



21 - 25
AGOSTO DE 2016
FORTALEZA - CEARÁ

MODIFICAÇÃO DO MODELO DE DIMITRIADIS VIA NANOINDENTAÇÃO COMPUTACIONAL.

Caio Cesar Bezerra Carneiro, caio.cbcarneiro@gmail.com¹

Francisco de Assis Leandro Filho, leandrofilho@unifor.br¹

Iramilson Maia da Silva Filho, ranmaia10@gmail.com¹

Rodrigo Alves Patrício, rodrigo.patricio@unifor.br¹

Jorge André Costa dos Santos, jorgeandre@unifor.br¹

¹Universidade de Fortaleza, Av. Washington Soares, 1321 - Edson Queiroz, Fortaleza - CE - 60811 - 905

Resumo: As propriedades mecânicas de nano e micro sistemas têm motivado muitos estudos com o objetivo de entender como a interação mecânica afeta os materiais em pequenas dimensões. A nanoindentação foi desenvolvida no início dos anos 1970 e é amplamente usada para extrair propriedades mecânicas de materiais, como por exemplo, o módulo de Young. Tem-se observado que modelos matemáticos clássicos da mecânica do contato com base no contato Hertziano (derivado do contato elástico semi-infinito) não descrevem adequadamente os campos de tensão e deformação devido aos efeitos do substrato e tamanho do indentador. Esse trabalho tem por objetivo adaptar o modelo proposto por Hertz para simular o contato entre indentadores com uma superfície de espessura finita. O método de elementos finitos (MEF) foi utilizado para modelar as geometrias do contato esférico e cônico, permitindo a investigação da resposta mecânica desses contatos por simulações de indentação computacional. Os dados obtidos pelo MEF permitiram o ajuste do modelo de Hertz e fatores de correção foram incluídos para levar a informação da espessura da amostra e assim melhorar o entendimento do efeito do substrato em nanoindentações. Esses ajustes do modelo de Hertz em conjunto com os dados experimentais de microscopia de força atômica são importantes no estudo das propriedades mecânicas de materiais biológicos, pois fornece a possibilidade de obter dados quantitativo e qualitativos a respeito do comportamento elástico de sistemas em pequena escala.

Palavras-chave: Métodos de Elementos Finitos, Microscópio de Força Atômica, Módulo de Young, Nanoindentação, Modelo de Hertz.

1. Introdução

A medição das propriedades elásticas de micro sistemas macios, tais como polímeros (Tranchida *et al.*, 2006 e Liao *et al.*, 2010) tecidos biológicos, células vivas Cross *et al.* (2007) e outros sistemas biológicos Ivanovska *et al.* (2004), podem fornecer informações importantes sobre a composição desses sistemas e sua estabilidade. No entanto, a extração de informação a partir de tais sistemas torna-se extremamente complicado quando a quantidade de deformação aplicada para investigar as suas propriedades mecânicas é comparável à espessura do filme. Esta condição não é adequada para a utilização de uma teoria bem estabelecida chamada de contato Hertziano (Hertz, 1881 e Lin and Horkay, 2008), o qual tem sido amplamente utilizada para extrair o módulo de elasticidade dos materiais a partir de experiências de nanoindentação, em particular, em medidas a partir de microscopia de força atômica (AFM)(Radmacher, 1996; Radmacher *et al.*, 1995; Carl and Schillers, 2008; Fiel *et al.*, 2011).

2. Modelo de indentação

O clássico modelo de Hertz relaciona a força F e a profundidade de penetração δ durante a indentação elástica de um indentador infinitamente rígido em uma amostra como módulo elástico E e coeficiente de Poisson ν . Para o indentador cônico com um ângulo de abertura α essa relação é dada por Cross *et al.* (2007):

$$F_{cone} = \frac{2}{\pi} \frac{E}{(1 - \nu^2)} \tan \alpha \delta^2. \quad (1)$$

Para uma esfera de raio R ,

$$F_{espera} = \frac{4}{3} \frac{E}{(1-\nu^2)} \sqrt{R} \delta^{3/2}. \quad (2)$$

As equações a cima são derivadas a partir da teoria do contato Hertziano, no qual tem as seguintes limitações: (i) amostra é considerada como tendo uma espessura infinita. (ii) os campos de deformação ocorrem em regime de elasticidade linear.

3. Generalização do modelo de Dimitriadis para o indentador cônico

Dimitriadis *et al.* (2002) desenvolveu uma relação de força-deformação que leva em conta a espessura da amostra, no qual tem a seguinte forma analítica:

$$F = \frac{4}{3} \frac{E}{(1-\nu^2)} \sqrt{R} \delta^{3/2} \left[1 - \frac{2\alpha_0}{\pi} \chi + \frac{4\alpha_0^2}{\pi^2} \chi^2 - \frac{8}{\pi^3} \left(\alpha_0^3 + \frac{4\pi^2}{15} \beta_0 \right) \chi^3 + \frac{16\alpha_0}{\pi^4} \left(\alpha_0^3 + \frac{3\pi^2}{5} \beta_0 \right) \chi^4 \right]$$

once $\chi = \sqrt{(R\delta)}/h$, e as constantes α_0 and β_0 são funções do coeficiente de Poisson ν , e depende do tipo de condição de contorno entre a amostra e o substrato.

Dessa forma a relação força-indentação desenvolvida por Dimitriadis pode ser generalizada da seguinte forma:

$$F = F_{Hertz}(\delta) g[\chi(\delta, h)], \text{ onde } g(\chi) \rightarrow 1 \text{ if } h \rightarrow \infty, \quad (3)$$

onde $F_{Hertz}(\delta)$ é a expressão clássica Hertziana de força-deformação (para uma dada geometria de indentador) e $g[\chi(\delta, h)]$ é uma função polinomial que leva em conta a correção de espessura da amostra. O parâmetro adimensional χ dependerá da profundidade de penetração δ e da espessura da amostra h . No caso esférico $\chi = \sqrt{R\delta}/h$, onde $\chi = a/h$, no qual o raio de contato de um indentador esférico é $a = \sqrt{R\delta}$. Essa sugestão possibilita generalizar outras geometrias de indentadores, onde pode ser obtida por uma busca de uma função $g[\chi(\delta, h)]$, onde $\chi = a/h$ é caracterizado para uma geometria de indentador particular. Este trabalho tem por objetivo determinar $g[\chi(\delta, h)]$ em conjunto com as simulação de FEM para o indentador cônico.

4. Método computacional e extração do módulo elástico a partir de medidas de AFM

Para investigar a deformação de contato de filmes de finitos com espessuras finita submetidos a forças externas, adotamos um modelamento baseado em Elementos Finitos (MEF) fig. 1.

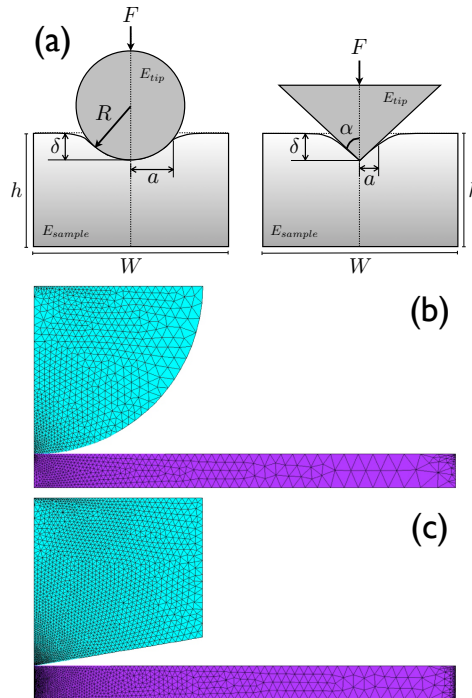


Figura 1: (a) Tipos de contato simulados nesse trabalho. Os módulos elásticos $E_{tip} \gg E_{sample}$ ($E_{tip} = 10^8 MPa$, $E_{sample} = 1 MPa$). δ é profundidade de penetração e a raio de contato, no qual depende da geometria do indentador. O tamanho lateral da amostra $W = 3.5m$ é muito maior do que o raio de contato e h representa a espessura da amostra.

Forças externas F são aplicadas sobre a parte superior da estrutura, e o movimento lateral dos penetradores é suprimida. O coeficiente elástico E_{tip} dos penetradores é muito maior do que E_{sample} tal que toda a deformação ocorre exclusivamente na amostra.

O indentador cônico é descrito pelo ângulo de abertura α e o indentador esférico pelo raio R , no qual foi usado $R = 1m$. Para o indentador cônico, três ângulos de abertura foram usados: $\alpha = 60^\circ, 70^\circ$ e 80° . Para reduzir o tempo computacional a simetria radial foi imposta e o problema foi reduzido a duas dimensões.

O objetivo do trabalho é determinar a função $g[\chi(\delta, h)]$ no qual pode ser usada para corrigir o contato clássico de Hertz levando em consideração a espessura da amostra utilizando os dados numéricos do MEF. A estratégia é descrita da seguinte forma:

1. Calcular os campos de stress/strain de um indentador esférico deformando um amostra de espessura para um gama de forças externas F para coletar suas respectivas indentações δ no ponto de contato. Assim, a curva de força-deformação ($F \times \delta$) é formada e comparada com HM para determinar a validade de nossa abordagem numérica (EFM).
2. O próximo passo é repetido varrendo os valores de espessura da amostra. Para cada espessura a curva de força-deformação é formada e comparada ao modelo de Dimitriadis.
3. Uma vez determinada a validade numérica, as etapas anteriores são repetidas para o indentador cônico com diferentes ângulos de abertura α .
4. $g[\chi(\delta, h)]$ pode ser determinado pela representação gráfica $F_{FEM}(\delta; h)/F_{Hertz}(\delta)$ versus χ_{cone} para uma dada espessura h , onde $F_{FEM}(\delta; h)$ é a curva de força-deformação obtida com os cálculos do MEF, e $F_{Hertz}(\delta)$ é a curva teórica computada para o conjunto de deformações δ obtida com os cálculos do MEF. Se a suposição dada pela Eq. 3 é correta, O resultado das funções (para cada h) plotado contra χ (em vez de δ) deve colapsar em um polinômio universal que pode ser ajustado como $f(\chi) = 1 + \sum a_n \chi^n$ ($n = 1, 2, 3, \dots$).

5. Resultados

Os campos de tensão e deformação sobre o filme com $h = 2m$ deformado pelos os indentadores esférico e cônico são mostrados na figura 2. As forças máximas aplicadas são 3,1 nN (esfera) e 0,31 nN (cone) no qual resulta em indentações de $\delta = 9,5$ nm e $\delta = 6,7$ nm respectivamente. As curvas numéricas de força-deformação para diferentes valores de

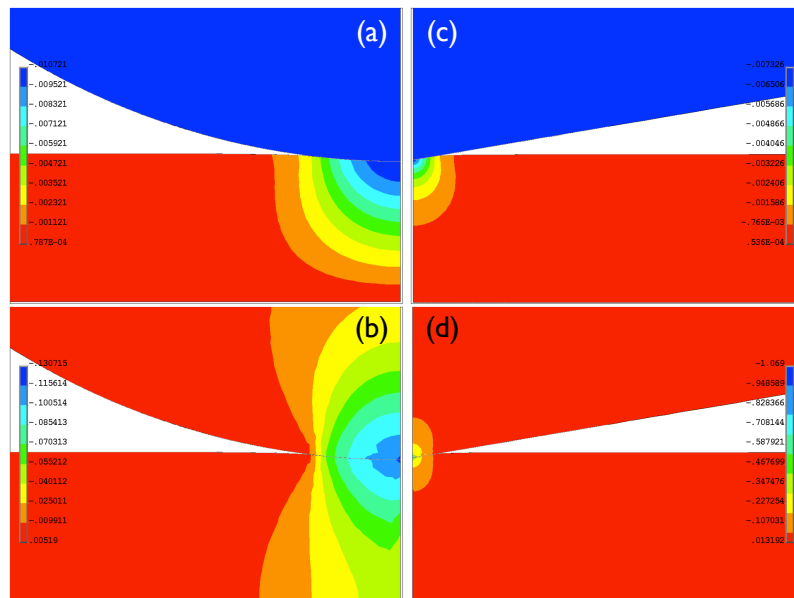


Figura 2: Campos de Deformação (Figuras (a) e (c)) e de tensão (Figuras (b) e (d)) sobre amostra ($h = 0,2m$) deformada por uma esfera e um cone.

espessuras são mostradas na fig. 3. Fazendo um ajuste na curva para o caso em que $h = 2$ m usando o modelo de Hertz, foi obtido para os indentadores esférico e cônico um módulo elástico aparente E de 2.029 MPa e 1.21 MPa, mostrando assim que ao desprezar a informação de espessura da amostra o modelo de Hertz subestima o valor do módulo elástico em 100%.

A robustez do MEF é evidenciada na fig. 4, mostrando que para uma amostra de mesma espessura o método numérico é bastante preciso.

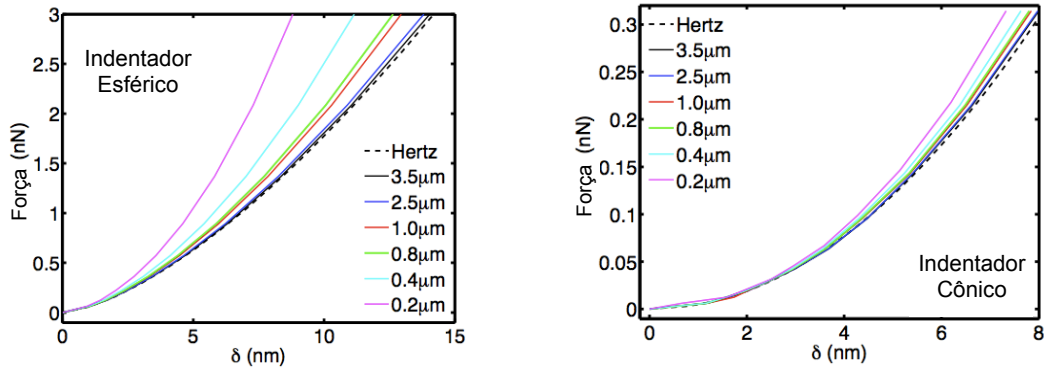


Figura 3: Curvas de força para diferentes valores de espessura analisado de $h = 5 \text{ m}$ a $h = 3.5 \text{ m}$.

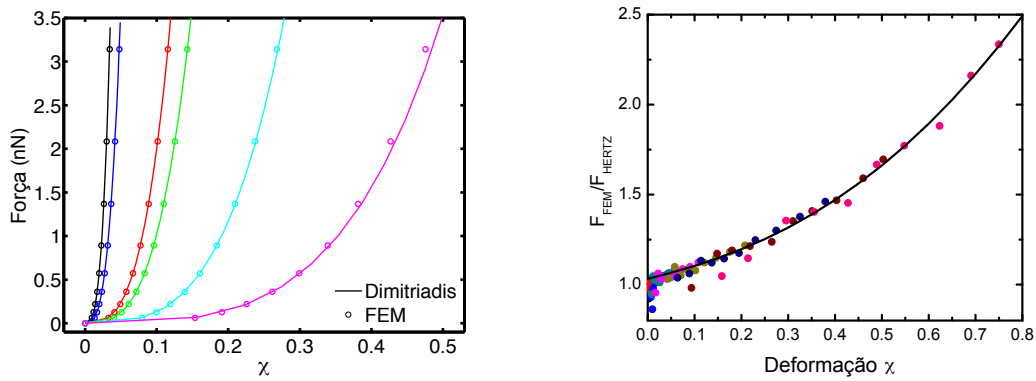


Figura 4: Curvas de força para diferentes valores de espessura analisado de $h = 5 \text{ m}$ a $h = 3.5 \text{ m}$.

5.1 Solução para o indentador cônico com a função de correção de espessura

Assumindo que a correção de espessura do modelo de Hertz pode ser definido de acordo com a equação 3, a função correção $g[\chi(\delta, h)]$ pode ser determinada plotando a razão $F_{MEF}(\delta; h)/F_{Hertz}(\delta)$ versus $\chi_{cone} = \delta \tan \alpha / h$ para diferentes espessuras de amostras e ângulos de abertura como mostra a fig. 4.

Deve-se notar que os diferentes casos de h e pode apresentar diferentes faixas de força e deslocamento. No entanto, os dados apresentados têm uma sobreposição adequada o que nos deixa confiantes em relação ao colapso universal da curva. As curvas foram ajustadas usando polinômio de quarta ordem para dois tipos de condições de contorno.

$$g_B(\chi) = 1 + 0.6298\chi + 0.7236\chi^2 + 1.249\chi^3 - 0.3556\chi^4 \quad (4)$$

$$g_{NB}(\chi) = 1 + 0.2664\chi + 1.173\chi^2 - 0.98\chi^3 + 0.5168\chi^4 \quad (5)$$

Onde g_B é a função característica para o caso em que a amostra está ligada ao substrato e g_{NB} no caso em que a amostra está livre para deslizar sobre a amostra.

5.2 Mapeando o módulo elástico local de uma célula de fibroblastos

Para ilustrar o presente modelo, medidas de AFM foram realizadas em células de fibroblastos (linha celular - NRK), com convencionais sondas de AFM com o objetivo de extrair o módulo elástico em diferentes regiões da célula. O módulo elástico foi avaliado usando o modelo Hertziano e o modelo proposto de correção de espessura. Como os fibroblastos são células bastante aderentes foi utilizado na análise a função de ajuste g_{NB} . Os dados de curvas de força obtidas pelo

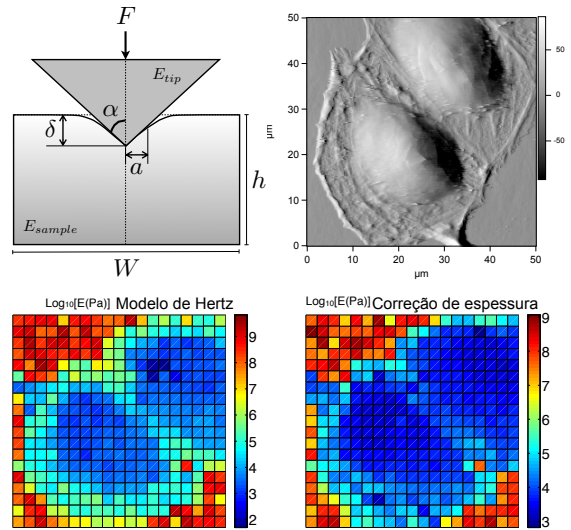


Figura 5: (Superior esquerdo) Indentador do tipo cônico utilizado na análise experimental. (Superior direito) Imagem de deflexão de fibroblastos (NRK). (Inferior esquerdo) Mapa elástico interpretado pelo modelo clássico de Hertz. (Inferior direito) Mapa elástico interpretado pelo modelo de Hertz modificado.

AFM foram usado em conjunto com a equação clássica de Hertz e com a equação Hertz modificada com a espessura para gerar um mapa elástico da célula de fibroblasto. A figura 5 mostra que o mapa elástico derivado da equação ajustada é mais realista, pois o mapa gerado com a equação hertziana apresenta valores sobreestimados, principalmente nos locais onde a célula é bastante fina.

6. Conclusão

Neste trabalho, nós investigamos os mecanismos de contacto entre penetradores cônicos e filmes finos, utilizando uma abordagem numérica de elemento finitos. Pelo ajuste dos dados de força-deformação, foi proposto uma modificação no modelo de Hertz, que leva em consideração os efeitos espessura finita com uma forma analítica simples. O modelo derivado pode ser convenientemente incluído na análise de dados de rotina para extrair o módulo de elasticidade de materiais macios, como películas de polímeros, células vivas e tecidos. Para ilustrar a aplicabilidade do nosso modelo, as propriedades elásticas dos fibroblastos NRK foram medidos com a AFM, e as curvas de deformação experimentais foram ajustadas com Hertz clássico e Hertz ajustado. O módulo de elasticidade obtidos com ambos os modelos podem representar bem as curvas força-deformação experimentais, mas os valores fornecidos pelo nosso modelo difere substancialmente dos valores previstos por Hertz clássico, especialmente nas regiões mais finas. Em regiões com menor espessura (lamellipodia), mesmo forças muito suave pode gerar valores de tensão que conduzem a irregularidades da mesma ordem da espessura da amostra, onde o indentador está próximo ou realmente tocando o substrato, e resultam em valores de E fortemente influenciada pela substrato. Uma vez que o modelo convencional assume que as amostras são infinitamente espessa, E aparente obtidos com este modelo irá ser maior do que um modelo, que inclui o efeito da espessura. Embora se possa elevar a preocupação de que indentadores agudos podem levar a efeitos não lineares (fora da validade da teoria do contato Hertz), nossos resultados mostraram que, até 3 nN dados de força-deformação teóricos e experimentais estão em muito bom acordo. Embora esta faixa parece bastante limitada, as forças de alguns nN são típicos para medir as propriedades mecânicas das células vivas, sem danos. Uma vantagem adicional do presente modelo é a possibilidade de mapear as propriedades elásticas sobre a totalidade da superfície da célula, o que não é possível utilizando contas esféricas ligadas ao cantilever.

7. REFERÊNCIAS

- Carl, P. and Schillers, H., 2008. *Eur. J. Physiol.*, Vol. 457, p. 551.
- Cross, S.E., Yu-Sheng, J., Rao, J. and Gimzewski, J.K., 2007. "Nanomechanical analysis of cells from cancer patients." *Nat. Nanotechnol.*, Vol. 2, p. 780.
- Dimitriadis, E.K., Horkay, F., Maresca, J., Kashar, B. and Chadwick, R.S., 2002. "Determination of elastic moduli of thin of soft material using the atomic force microscope". *Biophys. J.*, Vol. 82, p. 2798.
- Fiel, L., Rebelo, L.M., Santiago, T.M., Adorne, M.D., Guterrez, S.S., de Sousa, J.S. and Pohlmann, A.R., 2011. *Soft Matter*, Vol. 7, p. 3320.
- Hertz, H., 1881. "On the contact of elastic solids". *J. Reine Angew Mathematik*, Vol. 4, pp. 156–171.
- Ivanovska, I.L., de Pablo, P.J., Ibarra, B., Sgalari, G., MacKintosh, F.C., a. F. S. J. L. Carrascosa and Wuite, G.J.L., 2004. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, Vol. 101, p. 6700.
- Liao, Q., Huang, J., Zhu, T., Xiong, C. and Fang, J., 2010. "Nanomechanical analysis of cells from cancer patients, nature nanotechnology". *Mech. Mater.*, Vol. 42, p. 1043.
- Lin, D.C. and Horkay, F., 2008. *Soft Matter*, Vol. 4, p. 669.
- Radmacher, M., 1996. "Measuring viscoelastic properties of human platelets with the atomic force microscope, biophys". *Biophys. J.*, Vol. 70, p. 556–567.
- Radmacher, M., Fritz and Hansma, P.K., 1995. "Measuring the elastic properties of biological materials with the atomic force microscope". *Methods Cell Biol.*, Vol. 68, p. A139.
- Tranchida, D., Piccarolo, S., Loos, J. and Alexeev, A., 2006. "Accurately evaluating young's modulus of polymers through nanoindentations: A phenomenological correction factor to the oliver and pharr procedure". *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 89, p. 171905.

DIMITRIADIS CORRECTION MODEL BY COMPUTER NANOINDENTATION

Caio Cesar Bezerra Carneiro, caio.cbcarneiro@gmail.com¹

Francisco de Assis Leandro Filho, leandrofilho@unifor.br¹

Iramilson Maia da Silva Filho, ranmaia10@gmail.com¹

Rodrigo Alves Patrício, rodrigo.patricio@unifor.br¹

Jorge André Costa dos Santos, jorgeandre@unifor.br¹

¹Universidade de Fortaleza, Av. Washington Soares, 1321 - Edson Queiroz, Fortaleza - CE - 60811 — 905

Resumo: The mechanical properties of nano and micro systems motivated many studies aiming understanding of how materials are affected by mechanical interactions in low dimensions. Nanoindentation was developed in the early 1970s and is widely use to extract material mechanical properties, e.g. Young's modulus. It has been observed that classical mathematical models of the mechanics of contact based on the Hertz contact solution (which is the derived for the semi-infinite elastic contact), doesn't adequately describe the indentation stress field due to the effects of substrate and indenter tip size. The purpose of this work is the modification of the model proposed by Hertz to describe the contact between indenters with a surface of finite thickness. The finite element method (FEM) was used to model the spherical and conical geometries of the contact allowing investigation of the mechanical response of these contacts by computational simulations of indentation. By fitting the data obtained by FEM for samples with different thickness, it was possible to (i) to understand the role of the substrate during nanoindentation of thin samples, and (ii) to determine the correction factor of the Hertz model to account for sample thickness. These modification can be used to analyze nanoindentation experiments performed with atomic force microscopy to study the mechanical properties of small-scale systems.

Palavras-chave: Finite element method, Atomic force microscopy, Young modulus, Nanoindentation, Hertz model.