

Особенности высокоскоростного ввода энергии при воздействии импульсного электронного пучка на систему «нитридное покрытие/подложка из силумина»

*О.В. Крысина**, *А.Д. Тересов*, *Москвин П.В.*, *Ю.Ф. Иванов*, *Н.А. Прокопенко*,

Институт сильноточной электроники СО РАН, Томск, Россия

krysina@opee.hcei.tsc.ru

Аннотация. В работе проводятся экспериментальные пирометрические измерения локальной температуры системы «TiN-покрытие/силуминовая подложка» непосредственно в зоне воздействия электронным пучком субмиллисекундной длительности. Выявлены температурные закономерности в зависимости от режимов электронно-пучкового воздействия на систему, а также влияние электронно-пучковой обработки на разрушение нитридного покрытия на силумине.

Ключевые слова: электронный пучок, силумин, TiN, система «покрытие/подложка», температурные измерения.

1. Введение

В более ранних работах было показано, что комплексное исследование процессов электронно-пучкового воздействия на образцы, которые включают высокоскоростное измерение локальной температуры на поверхности облучаемого объекта, структурно-фазовые исследования образцов после воздействия, компьютерное моделирование температурных процессов и т.п., очень важны для понимания общей физической картины явлений и прогнозирования структуры, состава и свойств формируемого модифицируемого материала [1–4].

Целью настоящей работы были экспериментальные пирометрические измерения локальной температуры системы «TiN-покрытие/силуминовая подложка» непосредственно в зоне воздействия электронным пучком субмиллисекундной длительности и выявление температурных и структурных закономерностей в зависимости от режимов электронно-пучкового воздействия.

2. Материалы и методы

В качестве объекта исследования была выбрана система «покрытие/подложка», где покрытием выступал стехиометрический нитрид титана толщиной 1 мкм, осажденный вакуумно-дуговым методом [5], а подложкой выступал силумин эвтектического состава.

Эксперименты по температурным измерениям проводились на вакуумной электронно-пучковой установке «СОЛО» [1, 6], разработанной и созданной в ИСЭ СО РАН, входящей в перечень уникальных научных установок РФ (комплекс УНУ «УНИКУУМ» <https://ckp-rf.ru/catalog/usu/434216>). В её основе лежит электронный источник с плазменным катодом на основе импульсного дугового разряда низкого давления [7], способный генерировать электронный пучок с длительностью импульса 20–200 мкс, током 20–300 А, энергией электронов 5–25 кэВ, плотностью энергии в импульсе до 100 Дж/см², частотой следования импульсов 0.3–20 с⁻¹. Диапазон рабочих давлений электронного источника, который поддерживается путём постоянного напуска рабочего газа (аргон) через источник электронов, составляет 0.01–0.05 Па. Воздействие импульсного электронного пучка на поверхность металлического материала позволяет достигать скоростей нагрева поверхностного слоя до 10⁸ К/с, охлаждения – 10⁶–10⁷ К/с, что ведет к выглаживанию поверхности, импульсной закалке из расплавленного состояния и, как следствие, к существенному улучшению свойств поверхностного слоя материалов и изделий.

Локальная температура на поверхности силуминовых образцов с нанесенным нитридным покрытием в данных экспериментах измерялась с помощью высокоскоростного

инфракрасного пирометра «Kleiber KGA 740–LO», соединённого гибким волноводом с объективом «LVO 25» с возможностью регулировки размера области регистрации инфракрасного излучения и расстояния до поверхности образцов. Подробную схему температурных измерений и их описание можно посмотреть в [1, 3]. Рабочий диапазон измеряемых пирометром температур составляет 300–2300 °С; спектральный диапазон 2–2.2 мкм; время отклика 6 мкс; температурное разрешение 1 °С. Для калибровки показаний пирометра использовалась хромель-алюмелевая термопара, спай которой фиксировался с помощью точечной сварки на обратной стороне образца, чтобы не допустить прямого попадания электронного пучка на термопару. Так как минимально возможная зафиксированная с помощью пирометра температура, ≥ 300 °С, и образцы подвергались предварительной калибровке, то начальная температура на температурных зависимостях составляет ≈ 300 °С.

Измерения локальной температуры силуминовых образцов (АК12) с нанесенным TiN-покрытием толщиной 1 мкм проводилось в следующих диапазонах параметров электронно-пучковой обработки (ЭПО): плотность энергии в импульсе $E_S = 5 \div 20$ Дж/см², длительность импульса $\tau = 50 \div 200$ мкс, количество импульсов $N = 1 \div 15$.

3. Результаты

Изменение плотности энергии при параметрах $\tau = 200$ мкс, $N = 5$ с 10 до 20 Дж/см² приводит к увеличению максимальной температуры на фронте с 732 до 842 °С и соответствующему увеличению скорости роста температуры на фронте в ≈ 3 раза (Рис. 1, Табл. 1).

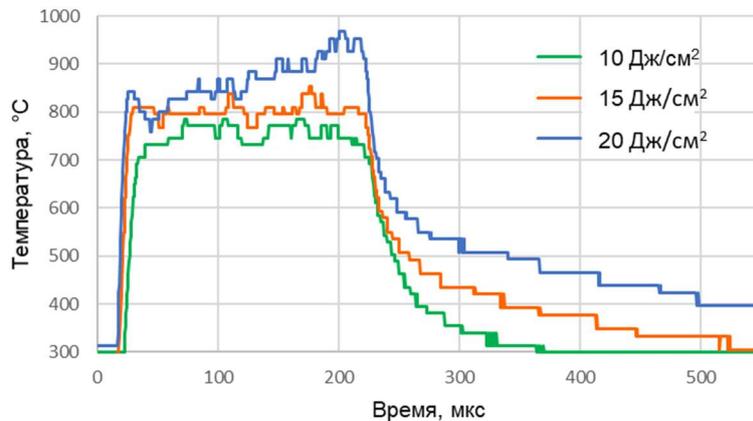


Рис. 1. Экспериментально полученные зависимости локальной температуры на поверхности силуминового образца с TiN-покрытием от времени при варьировании плотностью энергии электронного пучка ($\tau = 200$ мкс, $N = 5$).

Таблица 1. Температурные характеристики поверхности силуминовых образцов с TiN-покрытием при ЭПО ($\tau = 200$ мкс, $N = 5$, $E_S = 10 \div 20$ Дж/см²).

Плотность энергии пучка, Дж/см ²	10	15	20
Скорость роста температуры на фронте, К/с	$1.6 \cdot 10^7$	$2.5 \cdot 10^7$	$4.4 \cdot 10^7$
Максимальная температура на фронте, °С	732	810	842
Максимальная температура в течение импульса, °С	796	853	967

В течении импульса максимальная зафиксированная температура при увеличении плотности энергии также увеличивается на 170 °С. Но если при 10 и 15 Дж/см² в течение импульса (5-й) не наблюдается линейного увеличения температуры, то при 20 Дж/см² температура растет практически линейно и увеличивается в течение импульса на ≈ 120 °С. При

10 Дж/см² температурная зависимость после достижения максимальной температуры на фронте выходит на полочку, среднее значение этой температуры (температуры плавления системы) равно ≈ 750 °С. Здесь происходит плавление поверхностного слоя силумина и его дальнейшая кристаллизация при охлаждении. При увеличении плотности энергии пучка до 15 Дж/см² температура плавления системы увеличивается до ≈ 800 °С. Здесь также наблюдается плавление поверхностного слоя силумина при определенной постоянной температуре и его дальнейшая кристаллизация. При увеличении плотности энергии до 20 Дж/см² поведение температурной кривой указывает на увеличение температуры плавления до ≈ 820 – 830 °С по сравнению с режимом с 15 Дж/см² и наблюдаемая температура системы «покрытие /подложка» выше температуры плавления в диапазоне 100–200 мкс. Такое поведение температурных кривых говорит об увеличении температуры плавления материала на основе силумина при увеличении вводимой энергии в неравновесных условиях. Такой эффект ранее описывался в литературе на основе моделирования [8] и наблюдался исследователями [1, 3].

При уменьшении длительности импульса до 50 мкс увеличение плотности энергии приводит к более существенным изменениям температурных характеристик (Рис. 2, Табл. 2). Так увеличение плотности энергии с 5 до 15 Дж/см² приводит к увеличению максимальной температуры на переднем фронте с 688 до 916 °С и увеличению скорости роста температуры на фронте в ≈ 2 раза (Рис. 1, Табл. 1). В течении импульса (5-й) максимальная зафиксированная температура при увеличении плотности энергии увеличивается на 910 °С и достигает максимума в 1637 °С на заднем фронте.

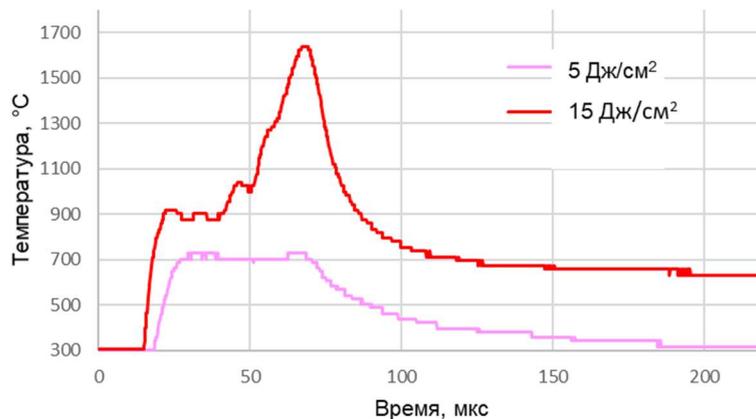


Рис. 2. Экспериментально полученные зависимости локальной температуры на поверхности силуминового образца с TiN-покрытием от времени при варьировании плотностью энергии электронного пучка ($\tau = 50$ мкс, $N = 5$).

Таблица 2. Температурные характеристики поверхности силуминовых образцов с TiN-покрытием при ЭПО ($\tau = 50$ мкс, $N=5$, $E_s = 5 \div 15$ Дж/см²).

Плотность энергии пучка, Дж/см ²	5	15
Скорость роста температуры на фронте, К/с	$2.9 \cdot 10^7$	$6.5 \cdot 10^7$
Максимальная температура на фронте, °С	688	916
Максимальная температура в течение импульса, °С	728	1637

В случае длительности импульса 50 мкс также наблюдается увеличение температуры плавления материала на основе силумина с ≈ 710 до ≈ 890 °С при увеличении вводимой энергии (с 5 до 15 Дж/см²) в неравновесных условиях. Уменьшение длительности импульса с 200 до 50 мкс при ЭПО приводит к относительно небольшому росту максимальной температуры на фронте, ≈ 100 °С, при этом увеличение скорости роста температуры на фронте происходит в

≈2.5 раза (Рис. 3, Табл. 3). Максимальная зафиксированная температура (1637 °С) в течение импульса (5-й) соответствует длительности импульса 50 мкс. При увеличении длительности импульса в 4 раза максимальная достигнутая температура уменьшается в ≈2 раза. Температура плавления материала на основе силумина (Рис. 3), зафиксированная на поверхности системы «покрытие/подложка» при увеличении длительности воздействия, равна 750, 825, 892 °С для 50, 100 и 200 мкс длительности импульса, соответственно.

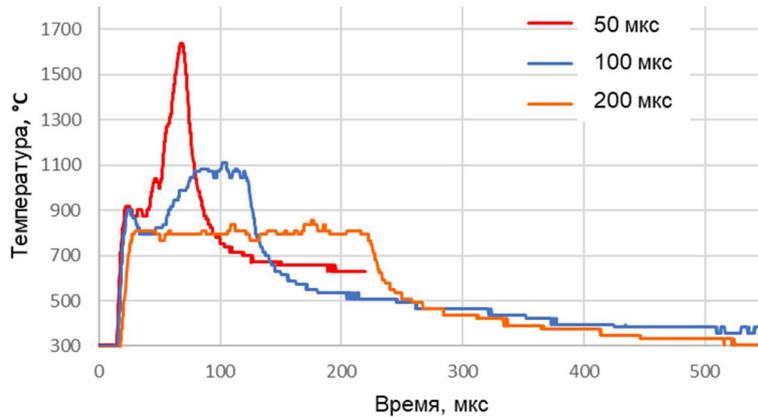


Рис. 3. Экспериментально полученные зависимости локальной температуры на поверхности силуминового образца с TiN-покрытием от времени при варьировании длительностью импульса электронного пучка ($E_S = 15 \text{ Дж/см}^2$, $N = 5$).

Таблица 3. Температурные характеристики поверхности силуминовых образцов с TiN-покрытием при ЭПО ($\tau = 50\div 200 \text{ мкс}$, $N = 5$, $E_S = 15 \text{ Дж/см}^2$).

Длительность импульса, мкс	200	100	50
Скорость роста температуры на фронте, К/с	$2.5 \cdot 10^7$	$5.5 \cdot 10^7$	$6.5 \cdot 10^7$
Максимальная температура на фронте, °C	810	905	916
Максимальная температура в течение импульса, °C	853	1111	1637

Изменение количества импульсов при ЭПО также сказывается на температурных характеристиках поверхностного слоя силумина с TiN-покрытием (Рис. 4, Табл. 4). В диапазоне 5–15 импульсов скорость роста температуры на фронте меняется в 1.5 раза и достигает $3.8 \cdot 10^7 \text{ К/с}$, максимальная температура на фронте увеличивается на ≈100 °С. Максимальная температура в течение импульса наблюдается на 15 импульсе и равна 955 °С.

В дополнение отметим, что температура плавления материала на основе силумина, зафиксированная на поверхности системы «покрытие/подложка» (Рис. 4) при разном количестве импульсов равна 750, 813, 878 °С для 5, 7 и 15 импульсов, соответственно. Данный эффект требует дальнейших более подробных исследований, так как был экспериментально обнаружен при ЭПО именно на системе «нитридное покрытие/подложка из силумина», на чистом силумине при аналогичных условиях такого эффекта не наблюдается.

Стоит отметить, что зафиксированные температуры во всех выбранных диапазонах параметров ЭПО на поверхности TiN-покрытия, нанесенного на силуминовый образец, превышают табличную температуру плавления силумина АК12 ($T_m = 577^\circ\text{C}$), что приводит к вплавлению твердого покрытия в более легкоплавкую подложку, это в свою очередь приводит к увеличению адгезионной прочности покрытия. С другой стороны, из-за импульсного воздействия, скоротечности температурных изменений и быстрого теплоотвода при ЭПО структурно-фазовые изменения силумина происходят только в поверхностном слое толщиной, не превышающей 60 мкм [9], не затрагивая общий объем. Ранее нами было показано [10], что стационарное температурное воздействие на покрытия на основе TiN в вакууме не приводит

к деградации и структурно-фазовому разрушению покрытий до температуры воздействия $1100\text{ }^{\circ}\text{C}$, из чего следует, что только режим $\tau = 50\text{ мкс}$, $N = 5$, $E_S = 15\text{ Дж/см}^2$, который приводит к нагреву до $1637\text{ }^{\circ}\text{C}$, может повлиять на разрушение покрытия.

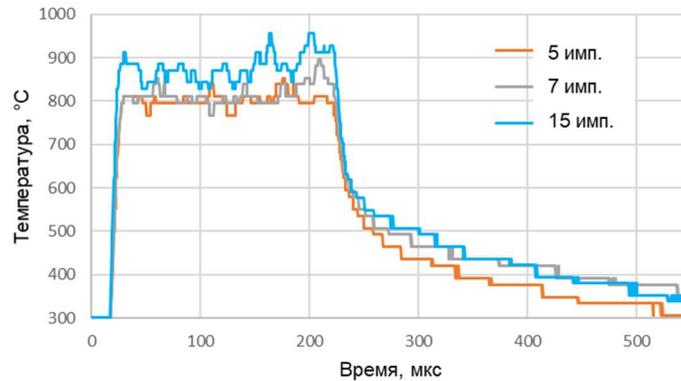


Рис. 4. Экспериментально полученные зависимости локальной температуры на поверхности силицированного образца с TiN-покрытием от времени при варьировании количеством импульсов воздействия ($\tau = 200\text{ мкс}$, $E_S = 15\text{ Дж/см}^2$).

Таблица 4. Температурные характеристики поверхности силицированных образцов с TiN-покрытием при ЭПО ($\tau = 200\text{ мкс}$, $N = 5\div 15$, $E_S = 15\text{ Дж/см}^2$).

Количество импульсов	5	7	15
Скорость роста температуры на фронте, К/с	$2.5 \cdot 10^7$	$2.5 \cdot 10^7$	$3.8 \cdot 10^7$
Максимальная температура на фронте, °C	810	810	913
Максимальная температура в течение импульса, °C	853	897	955

На основе полученных ранее результатов исследований свойств, состава и структурно-фазового состояния системы «нитридное покрытие/силицированная подложка» [4, 5] можно заключить, что высокоскоростной ввод энергии ($>6 \cdot 10^7\text{ К/с}$) при облучении системы «TiN-покрытие/силицированная подложка» электронным пучком приводит к локальному кратковременному нагреву системы до температуры $>1500\text{ }^{\circ}\text{C}$. Это приводит к разрушению TiN-покрытия, проникновению материала подложки в покрытие и ухудшению изначальных свойств системы. С другой стороны, по данным РФА- и ПЭМ-анализа, а также пирометрических измерений показано, что при более низких скоростях нагрева ($<6 \cdot 10^7\text{ К/с}$) электронным пучком локальный нагрев системы не превышает $1150\text{ }^{\circ}\text{C}$. Такое воздействие не приводит к разрушению нитридного покрытия и может быть использовано для улучшения характеристик системы «TiN-покрытие/силицированная подложка».

4. Выводы

1. Проведены экспериментальные пирометрические измерения локальной температуры системы «TiN-покрытие/силицированная подложка» непосредственно в зоне воздействия электронным пучком субмиллисекундной длительности и выявлены закономерности в зависимости от режимов электронно-пучкового воздействия.

2. Высокоскоростной ввод энергии ($>6 \cdot 10^7\text{ К/с}$) при импульсной ЭПО системы «TiN-покрытие/силицированная подложка» приводит к локальному кратковременному нагреву системы до температуры $>1500\text{ }^{\circ}\text{C}$ и деградации TiN-покрытия. При более низких скоростях нагрева ($<6 \cdot 10^7\text{ К/с}$) локальный нагрев системы не превышает $1150\text{ }^{\circ}\text{C}$, что не приводит по данным РФА- и ПЭМ-анализа к разрушению покрытия.

3. В неравновесных условиях, при ЭПО системы «TiN-покрытие/силицированная подложка» выявлен эффект увеличения температуры плавления системы на основе силицированной подложки по

экспериментально снятым с поверхности покрытия температурным зависимостям. При длительности импульса 200 мкс увеличение плотности энергии пучка с 10 до 20 Дж/см² приводит к увеличению температуры плавления материала на основе силумина с 750 до 830 °С; при 50 мкс – с ≈710 до ≈890 °С при переходе с 5 до 15 Дж/см². Данный эффект представляет интерес и требует дальнейшего более детального исследования.

Благодарности

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (проект FWRM-2021-0006).

5. Список литературы

- [1] O.V. Krygina, A.D. Teresov, P.V. Moskvina, N.N. Koval, Yu.F. Ivanov, Yu.Kh. Akhmadeev, I.V. Lopatin, Variation in the local material temperature during electron beam treatment and its influence on the modified layer properties, *Russian Physics Journal*, vol. **62**(7), 1139–1146, 2019, doi:10.1007/s11182-019-01828-3
- [2] Ю.Ф. Иванов, О.В. Крысина, Е.А. Петрикова, А.Д. Тересов, Структура и свойства поверхностного сплава Ti–Cu–Al–Si, синтезированного на силумине плавлением системы пленка (Ti–Cu)/подложка (Al–Si), *Известия вузов. Физика*, **57**, № 10/3, 156–160, 2014.
- [3] N.N. Koval, T.V. Koval, O.V. Krygina, Y.F. Ivanov, A.D. Teresov, P.V. Moskvina, M.K.A. Tran, N.A. Prokopenko, E.A. Petrikova, Experimental Study and Mathematical Modeling of the Processes Occurring in ZrN Coating/Silumin Substrate Systems under Pulsed Electron Beam Irradiation, *Coatings*, **11**, 1461, 2021, doi: 10.3390/coatings11121461
- [4] О.В. Крысина, Е.А. Петрикова, М.Е. Рыгина, Оптимизация режимов предварительной электронно-ионно-плазменной обработки поверхностного слоя силумина до нанесения нитридных покрытий, *Proceedings of 8th International Congress on Energy Fluxes and Radiation Effects*. Tomsk: TPU Publishing House, 985-991, 2022, doi:10.56761/EFRE2022.C3-P-948701
- [5] O.V. Krygina, Y.F. Ivanov, N.A. Prokopenko, A.D. Teresov, E.A. Petrikova, O.S. Tolkachev, Complex electron-ion-plasma treatment of silumin, *Materials.Technologies.Design*, **5**, 5(15), 52–64, 2023, doi: 10.54708/26587572_2023_551552
- [6] V.N. Devyatkov, N.N. Koval, S.V. Grigoriev, A.D. Teresov, Equipment for pulsed thermal treatment of the surfaces of materials by a low-energy electron beam, *High Temp. Mater. Process.*, vol. **17**, 187–194, 2013, doi: 10.1615/HighTempMatProc.2015013827
- [7] N.N. Koval, S.V. Grigoryev, V.N. Devyatkov, et al., Effect of Intensified Emission During the Generation of a Submillisecond Low-Energy Electron Beam in a Plasma-Cathode Diode, *IEEE Trans. Plasma Sci.*, vol. **37**, 10, 1890–1896, 2009.
- [8] В.М. Самсонов, И.В. Талызин, М.В. Самсонов, О влиянии скоростей нагрева и охлаждения на плавление и кристаллизацию металлических нанокластеров, *Журнал технической физики*, **86**, 6, 149–152, 2016, doi: 10.1134/S1063784216060207
- [9] Н.Н. Коваль, Т.В. Коваль, О.В. Крысина, и др., Экспериментальные исследования и моделирование импульсного электронно-пучкового воздействия на систему «ZrN-покрытие/подложка из силумина», *Proceedings of 8th International Congress on Energy Fluxes and Radiation Effects. Tomsk: TPU Publishing House*, 837–835, 2022, doi: 10.56761/EFRE2022.C2-P-936201
- [10] O.V. Krygina, Yu.F. Ivanov, N.N. Koval, S. Doyle, T. Baumbach, N.A. Timchenko, R.M. Galimov, Thermal stability of nanocrystalline ternary system coatings based on TiN, *Известия вузов. Физика*, 12/2, 179–183, 2012.