation methods was more close to the service conditions, and provided more accurate prediction for the failure of film/coating materials. Among the dynamic evaluation methods, rolling contact fatigue test and cyclic indentation test had the advantages of sensitivity to interface factors, quantification and dynamic monitoring, showing a good application prospect in the evaluation of interfacial bonding strength. Finally, the development directions of interfacial bond strength evaluation methods were prospected. In the future, more efficient and accurate evaluation methods will be developed, unified evaluation criteria and characterization parameters will be constructed, and a complete interface safety and failure evaluation system will be established. The work provides reference for the reasonable and accurate evaluation of the interface bonding strength, and expands the breadth and depth of application of film/coating materials in new fields and directions.

KEY WORDS: film; coating; interface; bonding strength; evaluation methods

薄膜/涂层材料界面结合性能的评价涉及材料、力学、物理等多个交叉领域，失效问题的复杂性和失效形式的多样性使得界面结合性能评价成为学术界和工程界公认的难点问题。特别是近年来，表面技术和工艺的不断升级革新，催生了大批复杂的材料体系和界面结构，加剧了界面结合性能评价的困难性。薄膜/涂层材料界面结合性能的表征是表面科学与工程领域的重要组成部分，亦是界面失效分析与预防的基础。

由于材料和工艺的不同，薄膜/涂层的附着形式主要分为机械结合、扩散结合、冶金结合等，附着力主要有范德华力、化学键力和静电力等。材料间的界面结合包含着复杂的物理和化学过程，膜层从基体的剥离过程涉及大量弹塑性变形和材料断裂带来的能耗等问题，因此难以通过某一表征方法获取的简单物理量对界面结合强度进行准确描述。一种理想的结合强度表征方法应满足以下几点要求^[1-3]：易产生有效的薄膜/涂层与基体分离，即失效发生在界面；力学

模型简单，能准确获得与界面直接相关的力学参量；符合实际工况。迄今，针对不同的材料体系，已报道的界面结合性能评价方法就多达数百种^[3]，衍生出的理论模型更是不胜枚举。

文中综述了薄膜/涂层材料界面结合强度评价方法，并将评价方法归纳为静态评价方法和动态评价方法两大类进行阐述。静态评价方法指通过单次加载的方式来测定膜基界面结合强度，主要包括拉伸法、剥离法、划痕法、压入法、鼓泡法、弯曲法等。动态评价方法则是采用周期性循环加载的方式来测定膜基结合强度，主要包括往复划痕法、冲击法、循环压入法、接触疲劳法等。通过对膜基界面结合强度评价方法的基本原理、技术特点、力学模型和适用范围进行系统梳理，以期为薄膜/涂层材料的设计开发和界面的优化调控提供参考。

1 界面结合强度物理意义

在热动力学上，把界面上原子或分子间作用力的合力定义为界面结合性能，即所谓的“本征结合强度”（Intrinsic work of adhesion）。在宏观力学上，将膜层从基体分离所需的力或能量称为界面结合性能，即“实际结合强度”（Practical work of adhesion）^[4]。对于“本征结合强度”可采用分子动力学理论进行计算，将膜基界面假设为理想状态界面，界面上的原子或分子规则排列，不存在任何缺陷，且断裂完全发生在2种材料的界面上，显然这与实际情况不符。此外，界面结合强度的测试主要通过施加外载或是能量的方式，使膜层从基体上剥离出来，但在剥离过程中，裂纹尖端的局部区域会发生塑性变形。特别是当界面一侧为韧性材料时，界面裂纹扩展所需能量将大幅度提高，因而难以从中提取到本征结合强度。即通常测得的结合强度为“实际结合强度”，其与“本征结合强度”之间往往存在数量级的差别。

在断裂力学上，通常采用应变能释放率或裂纹驱动力来表征实际结合性能。当应变能释放率或裂纹驱动力大于裂纹扩展阻力时，界面裂纹开始扩展，见式（1）。

$$G \geq R \quad (1)$$

式中： G 为应变能释放率，J/m²； R 为裂纹扩展阻力，J/m²。

就膜/基体系而言，裂纹扩展阻力或界面断裂韧性 $\Gamma_{(\psi)}^i$ 是一个与裂纹尖端应力混合度相角 ψ 相关的参量，见式（2）。

$$G = -[\partial U / \partial A] \geq \Gamma_{(\psi)}^i = R \quad (2)$$

式中： U 为系统总能量，J； A 为裂纹面积，m²。

在界面裂纹扩展过程中，能量的耗散取决于混合度相角 ψ 的大小。其中， ψ 是裂纹尖端关于剪切应力和张应力的函数，可表示为式（3）。

$$\psi = \arctan(\tau/\sigma) = \arctan(K_{\text{II}}/K_{\text{I}}) \quad (3)$$

式中： τ 为剪切应力，MPa； σ 为张应力，MPa； K_{I} 为 I 型应力强度因子，MPa·m^{0.5}； K_{II} 为 II 型应力强度因子，MPa·m^{0.5}。

能量耗散与混合度相角之间的关系如图 1 所示。在 II 型开裂模式下，能量耗散远高于 I 型，这主要是由裂纹尖端局部塑性变形和摩擦能耗所致。

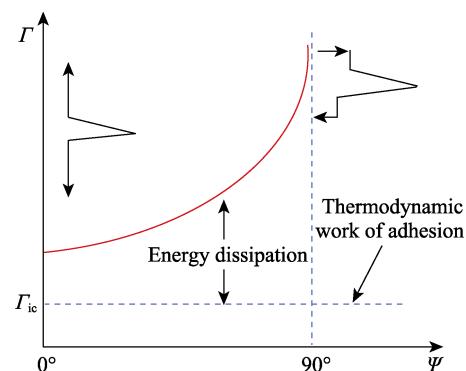


图 1 能量耗散与混合度相角之间的关系^[4]
Fig.1 Relationship between energy dissipation and mixing degree phase angle^[4]

由于薄膜和基体之间材料参数的不匹配性，界面裂纹尖端应力状态通常极为复杂，因此界面裂纹常以 I 型、II 型的混合模式扩展。针对膜基体系的界面断裂问题提出了复合应力强度因子的概念，见式（4）。

$$K = (K_{\text{I}} + iK_{\text{II}}) = \left(\frac{P}{\sqrt{h}} - i \frac{M}{h^{3/2}} \right) \frac{p}{\sqrt{2}} h^{i\varepsilon} e^{iw} \quad (4)$$

式中： P 为载荷，N； h 为膜厚，μm； M 为弯矩，N·m； p 、 ε 为常数； w 为实角函数。其中，常数 p 和 ε 可通过式（5）—（6）计算得出。

$$p = \sqrt{(1-\alpha)/(1-\beta^2)} \quad (5)$$

$$\varepsilon = (1/2\pi) \ln[(1-\beta)/(1+\beta)] \quad (6)$$

式中： α 、 β 为平面应变条件下的 Dundurs 常数，可用式（7）—（8）表示。

$$\alpha = \frac{(\mu_1/\mu_2)(1-v_2)-(1-v_1)}{(\mu_1/\mu_2)(1-v_2)+(1-v_1)} \quad (7)$$

$$\beta = \frac{(\mu_1/\mu_2)(1-2v_2)-(1-2v_1)}{(\mu_1/\mu_2)(1-v_2)+(1-v_1)} \quad (8)$$

式中： μ 为剪切模量，GPa； v 为泊松比，下角标 1 和 2 代表 2 种材料。

联立以上公式，可得混合度相角 ψ 表达式，见式（9）。

$$\psi = \arctan \left[\frac{Ph \sin \omega - 2\sqrt{3} \cos \omega}{Ph \cos \omega + 2\sqrt{3} \sin \omega} \right] \quad (9)$$

除混合度相角外，裂纹扩展的路径还取决于薄膜和基体的弹性失配度、残余应力等。当膜基结合性能较低时，界面裂纹更易沿膜基界面扩展；相反，当膜基结合性能较高时，界面裂纹更易在薄膜或者基体内部扩展。

2 静态评价方法

目前, 膜基结合强度的评价方法包括拉伸法、剥离法、划痕法、压入法、鼓泡法、弯曲法等。此类方法均采用单次加载的方式促使膜基界面发生失效, 通过失效时所施加的力或应力(临界载荷或临界应力)来表征膜基界面的结合强度, 故又称之为静态评价方法。

2.1 拉伸法

拉伸法按照加载方式可分为垂直拉伸法和横向拉伸法, 其中垂直拉伸法按试样形状又可分为对称和非对称两类, 如图 2 所示。垂直拉伸法测试原理在于, 沿垂直于膜/基界面的方向施加载荷, 使膜层从基体表面剥离, 将膜层剥离时的临界拉伸应力用于表征界面结合强度。该方法的优点是能简单、快速且直观地反映出界面结合强度, 但同样存在一定局限性: 施加的载荷中不能包含剪切分量; 黏结或焊接过程不能对材料的性能产生影响; 无法保证黏结层或焊接层的厚度均匀; 所测得的最大结合强度受粘结强度的限制, 倘若界面结合强度高于粘结强度, 黏结层将先于膜基界面断裂, 无法获得界面结合强度。Sun 等^[5]采用有限元数值模拟的方法建立了薄膜从基体剥离的三维非线性几何模型, 并且发现在薄膜剥离前端附近存在明显的三维边缘效应, 界面应变能释放率随薄膜剥离前端宽度而变化。

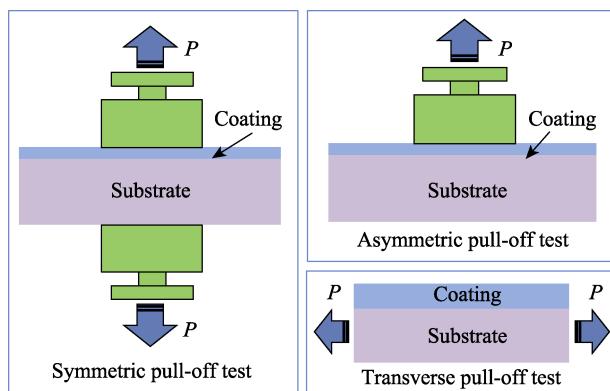


图 2 拉伸法示意

Fig.2 Schematic diagram of pull-off test

横向拉伸法是在垂直拉伸法基础上发展而来的一种改良方法, 其加载方向与界面方向平行。在界面剪切应力作用下, 膜层从基体剥离, 采用单位面积上所能承受的最大剪切应力作为界面结合强度的评价指标。Argawal 等^[6]基于横向拉伸法给出了陶瓷/金属界面剪切强度的表达式, 见式(10)。

$$\tau = \frac{\pi \sigma \delta}{\lambda} \quad (10)$$

式中: τ 为界面剪切强度, GPa; σ 为薄膜拉伸强度, GPa; δ 为裂纹深度, nm; λ 为裂纹间最大距离, nm。

横向拉伸法利用材料自身开裂属性来计算膜/基界面的剪切强度, 适用于脆性薄膜/韧性基体。此外, 对于结合强度较高的薄膜/涂层材料, 横向拉伸法难以造成界面失效; 测试结果常涉及弹塑性变形理论, 难以准确构建评价模型。

2.2 剥离法

剥离法是在沿膜层一端与膜/基界面呈 φ 夹角的方向上施加剥离载荷, 在剥离载荷的撕裂作用下, 薄膜从基体上剥离, 如图 3 所示。一般采用剥离角 φ 为 90° 时, 单位宽度薄膜的临界载荷来表征界面剥离强度。在早期研究中, 剥离法大多将膜层和基体视为弹性材料, 后来发现韧性薄膜在剥离过程中, 其裂纹尖端处会发生塑性变形, 塑性变形所产生的能量耗散将使临界剥落载荷增大。Wei 等^[7]根据能量守恒定律给出了稳态条件下剥离载荷与界面结合能之间的关系, 见式(11) — (12)。

弹性剥离条件下:

$$P(1 - \cos \varphi) = \Gamma_0 \quad (11)$$

弹塑性剥离条件下:

$$P(1 - \cos \varphi) = \Gamma_0 + \Gamma_p \quad (12)$$

式中: P 为剥离载荷, N; Γ_0 为界面结合能, J; Γ_p 为塑性能耗, J。

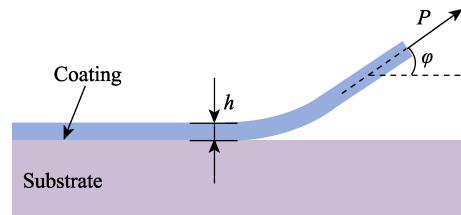


图 3 剥离法示意

Fig.3 Schematic diagram of peeling test

Song 等^[8]构建了跨尺度力学模型, 用于描述纳米和微米尺寸下薄膜从陶瓷基体表面剥离时的界面断裂行为, 并且模型中考虑了应变梯度效应和界面/表面效应。结果显示, 当断裂区域处于纳米尺度范围时需特别注意界面效应带来的影响, 此时获得的界面断裂能量也高于常规方法。Adjeloua 等^[9]采用二维弹塑性有限元模型进行计算发现, 薄膜剥离过程因受到剥离角的影响, 往往呈 I 型和 II 型混合断裂模式, 并且与薄膜残余应力相关。剥离法适用于韧性薄膜材料结合性能评价, 但结果会受到薄膜厚度、变形量、剥离速度和剥离角度等因素的影响, 并且计算过程十分复杂, 因此适用程度有限。

2.3 划痕法

划痕法起源于 20 世纪 30 年代, 金刚石针尖以某一速度从膜层表面划过, 同时不断增加施加在针尖上的载荷, 直至膜层剥离, 将剥离时的临界载荷 L_c 定

义为界面结合力。划痕法载荷增加的方式包括步进式和连续式，确定临界载荷的常用方法有显微观察法、声发射法、摩擦力法等。划痕法力学模型复杂，膜层剥落时的临界剪切应力 τ 可表示为式(13)^[10]。

$$\tau = \frac{KAH}{(R^2 - A^2)^{1/2}} \quad (13)$$

式中： K 为常数，取值为 0.2~0.3； A 为接触区半径， μm ， $A = \left(\frac{L_c}{\pi H}\right)^{1/2}$ ； H 为基体硬度，GPa； R 为划针半径， μm 。

由于式(13)基于全塑性压痕理论推导得来，因此适用范围非常有限。后来有学者采用弹塑性理论对该公式进行了修正，并提出采用膜层剥落时释放的应变能来表征界面结合性能，见式(14)~(15)^[11]。

$$W = \frac{1}{2} \frac{\sigma_c^2 h}{E_c} \quad (14)$$

$$\sigma_c = \frac{P}{2\pi a^2} \left\{ (4 + v_c) \frac{3\pi f}{8} - (1 - 2v_c) \right\} \quad (15)$$

式中： W 为界面结合能，J； σ_c 为薄膜应力，GPa； h 为膜层厚度， μm ； E_c 为薄膜弹性模量，GPa； P 为载荷，N； a 为接触半径， μm ； v_c 为薄膜的泊松比； f 为摩擦因数。

根据式(5)可知，界面结合性能将随膜层厚度的增加而增大，这显然与实际情况不符。

划擦过程是一个包含膜层和基底材料弹塑性变形的复杂响应过程。Holmberg 等^[12]研究指出，划痕测试造成膜层破坏的应力场极为复杂，除弹塑性应力场外还包含内应力、弯曲应力和摩擦力等，由此造成的膜层失效形式多样化。Bull 等^[10]以膜层和基体的硬度作为变量发现，膜层的划擦失效形式可分为塑性变形、膜层开裂、界面失效和整体失效等，并由此构建了划擦失效机制(图4)。对于不同的膜基体系，既可能只存在单一失效方式，也可能是多种失效方式并存，然而并非所有的失效方式都与界面结合性能相关，膜层的开裂和碎裂往往先于界面剥落发生^[7]。此外，划痕法的复杂性同样体现在结果的分散性上，VAMAS 项目曾对划痕法进行了系统研究，其中包括

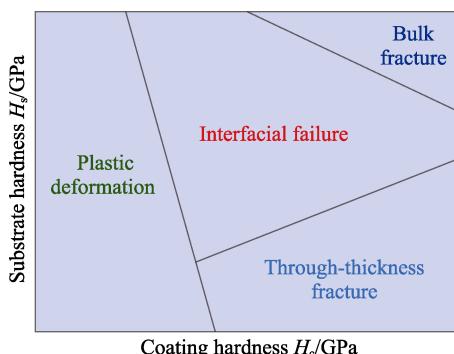


图4 划痕法薄膜失效机制^[10]
Fig.4 Scratch failure mechanism^[10]

采用多种工艺来大范围地调整界面结构，用以改变结合状态，但最终测试结果极为混乱，失效原因也难以澄清^[13]。

划痕法获得的临界载荷除与界面结合性能相关外，还受到诸多非界面因素的影响，主要分为2类：试验参数，包括加载速率、划痕速度、压头半径、压头尖端磨损等，Zawischa 等^[14]基于划痕法对 a-C 和 ta-C 薄膜的划擦行为进行研究发现，通过选择针尖尺寸可有效预测和改变薄膜的失效方式；材料力学特性，包括膜层/基体硬度、膜层厚度和表面粗糙度等，Lu 等^[15]对硬质合金表面 CVD 金刚石薄膜进行研究发现，采用划痕法获得的界面结合强度与薄膜厚度呈近似线性正相关，即随着薄膜厚度的增加而增大。由此可见，划痕法测得的临界载荷物理意义并不明确，甚至有学者认为 L_c 与界面结合性能无确定关系，只是膜基体系承载能力的体现。尽管如此，划痕法具有测试简单、耗时少、试样无需特殊处理，且有专业商用化设备可供使用等优点，是目前应用最为广泛的结合性能测试方法。

2.4 压入法

根据压入位置的不同，压入法可分为表面压入法、截面压入法和界面压入法。早期德国将洛氏硬度计(120°金刚石圆锥压头)压入测试用于膜基结合强度的评价，并于1991年成为德国工程师手册中的标准之一(VDI 3198)。该方法采用洛氏硬度计加载($F=1471\text{ N}$)，卸载后利用100倍光学显微镜观察压痕形貌，将获取的膜层破坏形式与结合强度质量标准进行对比，HF1—HF4 表示结合强度良好，HF5 和 HF6 则表示结合强度欠佳(HF 为德语结合强度的缩写)。由于压入载荷固定，无法准确获取薄膜剥落时的临界载荷，外加质量标准划分笼统，因此只用作薄膜结合强度的定性表征。目前，不少学者尝试将表面压入法与声发射技术相结合，以期建立涂层开裂或是剥落时临界压入载荷与涂层结合强度之间的内在联系。Song 等^[16]通过对 Al_2O_3 、 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ 和 FeCrBSi 等3种不同结合强度涂层进行表面压入测试，分析提取测试过程中声发射信号幅度和能量的分布特征，并结合压痕处的表面和截面微观形貌发现，涂层发生界面失效时会产生明显的声信号跳跃突变，说明声信号探测技术可用于涂层界面失效判断。由于研究中引入了表面粗糙度、涂层厚度、压头形状和压入载荷等因素，导致分析过程极为复杂，因此难以准确建立界面结合强度的评估模型。

在压入过程中，膜层和基体材料因受挤压作用向外扩张，达到一定载荷时，二者的协调变形条件遭到破坏，压痕周围出现开裂或是膜层脱落现象。当加载至一定载荷时，膜层的剥落半径与载荷呈近似线性关系，斜率 k 与界面结合强度(界面韧性 G_I)存在特定联

系, 从而建立了二者间的半经验关系, 见式(16) — (17)。

$$k = (A \times G_1)^{-1} \quad (16)$$

$$K_1 = \left(\frac{G_1 E_c}{1 - \nu_c^2} \right)^{1/2} \quad (17)$$

式中: A 为常数; K_1 为界面裂纹扩展应力强度因子, MPa·m^{1/2}; E_c 为薄膜弹性模量, GPa; ν_c 为薄膜的泊松比。

上述经验公式试图从界面裂纹扩展阻力的角度来评价界面结合性能, 虽在一定程度上揭示了界面结合性能的基本特征, 但其并非建立在严格意义上的界面断裂力学基础之上, 经验公式中也仅包含膜层材料的性能参量, 这显然与实际情况不符。

Drori 等^[17]基于圆锥压头法对脆性膜层/韧性基体界面结合性能进行了研究, 给出了界面裂纹扩展应变能释放率 G 的表达式, 见式(18)。

$$\frac{G}{E_c t / (1 - \nu_c)} = \frac{1}{2(1 + \nu_c)} (\varepsilon_{rr} + \nu_c \varepsilon_{\theta\theta})^2 \quad (18)$$

式中: ε_{rr} 为表面径向总应变, $\varepsilon_{rr} = \varepsilon_r + \varepsilon_0$; $\varepsilon_{\theta\theta}$ 为环向总应变, $\varepsilon_{\theta\theta} = \varepsilon_\theta + \varepsilon_0$; ε_r 为压入时在薄膜表面产生的径向应变; ε_θ 为压入时在薄膜表面产生的环向应变; ε_0 为薄膜中的残余应变。

借助该模型评价薄膜结合强度的关键之处是如何获得表面的应变分布状态, 由于膜基体系压入过程的边界条件较复杂, 因而难以建立准确的解析公式来描述表面应变分布情况。Zhang 等^[18]通过分级多次回归算法给出了表面应变分布的数值函数模型, 实现了采用圆锥压头对界面结合性能的工程化定量表征和评价。表面压入法具有操作简单, 可在实际工件上进行无损检测等优点, 成为了目前应用较为广泛的评价方法之一。表面压入法对具有结合强度较高或薄膜硬度较低的膜基体系存在一定局限性。另外, 由于压头附近应力状态十分复杂, 因此也难以精确计算出真实应力。

Sánchez 等^[19]将三棱锥压头压入基体横截面上, 基体断裂部分在压头的推动作用下, SiN 薄膜发生翘曲, 产生近似半圆形的薄膜剥落区, 如图 5 所示。进一步通过弹性板理论模型计算得出裂纹临界能量释放率 G 的表达式, 见式(19) — (20)。

$$G = \frac{D(1-\nu)2u_0^2}{(a-b)^4} (1-\lambda)^4 [2F(\lambda) + \lambda F'(\lambda)] \quad (19)$$

$$F(\lambda) = \frac{2 \ln \lambda + \frac{1+\lambda}{1-\lambda} \ln^2 \lambda}{[(1+\lambda) \ln \lambda + 2(1-\lambda)]^2} \quad (20)$$

式中: D 为薄膜的抗弯刚度; ν 为薄膜的泊松比; u_0 为薄膜的最大挠曲距离, nm; a 为剥离区域外半径, nm; b 为剥离区域内半径, nm; λ 为内外剥离半径的比值, $\lambda = a/b$; $F(\lambda)$ 为关于 λ 的函数, 并且有 $F'(\lambda) = \frac{dF(\lambda)}{d\lambda}$ 。

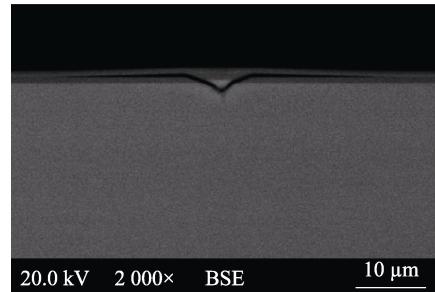


图 5 SiN 薄膜截面压入失效形貌
Fig.5 Failure morphology of SiN film for cross-sectional indentation test

Zhang 等^[20]将有限元数值模拟与基体横截面压入法相结合对 Al₂O₃/Al6061 体系进行研究发现, 侧向力对涂层的剥落过程十分敏感, 剥落时侧向力会发生突变, 可用于界面结合强度的定量表征。张凯亮等^[21]系统研究了压头形状、压入点距离和涂层厚度等因素的影响, 推荐采用横截面压入法, 圆锥压头为 90°, 压入距离与涂层厚度之比为 2~3。

Chicot 等^[22]将金刚石棱锥压头在薄膜和基体界面处压入, 促使界面开裂, 通过界面裂纹的扩展行为来评价界面结合性能。根据断裂力学模型, 界面裂纹的应力强度因子 K 的表达见式(21) — (22)。

$$K = 0.015 \frac{P}{a^{3/2}} \left(\frac{E}{H} \right)^{1/2} \quad (21)$$

$$\left(\frac{E}{H} \right)_i^{1/2} = \frac{\left(\frac{E}{H} \right)_s^{1/2}}{\left[1 + \left(\frac{H_s}{H_c} \right) \right]} + \frac{\left(\frac{E}{H} \right)_c^{1/2}}{\left[1 + \left(\frac{H_c}{H_s} \right) \right]} \quad (22)$$

式中: P 为压入载荷, N; a 为界面裂纹长度, nm; E 为弹性模量, GPa; H 为硬度, GPa; 下标 i、s、c 分别代表界面、基体和薄膜。

对于纳米级甚至微米级的薄膜, 采用界面压入法难以精确至界面位置, 无法有效表征膜基结合性能。对于韧性膜层, 由于塑性变形会产生能耗, 不易在界面处产生裂纹, 故难以有效测量界面结合性能。对于脆性薄膜, 膜层可能先于界面开裂, 同样会对测试结果造成影响。

2.5 鼓泡法

鼓泡法的测试原理是借助光刻、腐蚀等微加工技术在基体上预制通孔, 然后再将薄膜沉积至基体上, 利用加载杆顶入通孔, 或利用气压/液压对薄膜施加载荷, 使薄膜发生挠曲, 促使裂纹在预制孔边缘萌生, 并沿膜基界面扩展, 最终造成薄膜的剥落。通常采用弹性板理论对鼓泡法产生的界面裂纹进行断裂力学分析, 得到以下界面裂纹能量释放率 G 的表达式^[23]。

小挠度变形:

$$\text{点载荷: } G = \frac{Pw_0}{2\pi R^2}, \quad w_0 = P \frac{3(1-\nu^2)R^4}{4\pi Eh^3} \quad (23)$$

$$\text{面载荷: } G = \frac{Pw_0}{2}, \quad w_0 = P \frac{3(1-\nu^2)R^4}{16Eh^3} \quad (24)$$

大挠度变形:

$$G = \frac{6(1-\nu^2)}{Eh^3} \left(M^2 + \frac{h^2 N^2}{12} \right) \quad (25)$$

$$M = \frac{h^3 \sqrt{EhP^2 a^2}}{4\sqrt{3(1-\nu^2)}\gamma} \quad (26)$$

$$N = \sqrt[3]{EhP^2 a^2 \gamma} \quad (27)$$

式中: P 为点载荷或面载荷, w_0 为薄膜中心挠度, nm; R 为薄膜剥离半径, nm; h 为膜厚, nm; ν 为薄膜泊松比; E 为薄膜弹性模量, GPa, $\bar{E} = \frac{E}{1-\nu^2}$; M 为薄膜弯矩, N·m; N 为薄膜中的应力, GPa; γ 为边界 $r=a$ 处无量纲应力函数 $\bar{\gamma}$ 的值, $\bar{\gamma}$ 是无量纲非线性卡曼方程在薄膜厚度 $\bar{\gamma} \rightarrow 0$ 时的应力函数解。

混合度相角 ψ 的表达式为见式 (28)。

$$\psi = \arctan \frac{1+2\gamma^{3/2}\sqrt{1-\nu^2} \tan \omega}{-\tan \omega + 2\gamma^{3/2}\sqrt{1-\nu^2}} \quad (28)$$

式中: ω 的值通过 Dundurs 常数 α 和 β 确定^[24]。

鼓泡法不仅适用于脆性膜层/韧性基体, 同样也适用于韧性膜层/韧性基体。由于样品制备工艺较复杂, 需要运用光刻、腐蚀等微加工技术来预制通孔, 应用范围也受到了极大限制。鼓泡法大多仅考虑了弹性变形, 尚无完善的理论模型适用于塑性变形阶段。Zhang 等^[25-26]在鼓泡法的基础上提出了微桥法(图 6), 并建立了界面断裂韧性理论模型和计算方法, 可有效用于韧性膜层/韧性基体材料体系界面结合性能的评价及表征。张晓民等^[27]采用高分辨扫描电镜, 进一步对基体裂纹到达止裂孔后的裂纹张开量进行测试, 构建了薄膜应变和断裂韧性计算模型, 实现了微桥法的标准化测试。

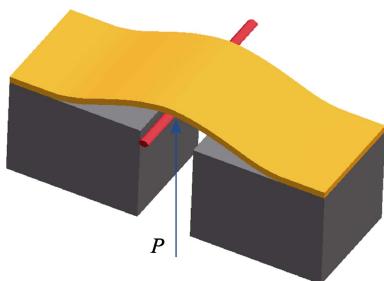


图 6 微桥法

Fig.6 Schematic diagram of micro-bridge method

2.6 弯曲法

弯曲法常见的有三点弯曲法(图 7)和四点弯曲法(图 8)。采用三点弯曲进行测试, 当试样沿着界面发生断裂时, 界面断裂韧性 K 可通过式(29)获得。界面裂纹能量释放率 G 的表达式见式(30)。

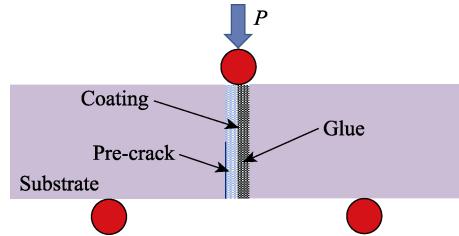


图 7 三点弯曲法
Fig.7 Three-point bending test

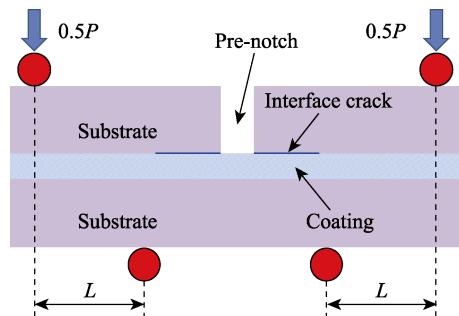


图 8 四点弯曲法
Fig.8 Four-point bending test

$$K = \frac{P_c L}{B \omega^{3/2}} (1+\alpha) Y(\alpha/\omega) \quad (29)$$

$$G = E \frac{(1-\beta^2) K_c^2}{E^*} \quad (30)$$

式中: P_c 为断裂时的临界载荷, N; L 为抗弯刚度, N/m; B 为试样宽度, nm; ω 为试样高度, nm; α 为 Dundurs 常数; $Y(a/\omega)$ 为预制裂纹长度 a 与试样高度 ω 的比值函数。

三点弯曲法的局限性在于它只适用于弱界面体系, 当膜基界面结合强度高于黏结剂的黏结强度时, 该方法不能有效测得界面结合性能。此外, 三点弯曲法测得数据的离散性较大, 通常需要进行大量试验并借助 Weibull 统计理论对数据进行分析处理。Liu 等^[28]基于三点弯曲法获得的载荷-位移曲线关系构建了陶瓷涂层体系定量损伤模型, 同时发现涂层的损伤程度与厚度相关, 涂层较薄时以拉伸断裂为主, 损伤形式主要为横向裂纹; 涂层较厚时以界面剪切破坏为主, 损伤形式主要为涂层剥落。Ren 等^[29]分别采用三点弯曲法和剥离法对 Ti 基体表面电镀 Ni 涂层进行了研究, 结果显示, 基于 2 种测试方法获得的界面性能相近, 随着 Ti 基体表面粗糙度的增加界面结合强度增大, 并且与 Ni 涂层的厚度无关。

采用四点弯曲法测试时, 预制缺口处会产生应力集中, 当其达到某一临界值时, 裂纹萌生并扩展至膜基界面上, 最终导致膜层与基体分离。利用弹性板理论对界面裂纹扩展行为进行分析, 将膜层剥离的过程视为板挠曲, 临界能量释放率 G 的计算见式(31)。

$$G = \frac{21P^2 L^2}{16E_s h_s^3 B} \quad (31)$$

式中: $0.5P$ 为断裂时每个加载点上施加的力, N; L 为内、外加载点之间的距离, nm; E_s 为基体的弹性模量, GPa; h_s 为基体的厚度, nm; B 为试样宽度, nm。

四点弯曲法试样具有“三明治”结构, 即最上层和最下层为形状和材料相同的基底, 中间为 1 层或是 2 层的薄膜, 薄膜厚度远小于基底厚度。采用微加工技术先在试样的对称中心位置预制缺口, 裸露出膜/基界面。试样的中间层采用热扩散或黏结的方法结合在一起, 其中热扩散法适用于扩散能力较好的材料, 而对其他扩散能力不强的材料, 热扩散法不大适用。使用黏结法时, 四点弯曲法的适用范围受到黏结剂黏

结强度的约束, 当界面结合性能高于黏结强度时, 无法产生界面裂纹。由于“三明治”结构试样的制备工艺复杂, 因此使得四点弯曲法的应用范围受到了极大限制。ZHAO 等^[30]提出了一种改进型四点弯曲法(如图 9 所示), 通过对 Q235 钢表面 YSZ 涂层研究发现, 改进后的四点弯曲法可在界面处形成单一裂纹, 并且裂纹扩展路径可控, 裂纹的萌生和稳态扩展使载荷-位移曲线呈现出 3 个不同阶段。测试获得的界面断裂强度与解析模型一致, 表明该方法可有效评估界面强度。将界面评价方法的主要特点进行了归纳总结, 见表 1。

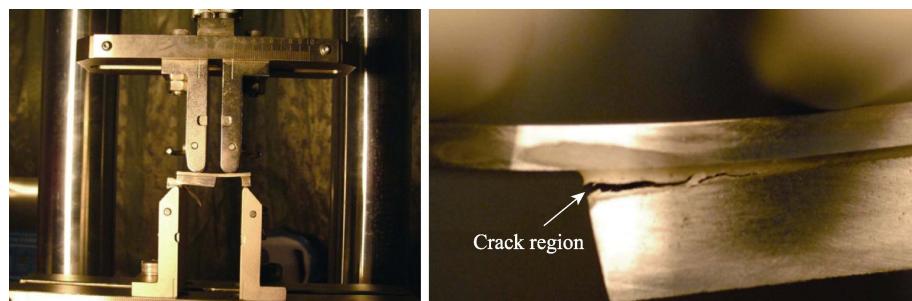


图 9 改进型四点弯曲法^[30]
Fig.9 Photographic illustration of the modified four-point bending method^[30]

表 1 界面结合强度评价方法的特点
Tab.1 Characteristics of interfacial bonding strength evaluation methods

Category	Method	Advantages	Disadvantages	Application Fields
Static methods	Pull off	Simple; accurate	Restricted by glue; samples need special preparation	Spray coating
	Peeling	Simple; intuitive	Accuracy affected by test parameters; calculation is complicated	PVD\CVD film; electrodeposited coatings
	Scratch	Commercial technology; less time consuming, intuitive; simple; no special treatment is required	Accuracy affected by material properties and test parameters	PVD\CVD film; electrodeposited coatings
	Indentation	Simple, intuitive	Severe plastic deformation; failure stress field is complex; not suitable for high bonding strength film	PVD\CVD film; spray coating
	Blister	Accurate; intuitive	Sample preparation is complicated; calculation is difficult	PVD film; electrodeposited coatings
	Bending	Accurate; intuitive	Restricted by glue; sample preparation is complicated; calculation is difficult	Spray coating; electrodeposited coatings
Dynamic methods	Multi-pass scratch	Commercial equipment; simple operation; no special treatment is required	Accuracy affected by material properties and test parameters	PVD\CVD film
	Impact	Accurate; close to reality	Impact wear; failure mode is complex	PVD\CVD film; spray coating
	Cyclic indentation	Accurate; close to reality; sensitive to interface factors	Calculation is difficult	PVD\CVD film;
	Rolling contact fatigue	Accurate; close to reality; sensitive to interface factors	Time consuming	PVD\CVD film; spray coating

3 动态评价方法

静态结合强度评价方法的测试原理均属于单次加载破坏。在实际工况下，绝大多数薄膜/涂层材料在动态、持续的承载环境中服役，膜层剥落由长时间

累积的疲劳损伤所致，因此采用动态加载的方式来评价界面结合强度更为贴近服役工况，能更加有效地为薄膜/涂层的结构设计和工艺优化提供参考。对界面结合强度评价方法所适用的薄膜/涂层材料体系进行了总结，见表 2。

表 2 评价方法适用的薄膜/涂层材料体系
Tab.2 Film/coating material systems applicable to the evaluation methods

Category	Method	Material properties	Film/coating thickness range	Interface strength
Static methods	Pull off	Brittle film (coating)/brittle and ductile substrate	Few microns to few millimeters	Low
	Peeling	Ductile film (coating)/brittle and ductile substrate	Few microns to tens of microns	Low
	Scratch	Brittle and ductile film (coating)/brittle and ductile substrate	Few hundred nanometers to tens of microns	High
	Indentation	Brittle film (coating)/brittle and ductile substrate	Few hundred nanometers to tens of microns	High
	Blister	Brittle and ductile film (coating)/ductile substrate	Few microns to tens of microns	High
	Bending	Brittle and ductile film (coating)/ductile substrate	Few microns to few hundred microns	Low
Dynamic methods	Multi-pass scratch	Brittle and ductile film (coating)/brittle and ductile substrate	Few hundred nanometers to few microns	Low
	Impact	Brittle film (coating)/brittle and ductile substrate	Few microns to tens of microns	High
	Cyclic indentation	Brittle film (coating)/brittle and ductile substrate	Few microns to tens of microns	High
	Rolling contact fatigue	Brittle film (coating)/brittle substrate	Few microns to few hundred microns	Low

3.1 往复划痕法

在较小的划擦载荷下，金刚石划针持续、往复作用于薄膜表面，膜基体系中的材料损伤不断累积加剧，当达到临界破坏周次时，薄膜将发生碎裂或剥落。通常情况下，采用多次划擦法依据声波信号或摩擦力/摩擦因数的变化来确定临界破坏周次。Fallqvist 等^[31]基于薄膜的失效行为分析，建立了往复划痕失效机制（图 10），该机制图揭示了加载周次和载荷对划擦行为的影响，当延长循环周次或增大载荷时，膜基体系的失效方式由塑性变形，经局部剥落，最终转变成连续剥落。

Bull 等^[32]研究发现，往复划痕法对于划擦载荷、基体硬度和薄膜厚度等外加因素具有强烈依赖性。划擦载荷不同，则薄膜失效所需临界周次变化规律不一：当膜厚增加或基体硬度升高时，使用小载荷加载，临界周次逐渐减少；采用大载荷加载，临界周次则逐步增加。Baran 等^[33]同样也指出，临界失效载荷随着薄膜/基体硬度、薄膜厚度的增加而增大。此外，Darbeida 等^[34]采用往复划痕法在对 PVD 硬铬涂层进行研究时发现，划擦过程中涂层会发生明显的三体磨损现象。由此来看，测试获得临界载荷的物理意义并

不十分明确，难以实现对膜/基结合强度的准确测定。

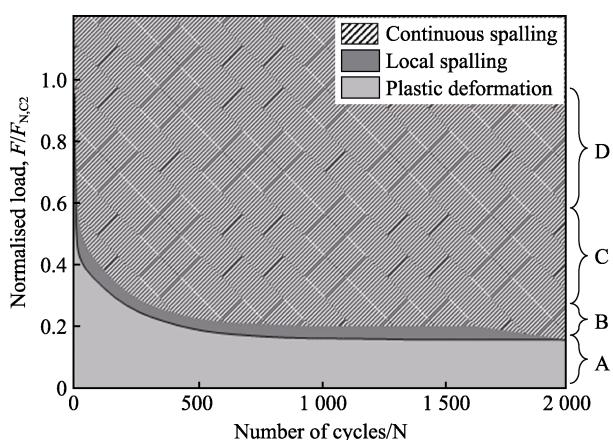
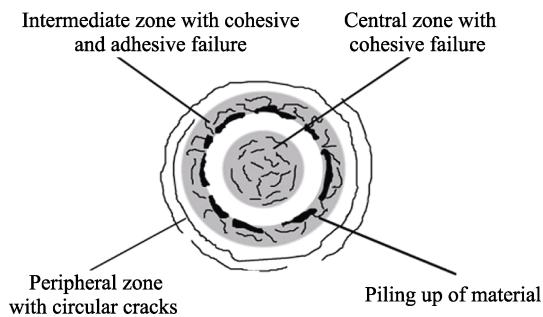


图 10 往复划擦薄膜失效机制^[31]
Fig.10 Failure mechanism of reciprocating scratch test^[31]

3.2 冲击法

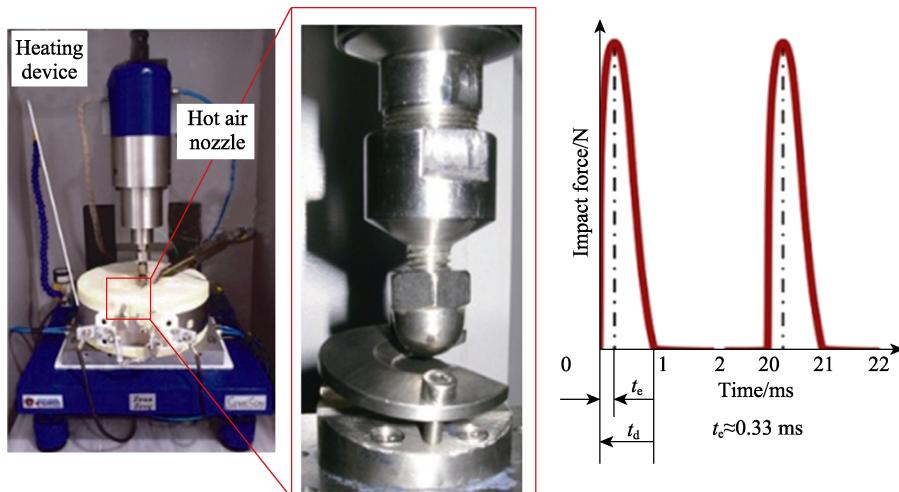
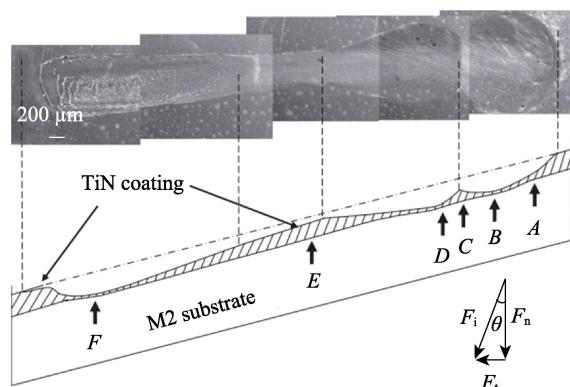
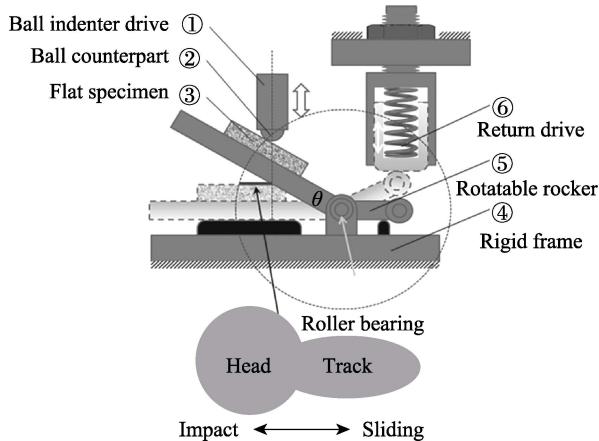
Knotek 等^[35]最早提出采用冲击法测试薄膜材料的抗冲击性能，其测试原理是，采用硬质合金球或钢球作为冲头，在电磁或液压的驱动下周期性冲击薄膜表面，达到一定循环周次后，薄膜发生疲劳失效。受

到冲击载荷中应力波的影响, 薄膜的失效形式往往呈现多样性, 包括冲击磨损、薄膜内聚型断裂和界面结合型剥落。冲击坑大致可分为 3 个区域: 中央为内聚型破坏区; 中间为内聚型和结合型混合失效区; 边缘为塑性隆起和环状裂纹区^[36], 如图 11 所示。

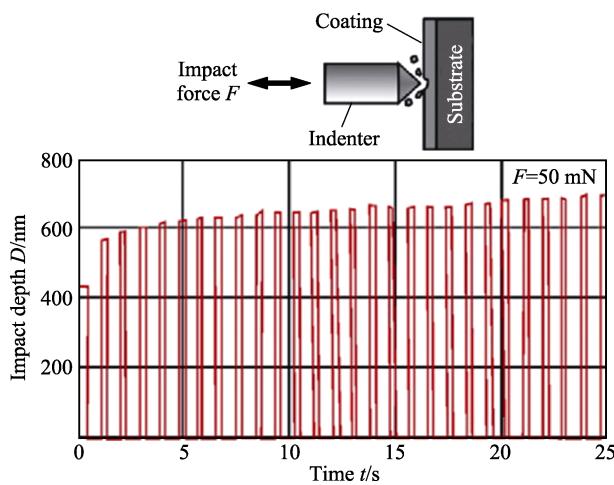
图 11 冲击失效形貌^[36]Fig.11 Schematic diagram of impact failure morphology^[36]

最早采用载荷与破坏周次 ($P-N$) 曲线来评价薄膜的抗冲击能力。由于临界载荷受到膜层厚度、基体材质等因素的影响, 因此表征结果常存在较大偏差。

通过等效应力和临界周次构建的 Smith 和 Woehler 失效判据, 虽对薄膜疲劳极限的预估取得了良好的效果, 但结果更倾向于对膜层力学属性的评价, 而非界面结合性能。针对界面结合性能的评价, Bouzakis 等^[37]提出了失效区面积比的概念, 虽在一定程度上可定性反映界面结合性能的差异, 但该方法对失效区的判定提出了极高要求, 同时难以有效评价附着力强的硬质薄膜, 因此存在较大的局限性。Zha 等^[38]采用冲击法对 TiAlN/TiSiN 多层薄膜的高频疲劳失效行为进行研究发现, 高频冲击下薄膜的失效过程包含多个阶段, 并出现多种类型裂纹; 相较于准静态加载条件, 在高频冲击下更易产生薄膜剥落。另有研究表明^[39], 在冲击载荷作用下, 膜层的剥落失效由界面剪切应力的作用所致。基于此, 国内外相继提出了倾斜冲击法^[40-43] (图 12)、倾斜冲击-滑移法^[44] (图 13) 等动态循环加载方法, 以期通过增大界面剪切应力的方式来提高薄膜剥落的概率。由于受到加载形式的影响, 此类方法加剧了膜层的磨损, 因此为界面失效的判定带来了一定挑战。

图 12 倾斜冲击法^[43]
Fig.12 Schematic diagram of inclined impact test^[43]图 13 倾斜冲击-滑移法^[44]
Fig.13 Schematic diagram of inclined impact-sliding test^[44]

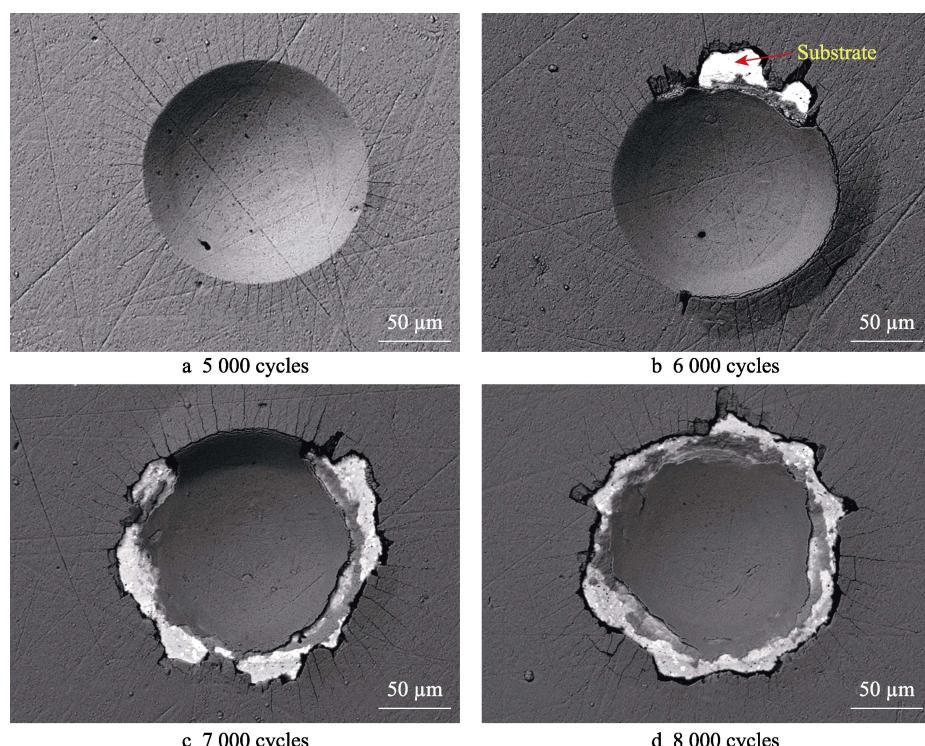
近年来,微冲法作为一种新型动态评价方式受到了极大的关注^[45-47],通过金刚石冲头以一定载荷不断冲击薄膜表面,测量冲击深度随加载周次的变化情况,以确定薄膜的失效形式(图14)。在膜基结合性能的评价上,当冲击深度发生突变时,即视为薄膜发生了剥落。在通常情况下,微冲法采用的冲击载荷仅有数十毫牛,单次冲击能量较低,且基本作用在薄膜内部,因此能较为准确地反映薄膜的裂纹萌生和扩展抗力,更适用于对薄膜韧性的评价。由此不难看出,微冲法对薄膜结合性能的评价受到薄膜厚度、韧性、加载等诸多因素的影响,同时对设备精度要求较高,因此适用范围极为有限。Beake等^[48]基于微冲法对

图 14 微冲法^[45]Fig. 14 Schematic diagram of micro-impact test^[45]

WC-Co 基体表面 TiAlCrN/NbN 纳米多层膜的冲击行为进行研究发现,小载荷冲击下的失效行为主要由薄膜主导,失效形式包括环状裂纹、径向裂纹和薄膜碎裂,但随着冲击载荷的增大应力场逐渐延伸至基体内部,失效形式逐步演化为由基体主导,基体内部碳化物出现了破碎现象。

3.3 循环压入法

针对冲击载荷下应力波带来的问题,Qiu等^[49-51]提出了循环压入法,在测试过程中保持压头与薄膜始终接触,以避免产生冲击载荷,进而最大限度地削弱应力波带来的影响。此外,循环压入法采用小载荷加载,有效降低了薄膜发生开裂失效的可能性。薄膜剥落过程呈现出明显的疲劳损伤特征,即随着加载周次的增加,剥落区面积逐渐扩大,如图15所示。在循环压入过程中,金属基体发生的塑性变形量较小,且随着加载过程的进行会快速趋于稳定,薄膜的剥落实际发生于宏观弹性接触环境。通过控制加载幅值可有效调节接触边缘附近膜基界面处的最大剪切应力幅值,可模拟多种加载环境下薄膜的剥落行为,并用于评价高结合强度薄膜界面性能。此外,该方法可有效辨别出界面预处理状态^[49]和残余应力^[51]对薄膜动态结合性能的影响。此外,借助数值模拟技术分析发现,在循环压入过程中造成薄膜剥落的主要力学参量为界面最大剪切应力幅值 $\Delta \tau_{\max}$,基于最大剪切应力幅值 $\Delta \tau_{\max}$ 和临界疲劳剥落周次 N 构建的评估模型可实现对界面动态结合强度的定量表征^[49]。

图 15 TiSiN 薄膜循环压入疲劳失效过程^[50]Fig. 15 Fatigue failure process of TiSiN coating under cyclic indentation test^[50]

近年来, 纳米压入技术逐步被用于微纳尺度薄膜材料的可靠性评估, 如断裂韧性^[52-54]、界面结合强度^[55]等。部分学者采用循环加载的方式研究薄膜材料的疲劳抗力, 如 Faisal 等^[56]针对“脆性基体/脆性薄膜”体系, 通过步进式循环加载的方式有效促进了界面失效的发生, 如图 16 所示。Raju 等^[57]就“脆性薄膜/韧性基体”体系研究指出, 小载荷循环加载产生的累积损伤更有利于薄膜的剥落, 且与加载-位移曲线中的突跳位置有密切关系; 界面失效的发生需薄膜在整个加载过程中始终具有较高的残余压应力; 对于具有高结合强度或低内应力的薄膜, 即便压入深度与膜厚相近, 最终也难以造成薄膜的剥落。在对膜基结合性能的评价上, 循环纳米纳入法虽然展现出了一定的应用潜质, 但仍存在诸多问题: 适用性不足; 对设备精度要求较高; 由于压头尺寸较小, 测试结果存在较大的分散性; 测试及评价标准不统一, 数据无法相互比较等。

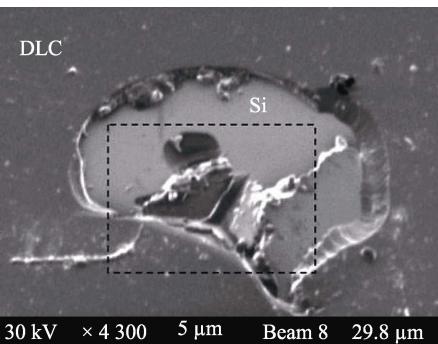


图 16 DLC 薄膜循环纳米压入失效形貌^[56]

Fig.16 Failure morphology of DLC film for cyclic nano indentation test^[56]

3.4 接触疲劳法

随着表面技术在齿轮、凸轮、轴承等传动件上的普及使用, 薄膜材料的接触疲劳失效行为受到了越来越多的关注。Chang 等^[58]研究发现, 薄膜材料可有效改变接触应力场, 减缓塑性变形的发生, 显著提升金属材料的接触疲劳寿命, 薄膜失效形式以界面剥落为主。Carvalho 等^[59]针对不同基体上薄膜的失效行为进行研究发现, 当基体硬度较低时, 裂纹垂直于薄膜表面扩展; 当基体硬度较高时, 裂纹在界面萌生, 平行于薄膜表面扩展。

He 等^[60-63]基于滚动接触疲劳失效机理进行研究, 先后提出了滚柱接触疲劳法(图 17)和钢球滚动接触疲劳法(图 18), 用以评价硬质薄膜动态结合性能。滚柱法原理在于, 在膜/基系统上施加压应力, 使膜/基系统在交变压应力作用下发生弹性变形, 经过一定循环周次后, 膜/基界面发生了剥落失效, 并由此建立疲劳失效 S-N 曲线。通过 Hertz 应力场理论计算, 界面剪切应力幅值在低摩擦环境下 ($f \leq 0.12$)

可用作膜/基界面结合强度的定量表征。以剥落面积达到接触面积的 5%作为失效判据, 定义经过 5×10^6 周次薄膜失效所对应的最大剪切应力幅值 $\Delta \tau_{\max}$ 为界面疲劳强度, 用其表征动态结合强度。研究进一步证实, 界面疲劳强度对基体硬度和薄膜厚度等非界面因素不敏感, 而对基体表面粗糙度、基体表面预处理和界面处化学成分等界面因素较敏感。

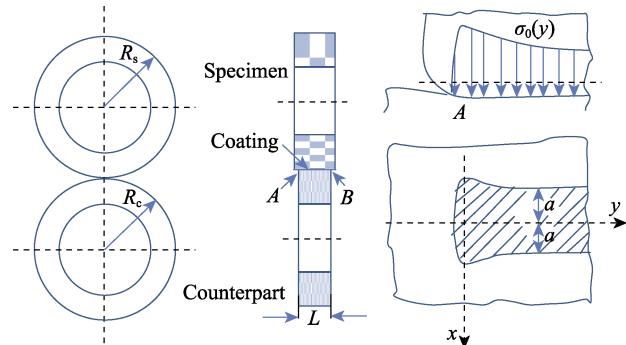


图 17 滚柱接触疲劳法^[63]
Fig.17 Schematic diagram of cylindrical rolling test^[63]

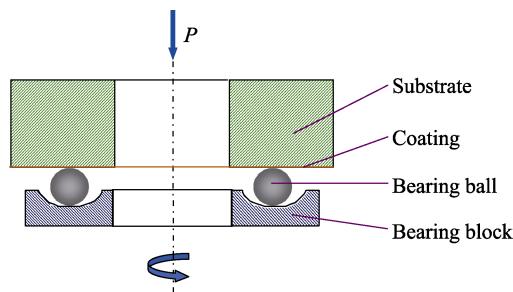


图 18 滚动接触疲劳法^[63]
Fig.18 Schematic diagram of rolling contact test^[63]

滚柱接触疲劳法存在一些不足: 测试周期较长, 为达到预定疲劳极限周次, 往往需花费数周时间; 适用范围有限, 只能测量圆柱面薄膜的膜/基结合强度, 对于直射式镀膜技术(如离子束增强沉积 IBED)的膜基结合性能评价存在一定困难; 应力计算模型复杂, 薄膜剥落起源于接触区域边缘, 而该区域存在明显的应力集中现象, 在一定程度上影响了评价结果的准确性。为了解决上述问题提出了钢球滚动接触疲劳法, 其优点在于, 通过“球-面”接触消除了应力集中现象, 力学模型简单; 选择合适机构, 有效缩短了测试周期; 考虑了材料属性差异对接触应力场的影响, 因此结果更加准确可靠。

在钢球滚动接触疲劳法中, 界面剪切应力基于 Hertz 弹性力学模型得来, 因此对滚副与膜基体系的接触形式仅限于弹性范畴, 适用范围同样受限; 对于高结合强度的膜/基界面, 即使达到了弹性加载极限, 也难以有效促成膜/基界面的分离。在此基础上, 邱龙时等^[64-66]进一步提出了弹塑性滚动接触疲劳法, 将适用范围延伸至弹塑性范畴, 通过采用小尺寸、高弹

性模量的陶瓷球，允许金属基体发生微量塑性变形等方式，显著提升了膜基体系内的接触应力水平。即使在较小载荷下，在膜基界面也能产生高剪切应力，促使薄膜沿界面发生疲劳剥落（图19），并有效缩短了测试周期。在弹塑性滚动接触条件下，界面最大剪切应力幅值 $\Delta \tau_{\max}$ 仍是控制界面裂纹萌生和扩展的力学参量，通过 $\Delta \tau_{\max} \cdot N$ 评价模型可有效辨别界面疲劳性

能间的差异，适用于结合强度较高的薄膜界面疲劳性能的表征和寿命预估。此外，通过对比发现，滚动接触疲劳法（RCF）与循环压入法（CSI）在对膜基界面动态结合强度评价上具有高度的一致性^[49]。Piao等^[67]发现基于声信号探测技术可以实现对滚动接触疲劳失效过程的动态监测，声信号对于疲劳裂纹的萌生、扩展和缺陷累积过程十分敏感。

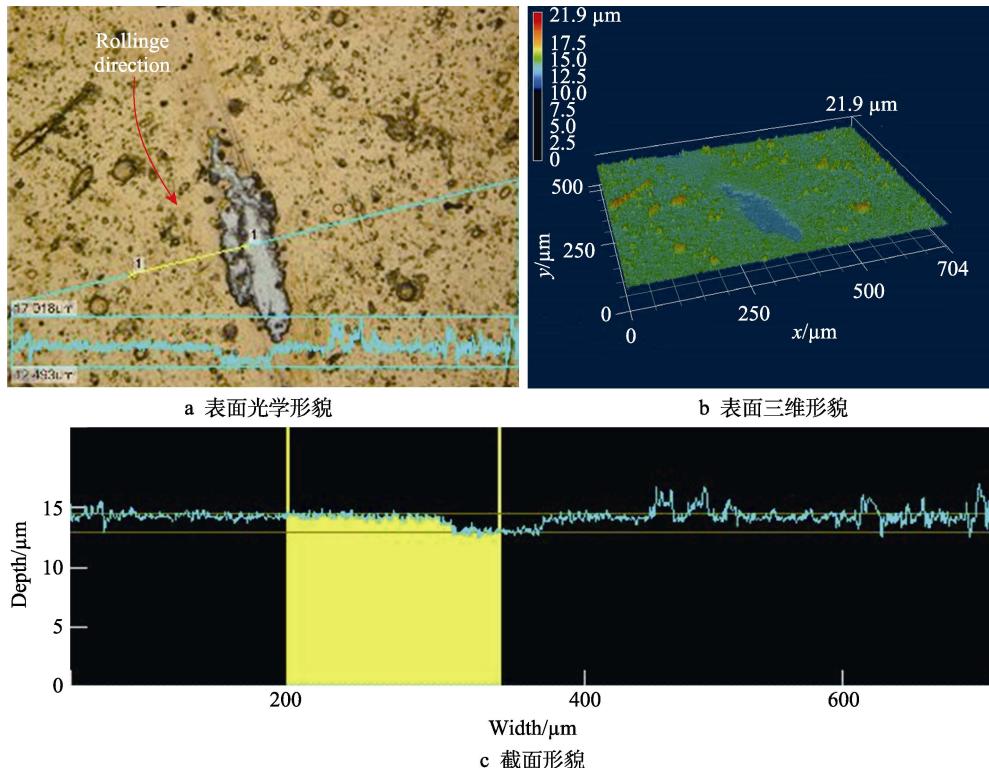


图19 高速钢表面TiN滚动接触疲劳失效形貌^[66]

Fig.19 Rolling contact fatigue failure morphology of TiN film on high speed steel^[66]:
a) surface OM image; b) 3D surface morphology; c) cross section profile

4 结语

时至今日，表面技术和理论获得了巨大发展，随着人们对界面结合机理的认识不断深入，极大地促进了界面结合强度评价方法的丰富和完善，但界面结合性能的准确评价仍面临诸多困难，且尚无一种方法适用于所有的材料体系。不断涌现出的新材料、新装备和新工艺加剧了界面微观结构的复杂性和结果的不可预测性，传统测试方法和表征参量已难以满足工程化的需要，迫切需要基于界面结合性能的本征参量，建立量化表征方法，为技术工艺改进和界面微结构优化提供技术支撑。未来的研究工作应着重注意以下几方面。

1) 探索和建立更加高效、准确的界面结合强度评价方法。目前，尽管针对膜基界面结合强度的评价方法种类繁多，但无一种方法适用于所有的膜基材料体系，特别是近年来因技术和工艺发展催生出的高结合强度膜基体系，也对界面结合强度评价方法提出了

更高要求。未来膜基界面结合强度评价方法应具备操作简单、贴近工况、准确度高、重复度高、无损化、自动化、定量化、标准化等特点。

2) 构建统一的评价标准和表征参量。由于测试原理和评价参量的不同，采用不同方法获得的表征结果往往存在显著差异，因此无法进行归一和比较。膜层的剥落实质上是界面裂纹失稳扩展的结果，需结合材料学和断裂力学开展界面结合性能的研究工作，提炼出与界面结合状态直接相关的力学参量，并转变为工程化和实用化的评价参量。另外，还需从测试机理、理论模型、力学解析等方面探究不同评价方法间的内在联系，拓展评价方法的适用范围。

3) 建立完整的界面安全与失效评价体系。作为一个完整的材料体系，膜层的剥落失效问题不仅取决于界面结合的好坏，还与界面微结构、膜层/基体材料属性和环境条件等因素密切相关，并且膜层的剥离并非始终发生于膜基界面处。由此可见，应将“膜层-界面-基体”视为一个完整体系，并结合其实际服役环境来综合考察界面结合性能。

参考文献:

- [1] VOLINSKY A A, MOODY N R, GERBERICH W W. Interfacial Toughness Measurements for Thin Films on Substrates[J]. *Acta Materialia*, 2002, 50(3): 441-466.
- [2] CHEN Jin-ju, BULL S J. Approaches to Investigate Delamination and Interfacial Toughness in Coated Systems: An Overview[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2011, 44(3): 034001.
- [3] 朱晓东, 米彦郁, 胡奈赛, 等. 膜基结合强度评定方法的探讨——划痕法、压入法、接触疲劳法测定的比较[J]. *中国表面工程*, 2002, 15(4): 28-31.
- ZHU Xiao-dong, MI Yan-yu, HU Nai-sai, et al. Investigation into Evaluation of Interfacial Strength of Coatings[J]. *China Surface Engineering*, 2002, 15(4): 28-31.
- [4] CHEN Zhao-xiang, ZHOU Kun, LU Xue-hong, et al. A Review on the Mechanical Methods for Evaluating Coating Adhesion[J]. *Acta Mechanica*, 2014, 225(2): 431-452.
- SUN Zuo, DILLARD D A. Three-Dimensional Finite Element Analysis of Fracture Modes for the Pull-off Test of a Thin Film from a Stiff Substrate[J]. *Thin Solid Films*, 2010, 518(14): 3837-3843.
- [6] AGRAWAL D C, RAJ R. Measurement of the Ultimate Shear Strength of a Metal-Ceramic Interface[J]. *Acta Metallurgica*, 1989, 37(4): 1265-1270.
- [7] WEI Yue-guang. Modeling Nonlinear Peeling of Ductile Thin Films—Critical Assessment of Analytical Bending Models Using FE Simulations[J]. *International Journal of Solids and Structures*, 2004, 41(18/19): 5087-5104.
- [8] SONG Jing-ru, WEI Yue-guang. Trans-Scale Characterization of Interface Fracture in Peel Test for Metal Film/Ceramic Substrate Systems[J]. *Engineering Fracture Mechanics*, 2019, 221: 106679.
- [9] ADJELOUA A, BOUALEM N, MEDDAH H, et al. Numerical Simulation of Peel Test for Ductile Thin Film along Ceramic Substrate: Elasto-Plastic Analysis[J]. *Journal of Mechanical Engineering and Sciences*, 2021, 15(1): 7762-7770.
- [10] BULL S J, BERASETEGUI E G. An Overview of the Potential of Quantitative Coating Adhesion Measurement by Scratch Testing[J]. *Tribology International*, 2006, 39(2): 99-114.
- JU Hong-bo, YU Li-hua, YU Dian, et al. Microstructure, Mechanical and Tribological Properties of TiN-Ag Films Deposited by Reactive Magnetron Sputtering[J]. *Vacuum*, 2017, 141: 82-88.
- [12] HOLMBERG K, RONKAINEN H, LAUKKANEN A, et al. Residual Stresses in TiN, DLC and MoS₂ Coated Surfaces with Regard to Their Tribological Fracture Behaviour[J]. *Wear*, 2009, 267(12): 2142-2156.
- [13] ALDRICH-SMITH G, JENNITT N, HOUSDEN J. Adhesion of Thin Coatings—The VAMAS (TWA 22-2) Interlaboratory Exercise[J]. *Surface and Coatings Technology*, 2005, 197(2/3): 336-344.
- [14] ZAWISCHA M, BIN MOHAMAD SUPIAN M M A, MAKOWSKI S, et al. Generalized Approach of Scratch Adhesion Testing and Failure Classification for Hard Coatings Using the Concept of Relative Area of Delamination and Properly Scaled Indenters[J]. *Surface and Coatings Technology*, 2021, 415: 127118.
- [15] LU Ping, GOMEZ H, XIAO Xing-cheng, et al. Coating Thickness and Interlayer Effects on CVD-Diamond Film Adhesion to Cobalt-Cemented Tungsten Carbides[J]. *Surface and Coatings Technology*, 2013, 215: 272-279.
- [16] SONG Y N, XU B S, WANG H D, et al. Failure Process Analysis of Plasma Sprayed Coatings under Tip Load Based on Acoustic Emission Signals[J]. *Surface Engineering*, 2014, 30(9): 675-682.
- [17] DRORY M D, HUTCHINSON J W. Measurement of the Adhesion of a Brittle Film on a Ductile Substrate by Indentation[J]. *Proceedings: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 1996, 452(1953): 2319-2341.
- [18] ZHANG Xiao-min, XU Ke-wei. A Universal Expression for Interfacial Indentation Toughness of a Ceramic Coating on Metallic Substrate[J]. *Scripta Materialia*, 2008, 59(7): 718-721.
- [19] SÁNCHEZ J M, EL-MANSY S, SUN B, et al. Cross-Sectional Nanoindentation: A New Technique for Thin Film Interfacial Adhesion Characterization[J]. *Acta Materialia*, 1999, 47(17): 4405-4413.
- [20] ZHANG H, CHEN Q, LI D Y. Development of a Novel Lateral Force-Sensing Microindentation Technique for Determination of Interfacial Bond Strength[J]. *Acta Materialia*, 2004, 52(7): 2037-2046.
- 张凯亮, 陈光南, 张坤, 等. 侧面压入法评价涂层界面结合性能的影响因素[J]. *材料热处理学报*, 2012, 33(3): 156-160.
- ZHANG Kai-liang, CHEN Guang-nan, ZHANG Kun, et al. Factors Influencing Cross-Sectional Indentation to Evaluate Coating Adhesion[J]. *Transactions of Materials and Heat Treatment*, 2012, 33(3): 156-160.
- [22] CHICOT D, ARAUJO P, HORNY N, et al. Application of the Interfacial Indentation Test for Adhesion Toughness Determination[J]. *Surface and Coatings Technology*, 2005, 200(1/4): 174-177.
- [23] JENSEN H M. The Blister Test for Interface Toughness Measurement[J]. *Engineering Fracture Mechanics*, 1991, 40(3): 475-486.
- [24] HUTCHINSON J W, SUO Z. Mixed Mode Cracking in Layered Materials[J]. *Advances in Applied Mechanics*, 1991, 29: 63-191.
- [25] ZHANG Xiao-min, DU Jing-tao, LIU Bo, et al. Quantitative Evaluation of Adhesion of Metallic Coatings with an Extended Microbridge Test[J]. *Journal of Materials Research*, 2007, 22(9): 2497-2504.
- [26] ZHANG Xiao-min, XU Ke-wei. On the Evaluation of the Adhesion of Electroplated Ni Coatings Upon Steel Substrate with Extended Microbridge Technique[J]. *Materials Science and Engineering: A*, 2008, 494(1/2): 122-126.

- [27] 张晓民, 李金刚, 冯杰, 等. 微桥法基体裂纹的线性模型及薄膜断裂应变测试[J]. 中国表面工程, 2021, 34(1): 41-49.
ZHANG Xiao-min, LI Jin-gang, FENG Jie, et al. Linear Opening Model of Substrate Pre-Crack and Determination of Fracture Strain of Thin Film during Tensile Testing of Microbridge Method[J]. China Surface Engineering, 2021, 34(1): 41-49.
- [28] LIU H Y, WEI Y G, LIANG L H, et al. Damage Characterization Model of Ceramic Coating Systems Based on Energy Analysis and Bending Tests[J]. Ceramics International, 2018, 44(5): 4807-4813.
- [29] REN F Z, LIU P, JIA S G, et al. Adhesion Strength of Ni Film on Ti Substrate Characterized by Three-Point Bend Test, Peel Test and Theoretic Calculation[J]. Materials Science and Engineering: A, 2006, 419(1/2): 233-237.
- [30] ZHAO P F, SUN C A, ZHU X Y, et al. Fracture Toughness Measurements of Plasma-Sprayed Thermal Barrier Coatings Using a Modified Four-Point Bending Method [J]. Surface and Coatings Technology, 2010, 204(24): 4066-4074.
- [31] FALLQVIST M, M'SAOUBI R, ANDERSSON J M, et al. Mechanical and Tribological Properties of PVD-Coated Cemented Carbide as Evaluated by a New Multipass Scratch-Testing Method[J]. Advances in Tribology, 2012, 2012: 305209.
- [32] BULL S J, RICKERBY D S. Multi-Pass Scratch Testing as a Model for Abrasive Wear[J]. Thin Solid Films, 1989, 181(1/2): 545-553.
- [33] BARAN Ö, SUKUROGLU E E, EFEOLGU İ, et al. The Investigation of Adhesion and Fatigue Properties of TiN/TaN Multilayer Coatings[J]. Journal of Adhesion Science and Technology, 2016, 30(20): 2188-2200.
- [34] DARBEİDA A, VON STEBUT J, BARTHOLE M, et al. Comparative Tribological Study of Chromium Coatings with Different Specific Hardness[J]. Surface and Coatings Technology, 1994, 68/69: 582-590.
- [35] KNOTEK O, BOSSERHOFF B, SCHREY A, et al. A New Technique for Testing the Impact Load of Thin Films: The Coating Impact Test[J]. Surface and Coatings Technology, 1992, 54/55: 102-107.
- [36] BATISTA J C A, GODOY C, MATTHEWS A. Impact Testing of Duplex and Non-Duplex (Ti, Al)N and Cr-N PVD Coatings[J]. Surface and Coatings Technology, 2003, 163/164: 353-361.
- [37] BOUZAKIS K D, SIGANOS A, LEYENDECKER T, et al. Thin Hard Coatings Fracture Propagation during the Impact Test[J]. Thin Solid Films, 2004, 460(1/2): 181-189.
- [38] ZHA Xu-ming, JIANG Feng, XU Xi-peng. Investigating the High Frequency Fatigue Failure Mechanisms of Mono and Multilayer PVD Coatings by the Cyclic Impact Tests[J]. Surface and Coatings Technology, 2018, 344: 689-701.
- [39] FUKUMASU N K, SOUZA R M. Numerical Evaluation of Cohesive and Adhesive Failure Modes during the Indentation of Coated Systems with Compliant Substrates [J]. Surface and Coatings Technology, 2014, 260: 266-271.
- [40] BOUZAKIS K D, ASIMAKOPOULOS A, MICHAILIDIS N, et al. The Inclined Impact Test, an Efficient Method to Characterize Coatings' Cohesion and Adhesion Properties[J]. Thin Solid Films, 2004, 469/470: 254-262.
- [41] BOUZAKIS K D, ASIMAKOPOULOS A, SKORDARIS G, et al. The Inclined Impact Test: A Novel Method for the Quantification of the Adhesion Properties of PVD Films[J]. Wear, 2007, 262(11/12): 1471-1478.
- [42] SKORDARIS G. Quantification of PVD Film Adhesion with Critical Shear Stress by Using Dynamic Simulation of the Inclined Impact Test[J]. Journal of Materials Engineering and Performance, 2013, 22(11): 3192-3198.
- [43] BOUZAKIS E, BOUZAKIS K D, SKORDARIS G, et al. Fatigue Strength of Diamond Coating-Substrate Interface Assessed by Inclined Impact Tests at Ambient and Elevated Temperatures[J]. Diamond and Related Materials, 2014, 50: 77-85.
- [44] CHEN Ying, NIE Xue-yuan. Study on Fatigue and Wear Behaviors of a TiN Coating Using an Inclined Impact-Sliding Test[J]. Surface and Coatings Technology, 2011, 206(7): 1977-1982.
- [45] BOUZAKIS K D, GERARDIS S, SKORDARIS G, et al. Nano-Impact Test on a TiAlN PVD Coating and Correlation between Experimental and FEM Results[J]. Surface and Coatings Technology, 2011, 206(7): 1936-1940.
- [46] BEAKE B D, VISHNYAKOV V M, COLLIGON J S. Nano-Impact Testing of TiFeN and TiFeMoN Films for Dynamic Toughness Evaluation[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2011, 44(8): 085301.
- [47] BEAKE B D, SMITH J F. Nano-Impact Testing—An Effective Tool for Assessing the Resistance of Advanced Wear-Resistant Coatings to Fatigue Failure and Delamination[J]. Surface and Coatings Technology, 2004, 188/189: 594-598.
- [48] BEAKE B D, BERGDOLL L, ISERN L, et al. Influence of Probe Geometry in Micro-Scale Impact Testing of Nano-Multilayered TiAlCrN/NbN Coatings Deposited on WC-Co[J]. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials, 2021, 95: 105441.
- [49] QIU L S, ZHU X D, LU S, et al. Quantitative Evaluation of Bonding Strength for Hard Coatings by Interfacial Fatigue Strength under Cyclic Indentation[J]. Surface and Coatings Technology, 2017, 315: 303-313.
- [50] QIU L, ZHU X, HE G, et al. The Repeated Spherical Indentation Test: An Efficient Way to Evaluate the Adhesion of Hard Coatings[J]. Surface Engineering, 2016, 32(8): 578-584.
- [51] QIU L S, ZHU X D, XU K W. Internal Stress on Adhesion of Hard Coatings Synthesized by Multi-Arc Ion Plating[J]. Surface and Coatings Technology, 2017, 332:

- 267-274.
- [52] ZHANG Xiao-min, ZHANG S. Rethinking the Role that the "Step" in the Load-Displacement Curves can Play in Measurement of Fracture Toughness for Hard Coatings [J]. Thin Solid Films, 2012, 520(9): 3423-3428.
- [53] ZHANG S, ZHANG Xiao-min. Toughness Evaluation of Hard Coatings and Thin Films[J]. Thin Solid Films, 2012, 520(7): 2375-2389.
- [54] ZHANG S, SUN De-en, FU Yong-qing, et al. Toughness Measurement of Thin Films: A Critical Review[J]. Surface and Coatings Technology, 2005, 198(1/3): 74-84.
- [55] VOLINSKY A A, GERBERICH W W. Nanoindentation Techniques for Assessing Mechanical Reliability at the Nanoscale[J]. Microelectronic Engineering, 2003, 69(2/4): 519-527.
- [56] FAISAL N H, AHMED R, FU Y Q, et al. Influence of Indenter Shape on DLC Film Failure during Multiple Load Cycle Nanoindentation[J]. Materials Science and Technology, 2012, 28(9/10): 1186-1197.
- [57] RAJU T D, KATO M, NAKASA K. Backward Deviation and Depth Recovery of Load-Displacement Curves of Amorphous SiC Film under Repeating Nanoindentation [J]. Acta Materialia, 2003, 51(12): 3585-3595.
- [58] CHANG T P, CHENG H S, CHIOU W A, et al. A Comparison of Fatigue Failure Morphology between TiN Coated and Uncoated Lubricated Rollers[J]. Tribology Transactions, 1991, 34(3): 408-416.
- [59] CARVALHO N J M, HUIS IN 'T VELD A J, DE HOSSON J T. Interfacial Fatigue Stress in PVD TiN Coated Tool Steels under Rolling Contact Fatigue Conditions[J]. Surface and Coatings Technology, 1998, 105(1/2): 109-116.
- [60] HE Jia-wen, XU Ke-wei, HU Nai-sai. Evaluation of Bonding Strength of Thin Hard Films by Spherical Rolling Test[J]. Surface and Coatings Technology, 1997, 97(1/3): 295-298.
- [61] CHEN Hua, YI Mao-zhong, XU Ke-wei, et al. Bonding Strengths of PCVD Films under Cyclic Loading[J]. Surface and Coatings Technology, 1995, 74/75: 253-258.
- [62] GUO H, HENDRIX B C, ZHU X D, et al. Measuring Interface Fracture Resistance in Thin Hard Films[J]. MRS Proceedings, 1995, 409: 171.
- [63] XU Ke-wei, HU Nai-sai, HE Jia-wen. Evaluation of the Bond Strength of Hard Coatings by the Contact Fatigue Test[J]. Journal of Adhesion Science and Technology, 1998, 12(10): 1055-1069.
- [64] 邱龙时, 朱晓东, 鲁莎, 等. 基于弹塑性滚动接触疲劳法评价硬质薄膜结合强度[J]. 真空科学与技术学报, 2015, 35(11): 1380-1384.
- [65] QIU Long-shi, ZHU Xiao-dong, LU Sha, et al. Evaluation of Hard-Coating/Substrate Interfacial Adhesion in Rolling Contact Fatigue Method under Elastic-Plastic Deformation[J]. Chinese Journal of Vacuum Science and Technology, 2015, 35(11): 1380-1384.
- [66] 邱龙时, 马胜利, 徐可为. 多弧离子镀制备 TiN 镀层的动态失效机制及评价方式[J]. 材料保护, 2014, 47(S2): 109-113.
- [67] QIU Long-shi, MA Sheng-li, XU Ke-wei. Dynamic failure mechanism and evaluation method of TiN hard coatings deposited by multi-arc ion plating[J]. Materials protection, 2014, 47(S2): 109-113.
- [68] 邱龙时, 赵婧, 潘晓龙, 等. 高速钢表面 TiN 薄膜的界面疲劳剥落行为[J]. 金属学报, 2021, 57(8): 1039-1047.
- [69] QIU Long-shi, ZHAO Jing, PAN Xiao-long, et al. Interfacial Fatigue Spalling Behavior of TiN Films on High Speed Steel[J]. Acta Metallurgica Sinica, 2021, 57(8): 1039-1047.
- [70] PIAO Zhong-yu, XU Bin-shi, WANG Hai-dou, et al. Investigation of Fatigue Failure Prediction of Fe-Cr Alloy Coatings under Rolling Contact Based on Acoustic Emission Technique[J]. Applied Surface Science, 2011, 257(7): 2581-2586.

责任编辑: 彭颋

(上接第 49 页)

- [82] 邓云发, 张体明, 干贤威, 等. 超声冲击对铝合金搅拌摩擦焊接头组织及性能的影响[J]. 精密成形工程, 2019, 11(5): 78-85.
- DENG Yun-fa, ZHANG Ti-ming, GAN Xian-wei, et al. Effects of Ultrasonic Impact on Microstructure and Properties of Friction Stir Welded Aluminum Alloy[J]. Journal of Netshape Forming Engineering, 2019, 11(5): 78-85.
- [83] 杨建海, 张玉祥, 葛利玲, 等. 2A14 铝合金混合表面纳米化对电化学腐蚀行为的影响[J]. 金属学报, 2016, 52(11): 1413-1422.
- YANG Jian-hai, ZHANG Yu-xiang, GE Li-ling, et al. Effect of Hybrid Surface Nanocrystallization on the Electrochemical Corrosion Behavior in 2A14 Aluminum Alloy[J]. Acta Metallurgica Sinica, 2016, 52(11): 1413-

- 1422.
- [84] LI G, QU S G, PAN Y X, et al. Effects of the Different Frequencies and Loads of Ultrasonic Surface Rolling on Surface Mechanical Properties and Fretting Wear Resistance of HIP Ti-6Al-4V Alloy[J]. Applied Surface Science, 2016, 389: 324-334.
- [85] 王子荣, 郭铮, 马玉华, 等. 含 La_2O_3 奥氏体不锈钢堆焊合金层晶粒细化机制及其耐腐蚀、磨损性能的影响[J]. 表面技术, 2020, 49(12): 274-281.
- WANG Zi-rong, GUO Zheng, MA Yu-hua, et al. Grain Refining Mechanism of Austenite Stainless Steel Hard-facing Layer with La_2O_3 as Well as Effect on Its Corrosion and Wear Resistance[J]. Surface Technology, 2020, 49(12): 274-281.

责任编辑: 刘世忠