

# 强流脉冲离子束辐照对电弧离子镀 TiNbN 硬质薄膜摩擦磨损性能的影响\*

陈 军<sup>1</sup>, 林 莉<sup>2</sup>, 林国强<sup>1</sup>, 郝胜智<sup>1</sup>, 王富岗<sup>2</sup>

(1. 大连理工大学 三束材料改性国家重点实验室, 辽宁 大连 116024;

2. 大连理工大学 材料科学与工程学院, 辽宁 大连 116024)

**摘 要:** 利用分离靶电弧离子镀工艺在高速钢基体上制备 TiNbN 多元硬质薄膜, 利用 TEMP-6 型强流脉冲离子束(HIPIB)设备, 采用含 C/H 离子、加速电压 300 kV、脉冲宽度 70 ns、束流密度 60 A/cm<sup>2</sup> 的强流脉冲离子束对所制备的薄膜进行辐照处理, 研究辐照前后膜层的摩擦磨损性能的变化。实验结果表明: HIPIB 辐照以后, 薄膜的表面熔化, 摩擦系数降低, 晶粒细化, 膜层的硬度由 HK3444 提高到 HK3820, 膜基结合力由 59 N 提高到 65 N。在测试载荷 300 N 和 600 N 条件下, 薄膜的摩擦磨损性能均有较大改善。

**关键词:** TiNbN 硬质薄膜; 强流脉冲离子束; 膜基结合力; 摩擦磨损

**中图分类号:** TH117.1

**文献标识码:** A

硬质薄膜材料从 20 世纪 80 年代单一的 TiN 开始, 发展至今已得到了极大的丰富, 其应用也越来越广泛。与单层均质薄膜相比, 多元硬质薄膜具有较高的硬度、良好的耐磨性等优异的性能<sup>[1-2]</sup>。但由于膜层与基体之间的成分、组织和结构的差异, 致使膜层中存在较大的应力, 与基体的结合力较低, 容易引起薄膜的剥离和脱落, 薄膜的摩擦磨损性能也较差, 限制了硬质薄膜的深入应用<sup>[3]</sup>。强流脉冲离子束(HIPIB)技术起源于 20 世纪 70 年代末期, 在随后 20 多年的发展过程中, 该技术在材料领域的应用受到越来越多的关注和重视, 在材料表面改性和新材料合成等方面的巨大潜力已逐步显露<sup>[4-6]</sup>。目前, HIPIB 技术在材料改性方面的研究大部分局限于块体材料, 针对薄膜的改性的报道很少<sup>[7-9]</sup>。本研究采用电弧离子镀制备 TiNbN 多元硬质薄膜, 并采用 HIPIB 技术对所制备的薄膜进行辐照处理, 探讨 HIPIB 辐照对薄膜的摩擦磨损性能的影响。

## 1 实验方法

### 1.1 薄膜的制备

薄膜的合成在俄产 BULAT-6 型电弧离子镀设备上, 其结构如图 1 所示。

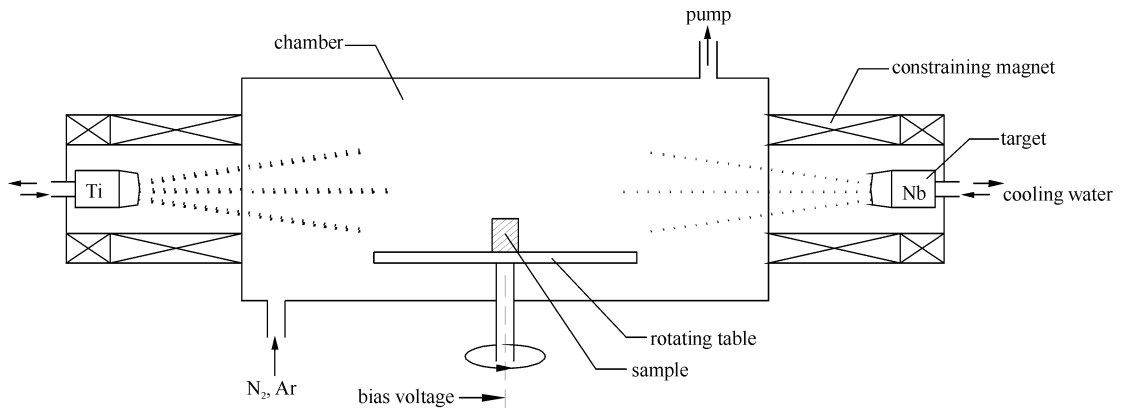


Fig. 1 Schematic diagram of BULAT-6 arc ion plating system

图 1 BULAT-6 型电弧离子镀设备示意图

实验中采用独立的纯 Ti 和纯 Nb 靶, 通过控制 Ti 和 Nb 靶的弧电流进行 TiNbN 薄膜的成分控制。选用淬火后中温回火的高速钢作为基体, 尺寸为 10 mm×10 mm×15 mm。在薄膜合成过程中, 维持试样的偏压在

\* 收稿日期: 2007-11-12; 修订日期: 2008-05-18

作者简介: 陈 军(1965—), 男, 副教授, 从事材料无损评价及材料表面工程研究; chenjun@dlut.edu.cn。

—300 V,总弧流在154~180 A,沉积温度在400~450 °C。采用能量散射谱(EDX)测试薄膜的化学成分,采用称重法测量膜层的厚度,在日本产DMH-2LS型超微载荷硬度计上测量膜层的努氏硬度HK,在日本产CSR-01划痕实验机上测试薄膜的膜基结合力,在美国产UMT-2型多功能摩擦磨损实验机上测量薄膜的摩擦系数。

TiNbN薄膜制备的工艺参数如表1所示,其中, $I_{Ti}$ , $I_{Nb}$ 分别为Ti靶和Nb靶的弧电流。

表1 TiNbN薄膜制备的工艺参数

Table 1 Parameters used in the TiNbN film preparation

$I_{Ti}/A$	$I_{Nb}/A$	deposition time/min	composition	thickness/ $\mu m$	hardness	adhesion/N
70	90	60	Ti <sub>0.45</sub> Nb <sub>0.55</sub> N	2.5	HK3444	59

## 1.2 HIPIB辐照

本研究的辐照实验是在TEMP-6型HIPIB装置上进行的,采用聚合物阳极单极脉冲磁绝缘离子二极管,离子束主要由C<sup>+</sup>(摩尔分数为30%)和H<sup>+</sup>(摩尔分数为70%)组成,装置加速电压300 kV,束流密度60 A/cm<sup>2</sup>,脉冲宽度70 ns,辐照3次。用JEM-5600LV型扫描电镜观察样品的表面形貌。HIPIB装置结构如图2所示。

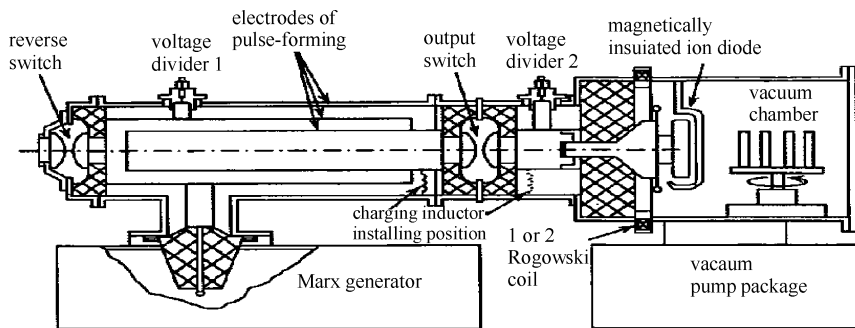


Fig. 2 Schematic diagram of TEMP-6 apparatus

图2 TEMP-6型HIPIB装置示意图

## 1.3 摩擦磨损实验

滑动摩擦磨损实验采用MM-200摩擦磨损实验机,机器转速为200 r/min,采用滴油润滑,测试载荷分别为300 N和600 N,测试时间为48 h。

## 2 实验结果与讨论

摩擦磨损实验结果表明,测试载荷分别在300 N和600 N时,磨损体积均显著减少,如表2所示。

表2 TiNbN薄膜辐照前后磨损体积的变化

Table 2 Comparison of wear volume measured on initial and HIPIB irradiated samples

load/N	wear volume/ $10^{-3} mm^3$		condition
	before irradiation	after irradiation	
300	2.471	1.663	counterface:GCr15 steel
600	3.217	2.816	for 48 h

薄膜摩擦磨损性能的改善是由于辐照后薄膜的硬度提高、膜基结合力增加、晶粒细化的结果。图3为薄膜辐照前后表面形貌的SEM照片,可以看出,辐照前膜层表面有许多颗粒,尺寸在1~3  $\mu m$ 。HIPIB辐照短时间内在材料表面注入离子射程( $\mu m$ 级深度)内产生高密度能量沉积,材料表面因强烈加热而急剧升温(可达 $10^{11}$  K/s),发生熔融、蒸发或烧蚀。辐照后,膜层表面熔化,出现了熔滴和熔坑。熔滴是烧蚀物质回流沉降于膜层表面形成的,而熔坑的产生是HIPIB辐照时,离子束的轰击使膜层表面颗粒飞溅产生凹坑,而极快的冷却速度(可达 $10^9$  K/s)使熔融物质无法完全充满凹坑而形成的。

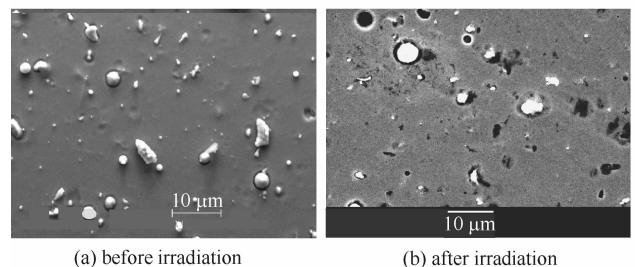


Fig. 3 Surface morphology of coatings

图3 HIPIB辐照前后的表面形貌

由于辐照离子能量较小,离子与薄膜的作用仅发生在表层几到几十 nm 范围内,因而在表面形成大量的位错和空位等缺陷,它们都成为膜层再结晶形核的核心,并且由于冷却速度极快使晶粒来不及长大,因而辐照后的晶粒细小(图 4),表面也趋光滑化。摩擦系数测量结果表明,辐照后薄膜的摩擦系数明显降低(图 5),这与梅显秀等<sup>[10]</sup>利用 HIPIB 辐照高速钢表面后所得的实验结果是一致的。

硬度的提高要归因于 HIPIB 的强脉冲能量效应。HIPIB 与材料表面相互作用时,材料表面层在数十 ns 的时间内急剧加热和冷却,在材料表面产生很高的温度梯度,加热时的准静态热应力和冷却时产生的高幅值应力,以及熔化形成的冲击应力波,导致表面层产生巨大的压应力(可达  $10^8$  Pa),使材料表面一定范围内的位错运动和增殖,位错间易于发生相互作用形成割阶、位错锁、胞状结构等,造成位错运动的障碍,从而提高了膜层的硬度和强度。测试表明,辐照后膜层的硬度由 HK3444 提高到 HK3820。

膜基结合力的提高也是膜层摩擦磨损性能改善的重要原因。图 6 是辐照前后的膜基结合力的变化。膜基结合力的提高,一方面由于离子束的辐照使膜层产生压应力,碰撞时的动量传递使薄膜内产生注入缺陷和间隙原子,使膜层孔洞减少,且薄膜内原子间距减小,组织致密化。另一方面可能是由于离子束的缝合效应,即通过级联碰撞,依靠穿过界面的离子的注入,使薄膜与基体的部分原子之间产生键合,从而增强了膜基结合强度。

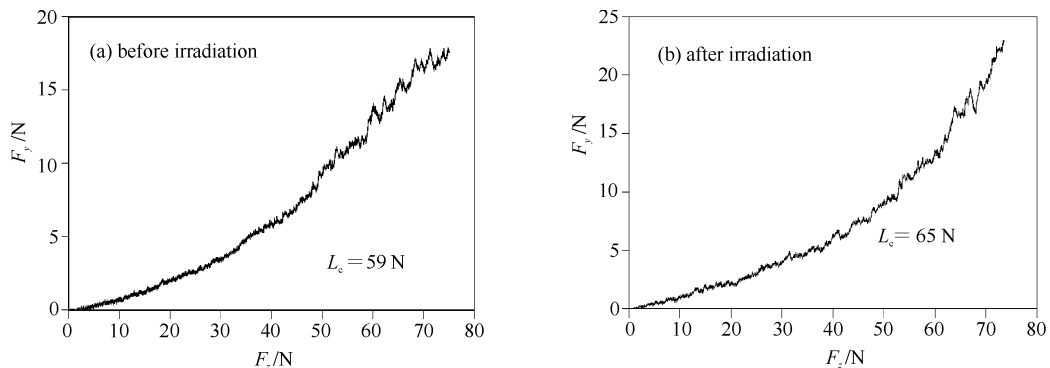


Fig. 6 Comparison of adhesion before and after irradiation

图 6 HIPIB 辐照前后膜基结合力的变化

### 3 结 论

利用高能量密度的强流脉冲离子束对多元硬质薄膜进行辐照处理可有效地改善薄膜的摩擦磨损性能。主要原因有以下几方面:(1)离子束辐照使薄膜表层熔化导致表面光滑化,摩擦系数降低,摩擦阻力减少;(2)由于离子束与薄膜表面的相互作用产生压应力,使薄膜内的位错运动和增殖,形成稳定的网络结构,阻碍了位错的运动,使薄膜的硬度增加;(3)离子束的辐照使薄膜的孔洞减少,组织致密化,并且通过级联碰撞产生离子束的缝合效应,增加了膜基结合力,从而提高了薄膜的摩擦磨损性能。

### 参考文献:

- [1] 马胜利,徐健,介万奇,等. PVCD 制备  $Ti_{1-x}Al_xN$  硬质薄膜的结构与硬度[J]. 金属学报, 2004, 40(6): 669-672. (Ma S L, Xu J, Jie W Q, et al. Characterization of microstructure and hardness of PVCD deposited  $Ti_{1-x}Al_xN$  hard coatings. *Acta Metallurgica Sinica*, 2004, 40(6): 669-672)

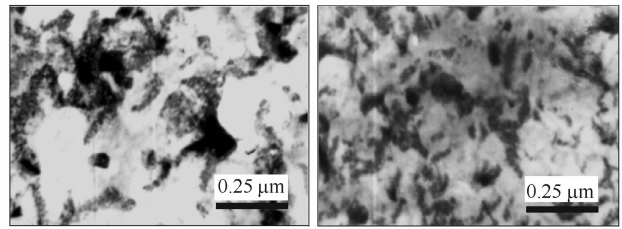


Fig. 4 Microstructure refinement induced by HIPIB irradiation

图 4 HIPIB 辐照前后的晶粒度变化

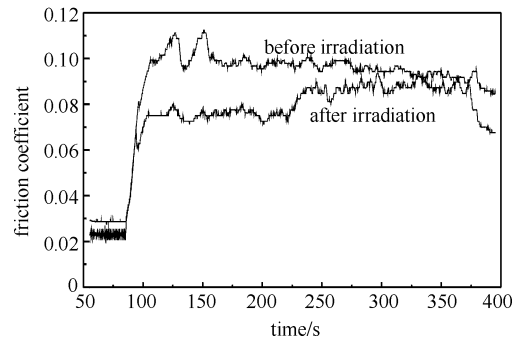


Fig. 5 Friction coefficients comparison

图 5 辐照前后薄膜摩擦系数的变化

- [2] Misina M, Musil J, Kadlec S. Composite TiN-Ni thin films deposited by reactive magnetron sputter ion-plating[J]. *Surface and Coatings Technology*, 1998, **110**:168-172.
- [3] Subramanian C, Strafford K L. Review of multi-component and multi-layer coatings for tribological applications[J]. *Wear*, 1993, **165**:85-95.
- [4] Johnson D J, Kuswa G W, Farnsworth A V, et al. Production of 0.5-TW proton pulses with a spherical focusing magnetically insulated diode[J]. *Physical Review Letters*, 1979, **42**:610-613.
- [5] Pogrebnjak A D, Remnev G E, Kurakin I B, et al. Structural, physical and chemical changes induced in metals and alloys exposed to high power ion beams[J]. *Nucl Instr and Meth in Phys Res B*, 1989, **36**:286-305.
- [6] Zhu X P, Lei M K, Ma T C. Characterization of a high-intensity bipobar-mode pulsed ion source for surface modification of materials[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2002, **73**(4):1728-1733.
- [7] Zhu X P, Lei M K, Dong Z H, et al. Crater formation on the surface of titanium irradiated by a high-intensity pulsed ion beam[J]. *Surface and Coatings Technology*, 2003, **173**:105-110.
- [8] 董志宏,徐忠成,苗收谋,等. 金属材料表面强流脉冲离子束辐照强化[J]. 金属热处理,2003,**28**(5):1-4. (Dong Z H, Xu Z C, Miao S M, et al. Surface strengthening of metallic materials irradiated by high-intensity pulsed ion beams. *Heat Treatment of Metals*, 2003,**28**(5):1-4)
- [9] 林莉,李继承,李喜孟,等. 基于反射系数法的 HIPIB 辐照 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 涂层特性超声表征[C]//第六届全国表面工程学术会议. 2006:1085-1090. (Lin L, Li J C, Li X M, et al. Ultrasonic characterization for Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> coatings irradiated by HIPIB based on reflection coefficient//The 6<sup>th</sup> Conference of Surface Engineering. 2006:1085-1090)
- [10] 孙文飞,梅显秀,李晓娜,等. 强流脉冲离子束辐照对 DZ4 合金性能的影响[J]. 强激光与粒子束,2006,**18**(12):2082-2086. (Sun W F, Mei X X, Li X N, et al. Effect on properties of alloy DZ4 irradiated by high-intensity pulsed ion beam. *High Power Laser and Particle Beams*, 2006, **18**(12):2082-2086)

## Effect of high-intensity pulsed ion beam irradiation on the tribological property of arc ion-plated TiNbN hard film

CHEN Jun<sup>1</sup>, LIN Li<sup>2</sup>, LIN Guo-qiang<sup>1</sup>, HAO Sheng-zhi<sup>1</sup>, WANG Fu-gang<sup>2</sup>

(1. State Key Laboratory of Material Modification, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China;

2. School of Material Science and Engineering, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China)

**Abstract:** The TiNbN hard film have been prepared on high-speed steel by arc ion-plating using separate targets. The prepared film are irradiated by high-intensity pulsed ion beam(HIPIB) of mixing proton and carbon ions at accelerating voltage of 300 kV with pulse width of 70 ns, at ion current density of 60 A/cm<sup>2</sup> on TEMP-6 type HIPIB apparatus. The friction and wear behaviors of non-irradiated and irradiated film are investigated under loads of 300 N and 600 N, respectively. The HIPIB irradiation leads to grain size reduction of the film, by which the hardness of film is enhanced from HK3444 to HK3820, and the bonding strength between film and substrate increases from 59 N to 65 N. The irradiated film has significant improvements in friction and wear characteristics.

**Key words:** TiNbN hard film; High-intensity pulsed ion beams; Film-substrate adhesion; Friction and wear