

Циклические закономерности проявления акустической эмиссии при плазменно-электролитическом оксидировании Al–Mg сплава в биполярном режиме

© 2023

*Растегаев Игорь Анатольевич*¹, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник НИИ прогрессивных технологий

*Шафеев Марат Равилович*², младший научный сотрудник НИИ прогрессивных технологий

*Растегаева Инна Ивановна*³, старший преподаватель кафедры «Нанотехнологии, материаловедение и механика»

*Полунин Антон Викторович*⁴, кандидат технических наук,

ведущий научный сотрудник НИИ прогрессивных технологий

*Криштал Михаил Михайлович*⁵, доктор физико-математических наук,

профессор, главный научный сотрудник НИИ прогрессивных технологий

Тольяттинский государственный университет, Тольятти (Россия)

*E-mail: RastIgAev@yandex.ru,
I.Rastegaev@tltstu.ru

¹ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-3807-8105>

²ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-4490-6547>

³ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-7634-2328>

⁴ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-8484-2456>

⁵ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-7189-0002>

Поступила в редакцию 03.05.2023

Принята к публикации 13.06.2023

Аннотация: Проанализированы особенности проявления сигналов акустической эмиссии (АЭ) при плазменно-электролитическом оксидировании (ПЭО) алюминиевого сплава AlMg6 в биполярном (анодно-катодном) импульсном режиме внутри каждого цикла приложения напряжения. Исследован диапазон режимов ПЭО, который практически полностью перекрывает все типовые технологические режимы обработки алюминиевых сплавов по плотностям тока (6–18 А/дм²) и токовому соотношению в полупериодах (0,7–1,3), что позволило зафиксировать и изучить АЭ, сопровождающую формирование оксидных слоев различного назначения. Впервые благодаря регистрации АЭ выявлена новая стадия ПЭО, на которой отсутствует микродуговой пробой до подложки, но которая сопровождается приростом толщины слоя и природа которой пока не выяснена. По известным признакам стадий оксидирования систематизированы повторяющиеся формы проявления АЭ в циклах воздействия и установлено пять их типов и три подтипа. Показано, что используемый сегодня подход установления стадий ПЭО по параметру «амплитуда акустической эмиссии» обладает большой погрешностью, так как не учитывает форму сигналов и полупериод их регистрации. Поэтому разработан и апробирован подход анализа кадров АЭ синхронно с циклами изменения формовочного напряжения при ПЭО и предложен новый параметр «акустико-эмиссионная медиана», позволяющий выявить основные типы и подтипы сигналов, сопровождающих стадии оксидирования. Выполнено экспериментальное исследование предложенного параметра оценки АЭ для обнаружения названных стадий ПЭО, которое подтвердило работоспособность, большую точность и чувствительность предложенного параметра к подтипам сигналов АЭ, регистрируемых на катодной стадии «мягкого искрения». Последнее представляет особый интерес, так как является средством исследования данной стадии оксидирования с разрешающей способностью, равной циклу воздействия.

Ключевые слова: алюминиевый сплав; плазменно-электролитическое оксидирование; акустическая эмиссия; микродуговые разряды.

Благодарности: Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект № 20-79-10262, <https://rscf.ru/project/20-79-10262/>).

Для цитирования: Растегаев И.А., Шафеев М.Р., Растегаева И.И., Полунин А.В., Криштал М.М. Циклические закономерности проявления акустической эмиссии при плазменно-электролитическом оксидировании Al–Mg сплава в биполярном режиме // *Frontier Materials & Technologies*. 2023. № 2. С. 103–116. DOI: 10.18323/2782-4039-2023-2-64-8.

ВВЕДЕНИЕ

Сегодня одним из актуальных вопросов технологии плазменно-электрического, или микродугового, оксидирования (ПЭО или МДО) поверхности изделий из металлов вентильной группы (Al, Mg, Ti, Zr, Nb и др.) является обеспечение мониторинга процесса формирования многофункционального оксидного «покрытия»

(оксидного слоя). Под многофункциональностью покрытий, согласно [1], понимается возможность их применения в разных областях науки и техники при условиях, резко отличающихся по основным повреждающим факторам (механико-химическим, химико-тепловым, механо-электрическим и т. д.). Известно [2], что способность сопротивляться воздействию внешних и внутренних повреждающих факторов обеспечивают

физико-химические свойства оксидных слоев (адгезия, твердость, износостойкость и др.), которые, в свою очередь, определяются комплексом характеристик и факторов – структурных (толщиной, пористостью, остаточными микронапряжениями и др.), фазовых (качественным и количественным составом), морфологией самого слоя и его дефектностью [2]. Многими авторами показано, что однородность свойств оксидных слоев по толщине (подслоям) зависит от параметров процесса ПЭО, а именно частоты формовочных импульсов и плотности тока [3], наличия катодной составляющей тока [4; 5] и ее мощностного соотношения с анодной составляющей [6], состава электролита [7] и его качества [8], которые в совокупности определяют типы формирующихся разрядов и их мощность [9]. В частности, в [3] установлено, что применение повышенных плотностей тока ($70\text{--}90\text{ А/дм}^2$) в сочетании с высокими частотами формовочных импульсов (вплоть до 900 Гц) приводит к снижению пористости и неоднородности оксидных слоев за счет снижения поверхностной плотности микроразрядов. В [4; 5] авторы установили, что повышение катодной составляющей при ПЭО алюминиевого сплава и переход в режим «мягкого искрения» (“soft sparking”) может приводить к возникновению развитой наноразмерной пористости в сочетании с уплотнением барьерного слоя на границе раздела «металлическая подложка – оксидный слой» [4], что наблюдается и при ПЭО магниевого сплава [6]. В [5] было обнаружено, что катодный полупериод (отрицательная поляризация) при ПЭО алюминиевого сплава приводит к дополнительному образованию гидроксида алюминия со снижением сопротивления микродуговому пробое барьерного слоя и последующему образованию устойчивых модификаций Al_2O_3 в результате дегидратации $\text{Al}(\text{OH})_3$ в анодном полупериоде и к уплотнению барьерного слоя, что в итоге улучшает однородность и защитные свойства оксидных слоев. Таким образом, возможность *in situ* мониторинга процесса ПЭО, распознавания его стадии, типа микродугового пробоя и возникающего микродугового разряда (МДР) позволяет установить механизм окисления поверхности и формирования оксидного слоя в данный момент времени, а значит, на этапе отработки режимов ПЭО организовать обратную связь для управления энергией, выделяющейся в каналах пробоя МДР непосредственно в процессе окисления, т. е. управлять качеством и функциональными свойствами оксидных слоев.

В настоящее время уже предложено и апробировано несколько методов мониторинга процесса ПЭО: отслеживание электрических параметров в цепи ПЭО [10; 11], электрическая импедансная спектроскопия оксидных слоев [12], отслеживание интенсивности свечения с использованием высокоскоростной фотовидеофиксации [13; 14], регистрация фото-ЭДС [15], оптико-эмиссионная спектроскопия [16], инфракрасная термометрия [17], мониторинг толщины покрытия различными бесконтактными способами [18], акустическое излучение (АЭ в звуковом и ультразвуковом диапазонах). Звуковой диапазон используется редко по сравнению с ультразвуковым, так как обладает существенно более низкой помехозащищенностью [19], поэтому в настоящей работе рассматривается АЭ только в ультразвуковом диапазоне.

Отслеживание АЭ представляется одним из наиболее перспективных методов мониторинга ПЭО, так как упругие волны сопровождают процесс релаксации запасенной энергии при достаточно широком спектре известных физико-химических явлений [20]. Однако, насколько нам известно, в работах по исследованию АЭ при ПЭО пока удалось установить только первичную корреляцию стадий окисления с интегральными характеристиками акустического излучения без детализации особенностей регистрируемых АЭ сигналов на них. Так, в [21; 22] обсуждается связь акустического излучения с режимами ПЭО в категориях «увеличения» и «снижения» его уровня даже без уточнения параметров оценки сигналов АЭ. В [23] с помощью АЭ пороговым методом была показана корреляция сигналов АЭ с этапом развития формовочных разрядов (искрением, микродуговыми и дугowymi разрядами), а в [24] – корреляция трендов накопления счетов при АЭ и кинетики роста оксидных слоев на сплаве Д16. В [25] авторы показали, что с ростом толщины оксидного слоя наблюдается смещение акустического сигнала в более низкочастотную и высокоамплитудную область, что, по их мнению, свидетельствует о локализации и повышении мощности единичного МДР. В [26] акустико-эмиссионный мониторинг процесса ПЭО и критериальная оценка изменения амплитуды АЭ позволили повысить качество оксидных слоев и его воспроизводимость на сплаве Д16АТ. В [27; 28] на фоне отслеживания трендов изменения энергии АЭ сделана попытка разделения акустических сигналов на импульсный и непрерывный (резонансный) виды с последующим описанием их параметрами: амплитуда, энергия, время нарастания и частота при пике. В [29] представлены предварительные результаты записи сигналов АЭ, полученных при ПЭО образцов АМг6, и, в частности, установлена синхронность регистрации сигналов АЭ с циклом воздействия и показана корреляция их временного положения с визуальными наблюдениями и литературными данными оптических измерений с использованием фотовидеофиксации и фото-ЭДС, а также электрическими параметрами ПЭО. Однако выявление стадий протекания процесса ПЭО путем сопоставления их визуальных признаков с амплитудными признаками АЭ дает существенную ошибку в идентификации стадии и требует более детального понимания проявления АЭ внутри цикла воздействия.

Анализ обозначенных работ показал, что параметрические распределения использованных основных параметров оценки АЭ существенно перекрываются (накладываются), поэтому построение на них диагностических признаков стадий ПЭО имеет высокую вероятность ошибки в идентификации типа формирующихся МДР. Следовательно, для повышения чувствительности метода АЭ требуются другие подходы к оценке акустических сигналов.

Цель работы – выявление особенностей акустической эмиссии в цикле биполярного импульсного электрического воздействия на окисляемый материал (на примере алюминиевого сплава АМг6) при плазменно-электролитическом окислении (ПЭО) как основы разработки нового метода контроля ПЭО для сокращения времени подбора его оптимального режима за счет более точного выявления границ различных стадий процесса окисления.

МЕТОДИКА ПРОВЕДЕНИЯ ИССЛЕДОВАНИЯ

Предметом исследований является АЭ, сопровождающая формирование оксидных слоев на Al–Mg сплаве AMg6 (зарубежный аналог – сплав 1560, химический состав, мас. %: 6,2 Mg; 0,65 Mn; 0,5 Ti; 0,4 Si; 0,3 Fe; 0,18 Zn; 0,087 Cu; Al – основа) при различных режимах биполярного анодно-катодного импульсного воздействия.

Образцы для исследований имели габаритные размеры $(140 \times 20 \times 6) \text{ мм}^3$, которые с целью установки датчика АЭ непосредственно на образец погружались в электролит не полностью. В результате при ПЭО оксидировалась только часть образца размерами $(60 \times 20 \times 6) \text{ мм}^3$. Оставшаяся часть образца изолировалась с помощью электроизоляционного лака и эпоксидной смолы, которая служила контактной средой и держателем датчика АЭ на образце.

ПЭО проводили на оригинальной исследовательской установке, изготовленной в Тольяттинском государственном университете, состоящей из: ванны из нержавеющей стали объемом 15 л, внешней системы охлаждения на базе теплообменника типа «жидкость/жидкость» и циркуляционного насоса для термостатирования электролита; импульсного инверторного источника тока питания пиковой мощностью 40 кВт с компьютерной системой управления режимами ПЭО по току и напряжению в специализированном программном обеспечении LabVIEW. В работе использовался биполярный (анодно-катодный) импульсный режим формирования оксидных слоев как наиболее эффективный и перспективный с точки зрения получения наилучшего качества и свойств оксидных слоев, а также позволяющий без учета катодной составляющей перенести полученные результаты анализа АЭ на анодный режим ПЭО.

Экспериментальными постоянными при всех режимах ПЭО являлись частота импульсов формовочного тока – 500 Гц, т. е. длительность цикла воздействия при ПЭО – 2 мс; коэффициент заполнения периода импульсов технологического тока – 65 %; соотношение длительностей катодного и анодного формовочных импульсов – 55 %/45 % соответственно; паузы между катодным и анодным импульсом – 50 %; состав электролита и его температура; длительность ПЭО – 180 мин.

Варьировали в эксперименте среднеквадратичную плотность тока j , А/дм² (6; 9; 12; 15 и 18 А/дм²) через образец и соотношение токов в катодном и анодном полупериодах C/A (0,70; 0,85; 1,00; 1,15 и 1,30), которые задавались при инициации процесса ПЭО и далее поддерживались постоянными системой управления установки. Итого АЭ регистрировали в 25 режимах ПЭО, которые практически полностью перекрывают известные и применяемые на сегодня режимы формирования оксидных слоев на алюминиевых сплавах и, следовательно, все стадии процесса ПЭО (анодную пассивацию, анодное искрение, анодно-катодное МДО и режимы мягкого искрения [30]) и типы МДР (анодное искрение, анодный микродуговой и катодный микродуговой разряды, анодный дуговой и катодный дуговой разряды, а также разряды типов А, В и С [31; 32]).

В качестве электролита применяли водный раствор на основе гидроксида калия КОН (3 г/л), пирофосфата натрия $\text{Na}_4\text{P}_2\text{O}_7 \times 10\text{H}_2\text{O}$ (8 г/л) и метасиликата натрия

$\text{Na}_2\text{SiO}_3 \times 5\text{H}_2\text{O}$ (12 г/л). Температура электролита в ходе ПЭО поддерживалась внешней системой охлаждения на уровне $(285 \pm 3) \text{ К}$.

АЭ регистрировалась непосредственно с образца, что определяло минимальные коэффициенты искажения и затухания сигналов. Акустические сигналы преобразовывались в электрические с помощью пьезоэффекта датчиком П111-(0,02-0,3) (Россия) с полосой пропускания 20–800 кГц с основной чувствительностью в диапазоне частот до 300 кГц. Далее сигналы усиливались двухкаскадным широкополосным фильтром-усилителем MSAE-FA010 (Россия), оцифровывались и записывались кадрами длительностью 40 мс (20 полных циклов воздействия) через 1 мин с помощью 12-битной платы аналого-цифрового преобразования (АЦП) Advantech PCI-1714 (Тайвань) при частоте дискретизации 2 МГц, что обеспечивало частотный диапазон анализа АЭ до 1 МГц. Таким образом, в отличие от работ, использовавших пороговый способ регистрации АЭ, пропуск в записи изменения АЭ внутри зарегистрированных циклов воздействия в наших исследованиях был исключен. При этом на АЭ кадр записи равного цикла воздействия приходится 4000 отсчетов ($4000 \text{ отсч.} / 2 \text{ МГц} = 2 \text{ мс}$). Синхронно с акустическими сигналами с помощью того же АЦП записывались кадры изменения напряжения и тока также по циклам ПЭО.

Подробно технические особенности и проблемы получения сигнала АЭ и защиты датчика в условиях нахождения оксидируемого образца в электролите описаны нами в работе [29].

Измерения толщин оксидных слоев проводили с помощью вихревого толщиномера Константа К6 (Россия) с датчиком-преобразователем ПД1, а также на поперечных металлографических шлифах с помощью сканирующего электронного микроскопа Jeol JCM-6000 Neoscope II (Япония). Измерения микротвердости HV 0,1 проводили на поперечных шлифах в соответствии с ГОСТ Р 8.748-2011 на динамическом микротвердометре Shimadzu DUN-211S (Япония). Износостойкость (линейную интенсивность изнашивания) оценивали по методике ASTM G133 на трибометре Nanovea TRB-50N (США). Более подробно особенности измерения толщин, твердости и износостойкости полученных оксидных слоев по указанным методикам и полученные результаты описаны в [33; 34].

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Амплитудно-временные особенности АЭ при ПЭО

Регистрация АЭ совместно с визуальным отслеживанием процесса ПЭО показала, что основным стадиям ПЭО присущи характерные признаки сигналов АЭ, которые эволюционируют синхронно с наблюдаемыми МДР (рис. 1). В начальный момент времени происходит пассивация поверхности анода и формирование «барьерного слоя» в результате химического анодирования и первичных микродуговых пробоев, что сопровождается возникновением и быстрым нарастанием амплитуды АЭ (рис. 1, стадия I). По мере «укрепления» барьерного слоя с одновременным образованием оксидного слоя МДР усиливаются, начинают объединяться в каскады

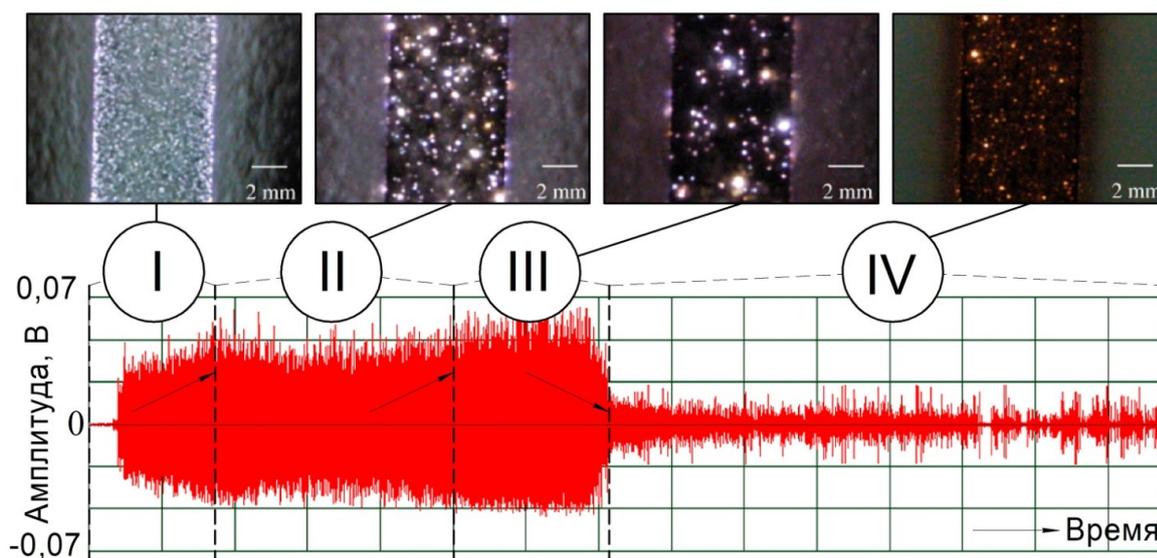


Рис. 1. АЭ признаки стадий ПЭО в эксперименте и визуальные признаки микродуговых разрядов на образце при ПЭО в схожих условиях [14]:

I – анодная пассивация и начало искрения; II – ПЭО с выраженными микродуговыми разрядами;
III – стадия анодно-катодного ПЭО; IV – стадия «мягкого искрения» (“soft sparking”).

Длительность развертки записи по горизонтальной оси – 180 мин

Fig. 1. AE signs of PEO stages in the experiment and visual signs of microarc discharges on the sample during PEO under similar conditions [14]:

I – anodic passivation and the beginning of sparking; II – PEO with the pronounced microarc discharges;
III – anode-cathode PEO stage; IV – “soft sparking” stage.

Record sweep duration along the OX (horizontal) axis – 180 minutes

и даже переходить в отдельные (точечные) дуговые разряды на стадиях II и III (рис. 1), что сопровождается сигналами АЭ практически постоянной (рис. 1, стадия II) и повышенной (рис. 1, стадия III) амплитуды. Затем для большинства исследованных режимов наступает стадия IV с резким падением амплитуды сигнала АЭ, что совпадает с практически полным визуальным исчезновением горящих МДР и переходом процесса ПЭО в режим «мягкого искрения» (“soft sparking”).

В процессе сопоставления разверток записей АЭ и временных меток стадий I–IV (рис. 1), полученных при визуальных наблюдениях изменения свечения образца в ходе ПЭО, были сформированы АЭ признаки границ стадий ПЭО (рис. 1). В качестве образцовых визуальных границ стадий ПЭО были приняты стоп-кадры скоростной видеозаписи, приведенные в [14] и аналогичные нашему эксперименту. Установлено, что за АЭ признак границы перехода от стадии I к стадии II ПЭО можно принять первый пик АЭ, наблюдаемый после начала оксидирования (рис. 1, стадия I). За АЭ признак границы перехода от стадии II к стадии III ПЭО – начало второго пика АЭ, сопоставимого с уровнем первого пика АЭ или превышающего его (рис. 1, стадия II). За АЭ признак границы перехода от стадии III к стадии IV ПЭО – начало участка записи с резким падением амплитуды АЭ (рис. 1, стадия III). Однако видно (рис. 1), что амплитудные «метки» и оценки течения ПЭО имеют временную неоднозначность и, соответственно, дают погрешность при in situ мони-

торинге процесса, поэтому их применение недопустимо в случае необходимости жесткого ограничения по переходу с одной стадии на другую для достижения именно нужного комплекса функциональных свойств слоя.

Результаты разделения исследованных вариантов ПЭО на стадии с использованием приведенных на рис. 1 амплитудных АЭ признаков представлены на рис. 2.

Циклические закономерности проявления АЭ при ПЭО

Если синхронизировать запись АЭ с циклами изменения напряжения так, чтобы начало кадра записи АЭ приходилось на начало анодного полупериода импульса ПЭО, а длина кадра записи АЭ была равна полной длительности цикла воздействия, то все наблюдаемые на различных режимах ПЭО сигналы АЭ по местоположению в цикле воздействия можно разделить на анодные, анодно-катодные и катодные. При этом из-за того, что время записи АЭ больше длительности пакета сигналов, по форме они все становятся импульсного (дискретного) вида (рис. 3). Сигналы непрерывного вида при таком подходе записи и анализе АЭ не наблюдались. Отметим, что исчезновение сигнала АЭ наблюдается как при смене полярности формовочного импульса, так и во время самого импульса (рис. 3).

Все особенности внешнего вида сигналов, зарегистрированных на исследованных режимах ПЭО, можно свести к формам, представленным на рис. 3.

Отдельно отметим, что на рис. 3 в осцилляции на кривой формовочного напряжения $V(t)$ (синяя линия)

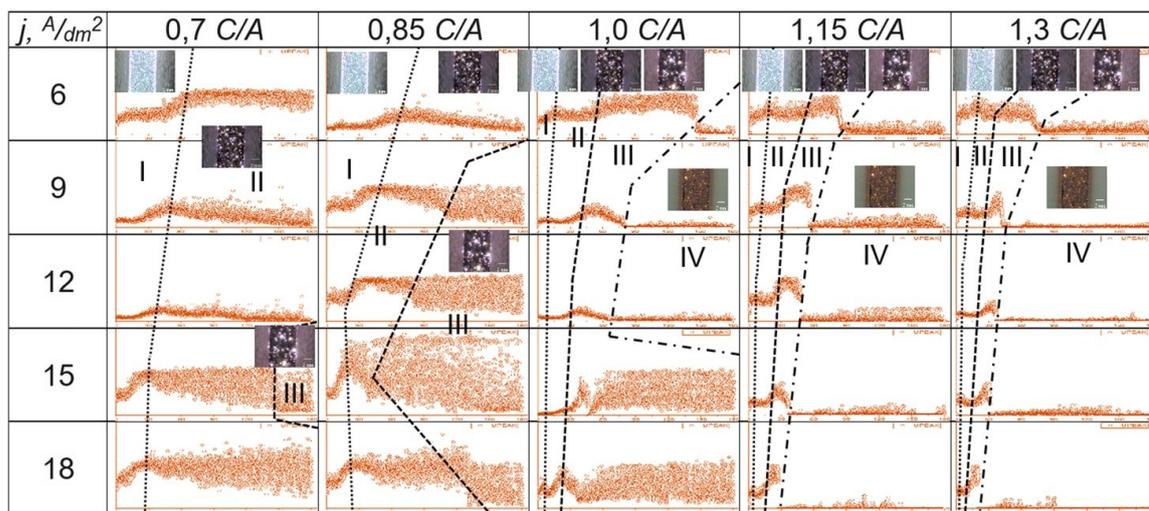


Рис. 2. Общий характер изменения амплитуды АЭ в 25 режимах ПЭО, отличающихся плотностью тока j , A/dm^2 и соотношением токов в полупериодах C/A , при длительности токовой оксидации 180 мин с разделением на стадии согласно визуальным и амплитудным АЭ признакам, показанным на рис. 1.

Размер осей на графиках фиксированный: по оси Ox – 180 мин, по оси Oy – 0,15 В

Fig. 2. General nature of the change in the AE amplitude in 25 PEO modes, differing in current density j , A/dm^2 and the ratios of the positive to negative pulse currents C/A , at the oxidation duration of 180 minutes with a division into stages according to the visual and amplitude AE features shown in Fig. 1.

The sizes of the axes on the graphs are fixed: along the Ox (horizontal) axis – 180 minutes, along the Oy (vertical) axis – 0.15 V

связаны со схмотехническими особенностями источника питания и не наблюдались в проводимом эксперименте, что связано с конструкцией источника питания, отличной от применяемого в [15].

На стадии I ПЭО с визуальными признаками анодирования и начала анодного искрения (рис. 1 и 2) во всех исследованных режимах сигналы АЭ регистрируются только в анодном полупериоде (U_A) (рис. 3 а). Сигналы АЭ представляют собой пачку перекрывающихся импульсных сигналов с приблизительно равной амплитудой, затухающей по мере снижения амплитудного напряжения формовочного импульса (рис. 3 а, I). Длительность пачки АЭ сигналов стадии I ПЭО занимает порядка 60 % длительности полупериода цикла, и ее начало смещено от начала цикла. Смещение начала и конца пачки АЭ сигналов от границ анодного полупериода свидетельствует о наличии минимального напряжения, необходимого для начала процесса окисления, а постепенное увеличение и уменьшение амплитуды в начале и конце пачки АЭ сигналов – о постепенном увеличении/уменьшении масштаба процессов или же его волнообразности, т. е. когда в рамках одного полупериода возникает несколько «волн», или каскадов, МДР.

АЭ сигналы данного вида сведены в таблицу 1 и параметрически в амплитудно-временной области для стадии I удовлетворяют условию (1) в этой таблице. АЭ признаки стадии I ПЭО (в зависимости от режима) наблюдаются до толщин оксидных слоев 0,4–14,0 мкм, а далее процесс переходит на стадию II.

На стадии II ПЭО с четкими визуальными признаками возникновения МДР, отличающихся большей яркостью и интенсивностью перемещения по аноду по сравнению со стадией I, также регистрируются сигналы АЭ только в анодном полупериоде (U_A) (рис. 3 а, II). По виду они часто близки к форме сигналов стадии I ПЭО, но имеют явно выраженные высокоамплитудные им-

пульсы (рис. 3 а, II). По длительности пачки АЭ сигналы на стадии II ПЭО занимают от 60 до 100 % длительности анодного полупериода (полупериода), и их начало также смещено от начала цикла. При этом высокоамплитудные АЭ импульсы (выбросы) регистрируются в разных частях пачки АЭ сигналов. Параметрически в амплитудно-временной области АЭ сигналы стадии II ПЭО удовлетворяют условию (2) в таблице 1.

На стадии III ПЭО (рис. 3 а, III) АЭ имеет различные пачки сигналов в анодном (U_A) и катодном (U_{C0}) полупериодах цикла воздействия, т. е. с помощью АЭ фиксируются зажигающиеся МДР в обоих полупериодах. Основным АЭ признаком этой стадии является то, что суммарная энергия (мощность) сигналов в анодном полупериоде выше, чем в катодном (рис. 3 а, III), поэтому параметрически в амплитудно-временной области АЭ сигналы данного вида удовлетворяют условию (3) в таблице 1. Так же, как и в анодной части, в катодном полупериоде сигналы АЭ (U_{C0}) не имеют циклической повторяемости по времени и могут находиться в любой части катодного полупериода (импульс U_{C0} на рис. 3). Данное поведение можно объяснить необходимостью достижения заданного тока в катодном полупериоде, которое не может быть обеспечено только процессом течения электронов через микропористые каналы в образце. Как следствие, при достижении некоторой толщины оксидного слоя (порядка 20–50 мкм) в катодном полупериоде амплитудные напряжения достигают 200–250 В, что достаточно для пробоя барьерного слоя и приводит к зажиганию МДР с сопутствующим резким увеличением тока [32]. АЭ признаки стадии III ПЭО в зависимости от режима ПЭО в проведенном эксперименте начинают проявляться на толщинах покрытий 2,7–51,5 мкм, что существенно уточняет момент зажигания катодных МДР при ПЭО алюминиевого сплава относительно данных работы [32].

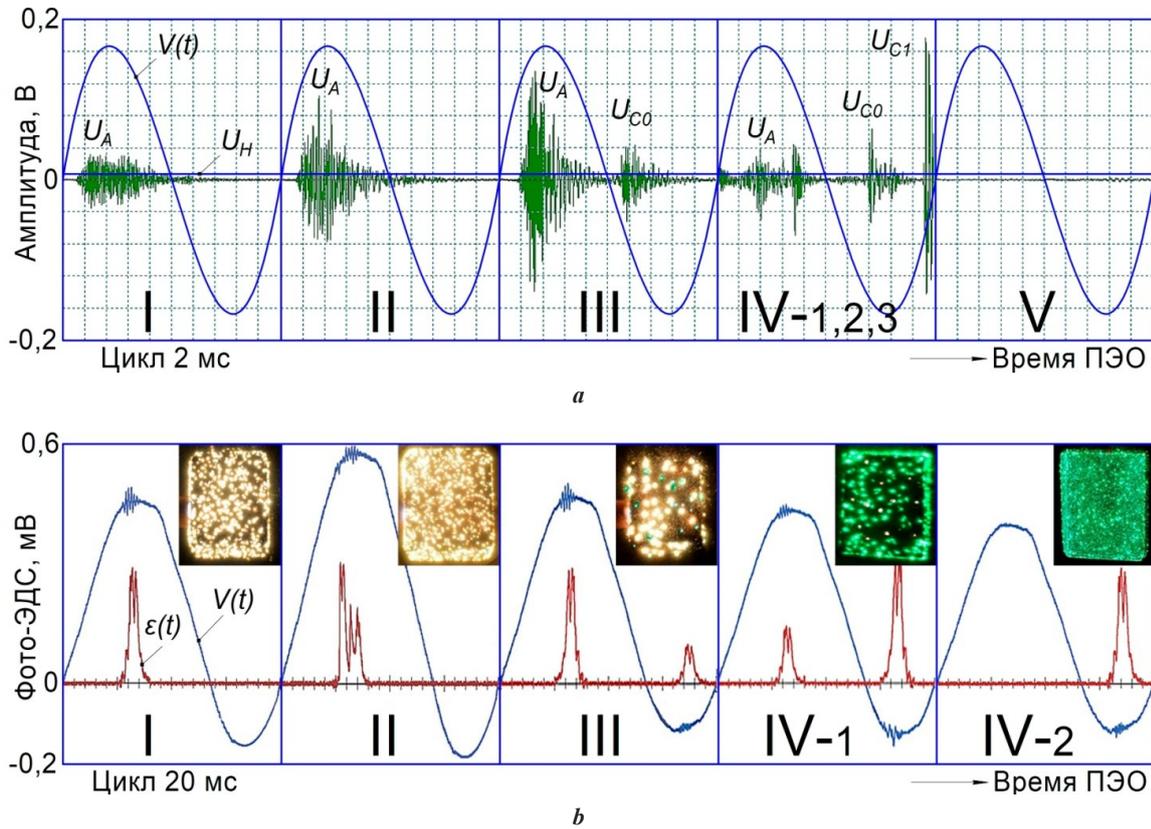


Рис. 3. Основные формы проявления АЭ, наблюдаемой на стадиях ПЭО I–V (а), и сравнение с данными [15] по регистрации фото-ЭДС $\epsilon(t)$ с видеокдрами стадий ПЭО при схожих условиях (б).

I–V – установленные по АЭ признакам стадии режима ПЭО;

U_A и U_{C1} – амплитуда сигнала АЭ в анодном и катодном полуциклах;

U_N – среднеквадратичное значение шума;

U_H или черная линия – среднеквадратичное значение сигналов АЭ на начало ПЭО;

$V(t)$ или синяя линия – кривая изменения формовочного напряжения, показывающая анодную и катодную часть цикла воздействия.

U_A , U_{C1} , U_H и U_N отсчитываются в В или дБ относительно 1 мкВ в соответствии с ГОСТ 55045-2022.

В последнем случае те же величины обозначаются как L_{U_A} , $L_{U_{C1}}$, L_{U_H} и L_{U_N}

Fig. 3. The main forms of AE signals observed at I–V PEO stages (a) and the comparison with the data [15] on recording photo-EMF $\epsilon(t)$ with video frames of PEO stages under similar conditions (b).

I–V – PEO mode stages discovered by AE features;

U_A and U_{C1} – the AE signal amplitude in the anode and cathode half cycles;

U_N – noise RMS value;

U_H or the black line – RMS value of AE signals at the beginning of PEO;

$V(t)$ or the blue line – the voltage change curve showing the anode and cathode parts of the exposure cycle.

U_A , U_{C1} , U_H and U_N are measured in V or dB of reference 1 mV in accordance with

Russian National Standard GOST 55045-2022. In the latter case, the same magnitudes are marked as L_{U_A} , $L_{U_{C1}}$, L_{U_H} and L_{U_N}

Главным отличием стадии IV ПЭО («мягкое искрение» / “soft sparking” [14; 22]) от предыдущих является то, что АЭ имеет энергию (мощность) сигналов в катодном полупериоде выше, чем в анодном (рис. 3 а, IV). Учитывая это общее условие сигналов типа IV, здесь выявлены следующие подтипы: IV-1 – АЭ фиксируется в анодном и катодном полупериодах и удовлетворяет условию (4) (таблица 1); IV-2 – АЭ присутствует только в катодном полупериоде, т. е. выполняется условие (5) (таблица 1); IV-3 – фиксируются АЭ сигналы типа IV-2, в которых помимо катодных сигналов U_{C0} с описанными выше признаками на стадиях III и IV ПЭО наблюдается сигнал U_{C1} (рис. 3 а, IV). Физическая природа сигналов U_{C1} пока не вполне понятна и требует дополни-

тельных исследований, но по времени они регистрируются всегда в конце катодного полупериода. Параметрически в амплитудно-временной области АЭ сигналы типа IV-3 удовлетворяют условию (6) (таблица 1).

Известно [4; 32], что МДР в катодном полупериоде возникает при толщине покрытия более 40÷50 мкм, что согласуется со временем появления АЭ сигналов стадии IV с нашими измерениями толщины покрытий [29; 34], но только на режимах 0,7 С/А и 0,85 С/А при плотностях тока 9÷18 А/дм². На остальных режимах (С/А=1,0; 1,15 и 1,3), где есть стадия IV ПЭО, АЭ сигналы данного типа начинают регистрироваться при толщинах покрытия от 8,8÷36,9 мкм, т. е. на них стадия «мягкого искрения» начинает возникать существенно раньше.

Таблица 1. Стадии ПЭО и параметрические условия сигналов АЭ в них
Table 1. PEO stages and parametric conditions of AE signals in them

Стадия ПЭО	Тип АЭ	Параметрические условия идентификации стадий ПЭО в амплитудно-временной области АЭ
I	I	$L_{U_H} > L_{U_N} + 3\text{дБ}; L_{U_A} < L_{U_H} + 6\text{дБ}; L_{U_{C0}} \text{ и } L_{U_{C1}} \leq L_{U_N} + 3\text{дБ}$ (1)
II	II	$L_{U_H} > L_{U_N} + 3\text{дБ}; L_{U_A} > L_{U_H} + 6\text{дБ}; L_{U_{C0}} \text{ и } L_{U_{C1}} \leq L_{U_N} + 3\text{дБ}$ (2)
III	III	$L_{U_A} > L_{U_N} + 3\text{дБ}; L_{U_{C0}} > L_{U_N} + 3\text{дБ}; L_{U_{C0}} < L_{U_A}; L_{U_{C1}} \leq L_{U_N} + 3\text{дБ}$ (3)
IV	IV-1	$L_{U_A} > L_{U_N} + 3\text{дБ}; L_{U_{C0}} > L_{U_N} + 3\text{дБ}; L_{U_{C0}} \geq L_{U_A}; L_{U_{C1}} \leq L_{U_N} + 3\text{дБ}$ (4)
	IV-2	$L_{U_A} \leq L_{U_N} + 3\text{дБ}; L_{U_{C0}} > L_{U_N} + 3\text{дБ}; L_{U_{C1}} \leq L_{U_N} + 3\text{дБ}$ (5)
	IV-3	$L_{U_A} \leq L_{U_N} + 3\text{дБ}; L_{U_{C0}} > L_{U_N} + 3\text{дБ}$ или $L_{U_{C0}} \leq L_{U_N} + 3\text{дБ}; L_{U_{C1}} > L_{U_N} + 3\text{дБ}$ (6)
V	V	$L_{U_A} = L_{U_{C0}} = L_{U_{C1}} \leq L_{U_N} + 3\text{дБ}$ (7)

Примечание. L_{U_A} , $L_{U_{C0}}$ и $L_{U_{C1}}$, L_{U_H} и L_{U_N} – уровни сигналов U_A , U_{C0} и U_{C1} , U_H и U_N (рис. 3), пересчитываемые в дБ относительно 1 мкВ.

Note. L_{U_A} , $L_{U_{C0}}$ and $L_{U_{C1}}$, L_{U_H} and L_{U_N} – the levels of U_A , U_{C0} and U_{C1} , U_H and U_N signals (Fig. 3), measured in dB relative to 1 mkV.

Впервые выявлена стадия V ПЭО – на ней отсутствуют отличимые от фонового шума акустические сигналы в анодном и катодном полупериодах (рис. 3 а, V), поэтому условие для идентификации АЭ данного вида принимает вид выражения (7) (таблица 1). Стадия V ПЭО наблюдалась, как правило, только на режимах с наибольшими плотностями тока (12–18 А/дм²) при C/A 1,15 и 1,30 и после наблюдения признаков стадий I–IV, т. е. она приходится на окончание процесса ПЭО. Измерения показали, что на временном интервале стадии V продолжают расти толщина слоя с небольшой скоростью и изменения его свойств [34; 35], но визуально на данном этапе практически не фиксируются МДР и их свечение на образце, а сигнал АЭ, как было отмечено выше, не превышает шумового. В совокупности это не позволяет говорить о полном прекращении процесса ПЭО.

Из таблицы 1 видно, что во всех условиях (1)–(7) нормируется кратность изменения АЭ относительно уровней L_{U_H} и L_{U_N} , которые не могут быть заданы в абсолютных величинах. Последнее связано с тем, что данные величины зависят: от чувствительности используемого преобразователя АЭ; типа и количества контактной среды; места и погрешности установки преобразователя АЭ и других факторов, влияющих на трансформацию и затухание АЭ волн и окружающий шум. В связи с этим величины L_{U_H} и L_{U_N} должны опреде-

ляться перед ПЭО на конкретном режиме и с учетом особенностей используемой АЭ аппаратуры и ПЭО-установки.

АЭ критерий идентификации стадии процесса ПЭО

Можно заключить, что, исходя из установленных закономерностей проявления АЭ за период импульсного воздействия, ключевыми признаками разделения форм циклического проявления АЭ на виды являются временное положение сигналов (в катодной и/или анодной части) и соотношение мощности (энергии) между ними. Следовательно, их отслеживание позволит идентифицировать и классифицировать стадию реализации процесса ПЭО. С этой целью предложен новый параметр-критерий «АЭ медиана» – t_{AEm} (рис. 4). АЭ медиана представляет собой временную метку в цикле воздействия, которая делит площадь под кривой, описывающей характер измерения АЭ за цикл воздействия (S), на две равные части ($S=S_1+S_2$, $S_1=S_2$, рис. 4).

В качестве параметра, характеризующего особенности изменения формы АЭ, использовано среднее квадратичное значение сигнала (RMS). С учетом этого и приведенного выше определения, условие нахождения t_{AEm} записывается как

$$S_1 = \int_0^{t_{AEm}} RMS(t)dt = \int_{t_{AEm}}^{t_C} RMS(t)dt = S_2, \quad (8)$$

где t_C – время цикла в отсчетах или секундах, которое задает размерность и диапазон изменения t_{AEm} .

В настоящей работе кривые $RMS(t)$ получали по кадрам записи АЭ (рис. 1) с помощью скользящего ок-

на, равного 10 отсчетам (5 мкс) с шагом сдвига 1 отсчет.

На рис. 5 приведены результаты разделения АЭ, зарегистрированной при сопровождении исследованных режимов ПЭО, на описанные стадии с применением определенных выше признаков изменения формы АЭ и условий (1)–(7) с отображением предложенного параметр t_{AEm} , в виде пиктограмм.

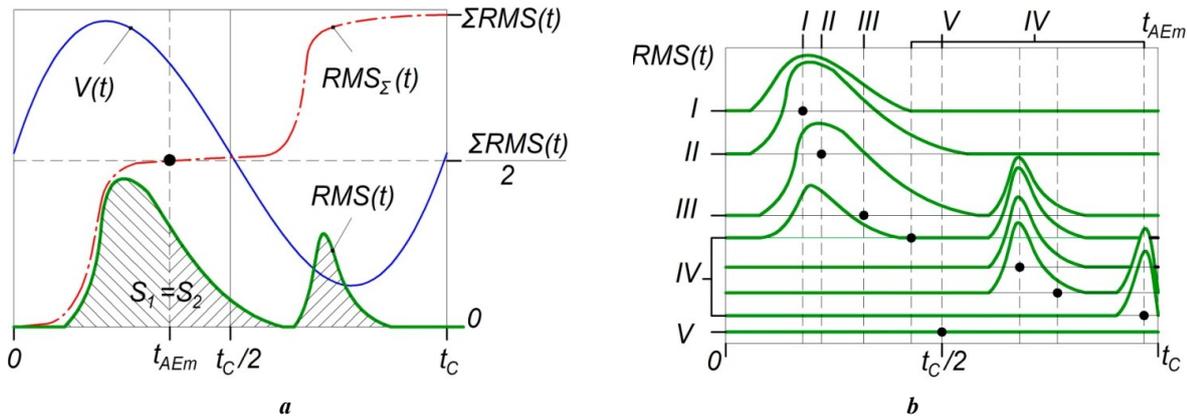


Рис. 4. Поясняющие схемы к способу расчета параметра-критерия t_{AEm} (а) и направления его изменения при регистрации форм сигналов АЭ I–V, указанных на рис. 3 а (b)

Fig. 4. Explanatory diagrams for the method calculating of the t_{AEm} parameter-criterion (a) and the directions of its change when registering AE I–V waveforms indicated in Fig. 3 a (b)

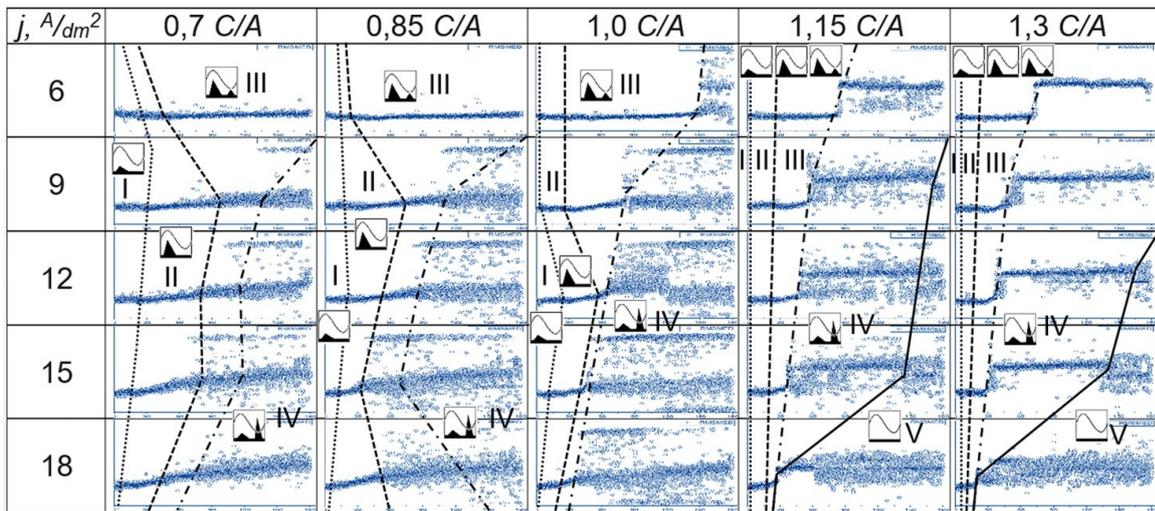


Рис. 5. Общий характер изменения АЭ медианы в 25 режимах ПЭО, отличающихся плотностью тока $j, A/dm^2$ и соотношением токов в полупериодах C/A, при длительности оксидирования 180 мин с разделением на стадии по условиям (1)–(7).

Размер осей на графиках фиксированный: по оси OX – 180 мин, по оси OY – 4000 отсчетов (экв. 2 мс).

Тип сигнала АЭ, наблюдаемой на каждой стадии, обозначен пиктограммой, соответствующей типу сигнала по рис. 4 б

Fig. 5. General nature of the change in the AE median in 25 PEO modes, differing in current density $j, A/dm^2$ the ratios of the positive to negative pulse currents C/A, at the oxidation duration of 180 minutes, divided into stages according to the conditions (1)–(7).

The sizes of the axes on the graphs are fixed: along the OX axis – 180 minutes, along the OY axis – 4000 readings (eq. 2 ms). The AE signal type observed at each stage is indicated by a pictogram corresponding to the type of signal in Fig. 4 b

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Из анализа рис. 2 и 5, видно, что разделение режима ПЭО на стадии по визуальным признакам и амплитуде сигналов АЭ (рис. 1 и 2) позволяет выделить стадии I и II, но обладает высокой погрешностью на стадиях III и IV, а также не позволяет выявить стадию V. Предлагаемый параметр «АЭ медиана» t_{AEm} (рис. 4 и 5), наоборот, обладает сравнительно невысокой «чувствительностью» к стадиям I и II ПЭО, но позволяет установить в АЭ записи присутствие катодных МДР, что дает возможность четко идентифицировать стадии III–V процесса и детализировать стадию IV на подтипы. Универсальными являются условия (1)–(7), но их использование требует предварительных исследований и отслеживания нескольких указанных выше амплитудных параметров в пределах их временных меток проявления в каждом цикле воздействия, что не является тривиальной задачей.

Таким образом, расчет амплитуды и АЭ медианы по циклам воздействия в совокупности позволяет описать основные признаки всех стадий всего двумя числами, а идентификация стадий ПЭО в их двухпараметрическом пространстве представляется наиболее перспективной для применения в направлении мониторинга процесса ПЭО. При этом, поскольку погрешности

предлагаемых параметров при выявлении стадий ПЭО имеют антибатный характер, их совместное применение должно повышать вероятность обнаружения стадий ПЭО. Однако если речь идет только о выделении и отслеживании стадий ПЭО III–V, то параметр «АЭ медиана» является самодостаточным.

Действительно, благодаря разработанному параметру удалось установить, что режимы ПЭО с наибольшей плотностью тока 18 A/dm^2 при токовом соотношении C/A 1,15 и 1,30 переходят из стадии III сразу в стадию V (рис. 5), что сопровождается некоторым ростом толщины (рис. 6 а), снижением твердости (рис. 6 б), повышением коэффициента трения в паре и снижением износостойкости оксидных слоев (рис. 6 d). Переход ПЭО в стадию V и рост ее длительности (рис. 5) приводит к резкому росту коэффициента трения для пары «оксидный слой – стальной шар» (рис. 6 с), что не вполне понятно на данном этапе и требует дополнительных исследований. Можно также заметить, что по мере увеличения длительности стадии IV ПЭО (рис. 5) наблюдается снижение интенсивности изнашивания пары трения (рис. 6 d), в то время как появление стадии V и увеличение ее длительности приводит к росту интенсивности изнашивания пары в 1,5–2,5 раза.

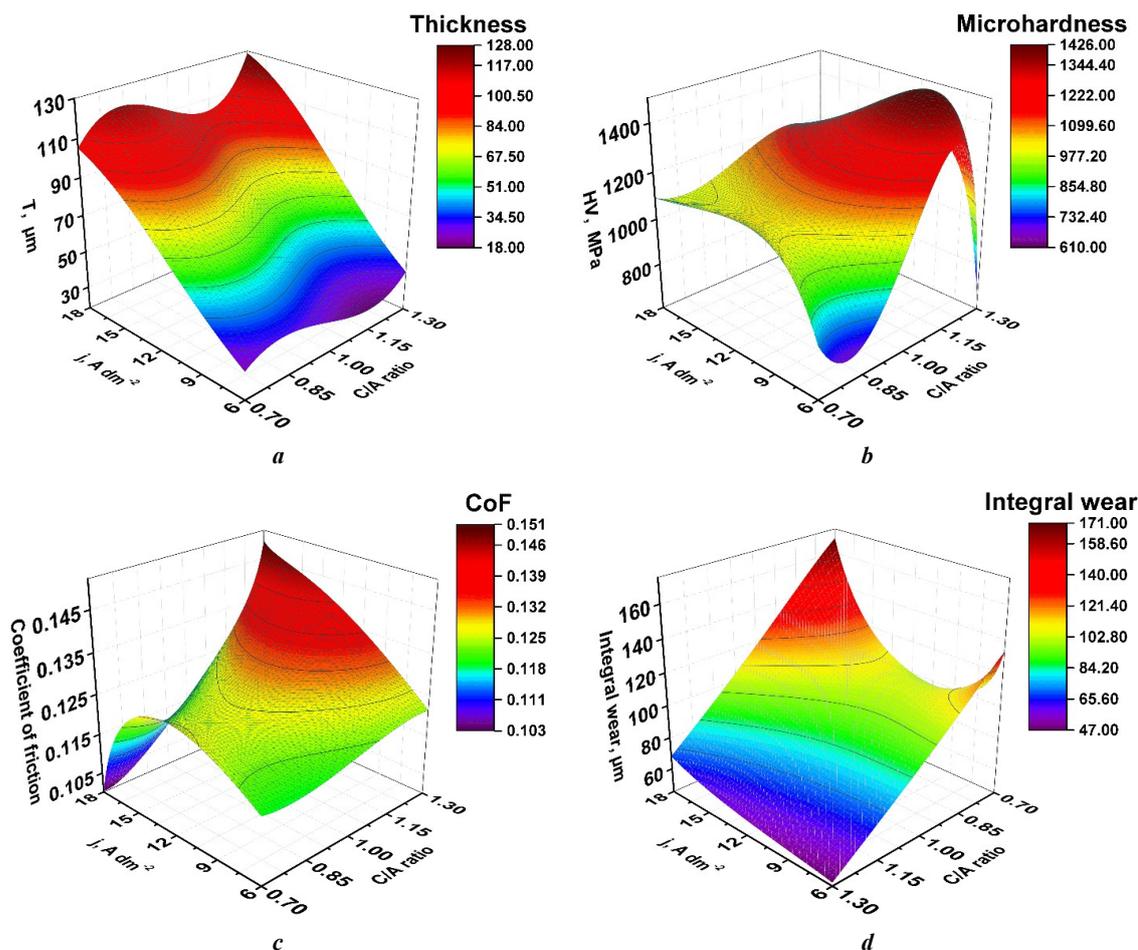


Рис. 6. Зависимости средней толщины T , $\mu\text{м}$ (а), микротвердости HV 0,1, МПа (б), коэффициента трения (с) и линейного приведенного износа (д) пары трения «оксидный слой – стальной шар» от токовых параметров режима ПЭО
Fig. 6. The dependences of the average thickness T , μm (a), microhardness HV 0.1, MPa (b), friction coefficient (c), and linear reduced wear (d) of the “oxide layer – steel ball” friction pair on the current parameters of the PEO mode

Из совместного анализа рис. 5 и 6 следует, что возникновение катодных МДР, близких по мощности к анодным микродугам или превышающих их, и переход ПЭО в стадию IV процесса приводит к небольшому снижению толщины формируемых оксидных слоев (рис. 6 а), но при этом их средняя микротвердость достигает наибольших значений (рис. 6 б). Таким образом, введенный параметр «АЭ медиана», обладающий повышенной чувствительностью к финальным стадиям ПЭО, позволяет отслеживать их длительность. На основе этого возможен переход к АЭ регулированию процесса оксидирования путем подтверждения достижения заданных стадий на каждом режиме ПЭО и контроля соответствия времени выдержки на каждой из них, что технологически должно обеспечивать получение требуемого комплекса свойств покрытий. Последнее является предметом дальнейших экспериментальных исследований.

Отметим, что поскольку полученные данные проявления сигналов АЭ в анодном и катодном полупериодах (полупериодах) коррелируют со световыми вспышками при ПЭО [15] (рис. 3 а и 3 б), то предложенный параметр деления режимов ПЭО на стадии будет применим и при обработке результатов наблюдения при фотовидеофиксации и регистрации фото-ЭДС, где вместо изменения АЭ может отслеживаться, например, медиана интенсивности свечения в анодном и катодном циклах воздействия.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

1. Установлены возможные формы изменения сигнала акустической эмиссии (АЭ) за цикл воздействия при ПЭО Al–Mg сплава АМг6 в биполярном импульсном режиме, которые сведены к пяти основным типам и трем подтипам, а также границы (временные точки) их смены в широком диапазоне промышленных режимов ПЭО. При этом три подтипа форм изменения АЭ представляют особый интерес, так как относятся к режиму «мягкого искрения» (“soft sparking”).

2. Впервые выявлена ранее неизвестная стадия V процесса ПЭО, при которой практически отсутствует микродуговой пробой парогововой фазы до металлической подложки и генерируемая им АЭ.

3. Показано, что подход к установлению стадий ПЭО с применением стандартного параметра «амплитуда АЭ» обладает большей погрешностью, так как не учитывает форму сигналов и полупериод их регистрации. Учесть обозначенные признаки при разделении режимов ПЭО на стадии по АЭ позволяет предложенный новый параметр-критерий «акустико-эмиссионная медиана» (АЭ медиана), позволяющий выделить установленные в работе циклические особенности проявления АЭ. Экспериментально показано, что предложенный параметр работоспособен, обладает хорошей точностью и чувствительностью к подтипам сигналов АЭ, особенно регистрируемых в режиме «мягкого искрения» (“soft sparking”).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Mardare C.C., Hassel A.W. Review on the Versatility of Tungsten Oxide Coatings // *Physica Status Solidi A*.

2019. Vol. 216. № 12. Article number 1900047. DOI: [10.1002/pssa.201900047](https://doi.org/10.1002/pssa.201900047).

2. Simchen F., Sieber M., Kopp A., Lampke T. Introduction to Plasma Electrolytic Oxidation—An Overview of the Process and Applications // *Coatings*. 2020. Vol. 10. № 7. Article number 628. DOI: [10.3390/coatings10070628](https://doi.org/10.3390/coatings10070628).
3. Martin J., Melhem A., Shchedrina I., Duchanoy T., Nominé A., Henrion G., Czerwiec T., Belmonte T. Effects of electrical parameters on plasma electrolytic oxidation of aluminium // *Surface and Coatings Technology*. 2013. Vol. 221. P. 70–76. DOI: [10.1016/j.surfcoat.2013.01.029](https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2013.01.029).
4. Rogov A.B., Yerokhin A., Matthews A. The role of cathodic current in plasma electrolytic oxidation of aluminum: Phenomenological concepts of the “soft sparking” mode // *Langmuir*. 2017. Vol. 33. № 41. P. 11059–11069. DOI: [10.1021/acs.langmuir.7b02284](https://doi.org/10.1021/acs.langmuir.7b02284).
5. Rogov A.B., Matthews A., Yerokhin A. Relaxation Kinetics of Plasma Electrolytic Oxidation Coated Al Electrode: Insight into the Role of Negative Current // *The Journal of Physical Chemistry C*. 2020. Vol. 124. № 43. P. 23784–23797. DOI: [10.1021/acs.jpcc.0c07714](https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.0c07714).
6. Rahmati M., Raeissi K., Toroghinejad M.R., Hakimizad A., Santamaria M. Effect of Pulse Current Mode on Microstructure, Composition and Corrosion Performance of the Coatings Produced by Plasma Electrolytic Oxidation on AZ31 Mg Alloy // *Coatings*. 2019. Vol. 9. № 10. Article number 688. DOI: [10.3390/coatings9100688](https://doi.org/10.3390/coatings9100688).
7. Бутягин П.И., Хохряков Е.В., Мамаев А.И. Влияние состава электролита на износостойкость МДО-покрытий // *Технология металлов*. 2005. № 1. С. 36–40. EDN: [KVFECPL](https://www.edn.ru/kvfecpl/).
8. Кучмин И.Б., Нечаев Г.Г., Соловьева Н.Д. О характере изменений физико-химических свойств двухкомпонентного силикатно-щелочного электролита для микродугового оксидирования в ходе серийного производства // *Вестник Саратовского государственного технического университета*. 2013. Т. 4. № 1. С. 57–62. EDN: [SEFXLX](https://www.edn.ru/sefxlx/).
9. Hussein R.O., Northwood D.O., Nie X. Processing Microstructure Relationships in the Plasma Electrolytic Oxidation (PEO) Coating of a Magnesium Alloy // *Materials Sciences and Applications*. 2014. Vol. 5. № 3. P. 124–139. DOI: [10.4236/msa.2014.53017](https://doi.org/10.4236/msa.2014.53017).
10. Yerokhin A.L., Nie X., Leyland A., Matthews A., Dowe S.J. Plasma electrolysis for surface engineering // *Surface and Coatings Technology*. 1999. Vol. 122. № 2-3. P. 73–93. DOI: [10.1016/S0257-8972\(99\)00441-7](https://doi.org/10.1016/S0257-8972(99)00441-7).
11. Суминов И.В., Белкин П.Н., Эпельфельд А.В., Людин В.Б., Крит Б.Л., Борисов А.М. Плазменно-электролитическое модифицирование поверхности металлов и сплавов. Т. 2. М.: Техносфера, 2011. 512 с.
12. Golubkov P.E., Pecherskaya E.A., Kozlov G.V., Zinchenko T.O., Melnikov O.A., Shepeleva J.V. Application of impedance spectroscopy for research of the micro-arc oxidation process // *Proceedings – 2020 7th International Congress on Energy Fluxes and Radiation Effects (EFRE 2020)*. Tomsk: Publishing House of IAO SB RAS, 2020. P. 773–777.
13. Arrabal R., Matykina E., Hashimoto T., Skeldon P., Thompson G.E. Characterization of AC PEO coatings on magnesium alloys // *Surface and Coatings Technology*.

2009. Vol. 203. № 16. P. 2207–2220. DOI: [10.1016/j.surfcoat.2009.02.011](https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2009.02.011).
14. Clyne T.W., Troughton S.Ch. A review of recent work on discharge characteristics during plasma electrolytic oxidation of various metals // *International Materials Reviews*. 2019. Vol. 64. № 3. P. 127–162. DOI: [10.1080/09506608.2018.1466492](https://doi.org/10.1080/09506608.2018.1466492).
 15. Rakoch A.G., Gladkova A.A., Linn Z., Strekalina D.M. The evidence of cathodic micro-discharges during plasma electrolytic oxidation of light metallic alloys and micro-discharge intensity depending on pH of the electrolyte // *Surface and Coatings Technology*. 2015. Vol. 269. P. 138–144. DOI: [10.1016/j.surfcoat.2015.02.026](https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2015.02.026).
 16. Wang L., Chen L., Yan Z., Fu W. Optical emission spectroscopy studies of discharge mechanism and plasma characteristics during plasma electrolytic oxidation of magnesium in different electrolytes // *Surface and Coatings Technology*. 2010. Vol. 205. № 6. P. 1651–1658. DOI: [10.1016/j.surfcoat.2010.10.022](https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2010.10.022).
 17. Jin F.-Y., Wang K., Zhu M., Shen L.-R., Li J., Hong H.-H., Chu P.K. Infrared reflection by alumina films produced on aluminum alloy by plasma electrolytic oxidation // *Materials Chemistry and Physics*. 2009. Vol. 114. № 1. P. 398–401. DOI: [10.1016/j.matchemphys.2008.09.060](https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2008.09.060).
 18. Голубков П.Е. Анализ применимости методов измерения толщины диэлектрических слоев при управляемом синтезе защитных покрытий методом микродугового оксидирования // *Измерение. Мониторинг. Управление. Контроль*. 2020. № 1. С. 81–92. DOI: [10.21685/2307-5538-2020-1-11](https://doi.org/10.21685/2307-5538-2020-1-11).
 19. Растегаева И.И., Растегаев И.А., Викарчук А.А., Мерсон Д.Л., Селезнев М.Н., Виноградов А.Ю. Оптимизация режимов обработки жидких сред в роторных устройствах на основе метода акустической эмиссии с системой обратной связи // *Приборы и системы. Управление, Контроль, Диагностика*. 2012. № 5. С. 25–31. EDN: [SMJGQD](https://www.edn.ru/SMJGQD/).
 20. Darband G.B., Aliofkhaezai M., Hamghalam P., Valizade N. Plasma electrolytic oxidation of magnesium and its alloys: Mechanism, properties and applications // *Journal of Magnesium and Alloys*. 2017. Vol. 5. № 1. P. 74–132. DOI: [10.1016/j.jma.2017.02.004](https://doi.org/10.1016/j.jma.2017.02.004).
 21. Tjiang F., Ye L., Huang Y.-J., Chou C.-C., Tsai D.-S. Effect of processing parameters on soft regime behavior of plasma electrolytic oxidation of magnesium // *Ceramics International*. 2017. Vol. 43. № 1. P. S567–S572. DOI: [10.1016/j.ceramint.2017.05.179](https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.05.179).
 22. Tsai D.-S., Chou C.-C. Review of the Soft Sparking Issues in Plasma Electrolytic Oxidation // *Metals*. 2018. Vol. 8. № 2. Article number 105. DOI: [10.3390/met8020105](https://doi.org/10.3390/met8020105).
 23. Беспалова Ж.И., Паненко И.Н., Дубовсков В.В., Козаченко П.Н., Кудрявцев Ю.Д. Исследование процесса формирования оптически черных оксидно-керамических покрытий на поверхности алюминиевого сплава 1160 // *Известия высших учебных заведений. Северо-Кавказский регион. Серия: Естественные науки*. 2012. № 5. С. 63–66. EDN: [PFATGJ](https://www.edn.ru/PFATGJ/).
 24. Мукаева В.Р., Горбатков М.В., Фаррахов Р.Г., Парфенов Е.В. Исследование акустических характеристик процесса плазменно-электрического оксидирования алюминия // *Электротехнические и информационные комплексы и системы*. 2018. Т. 14. № 3. С. 60–65. EDN: [YSAZNY](https://www.edn.ru/YSAZNY/).
 25. Бао Ф., Башков О.В., Чжан Д., Люй Л., Башкова Т.И. Исследование влияния режимов микродугового оксидирования на морфологию и параметры оксидного покрытия, наносимого на алюминиевый сплав Д16АТ // *Frontier Materials & Technologies*. 2023. № 1. С. 7–21. DOI: [10.18323/2782-4039-2023-1-7-21](https://doi.org/10.18323/2782-4039-2023-1-7-21).
 26. Boinet M., Verdier S., Maximovitch S., Dalard F. Plasma electrolytic oxidation of AM60 magnesium alloy: Monitoring by acoustic emission technique. Electrochemical properties of coatings // *Surface and Coatings Technology*. 2005. Vol. 199. № 2-3. P. 141–149. DOI: [10.1016/j.surfcoat.2004.10.145](https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2004.10.145).
 27. Boinet M., Verdier S., Maximovitch S., Dalard F. Application of acoustic emission technique for in situ study of plasma anodising // *NDT & E International*. 2004. Vol. 37. № 3. P. 213–219. DOI: [10.1016/j.ndteint.2003.09.011](https://doi.org/10.1016/j.ndteint.2003.09.011).
 28. Rastegaev I.A., Polunin A.V. Regularities and features of acoustic emission under plasma electrolytic oxidation of wrought Al-Mg alloy // *Journal of Physics: Conference Series*. 2021. Vol. 2144. Article number 012020. DOI: [10.1088/1742-6596/2144/1/012020](https://doi.org/10.1088/1742-6596/2144/1/012020).
 29. Kaseem M., Fatimah S., Nashrah N., Ko Y.G. Recent progress in surface modification of metals coated by plasma electrolytic oxidation: Principle, structure, and performance // *Progress in Materials Science*. 2021. Vol. 117. Article number 100735. DOI: [10.1016/j.pmatsci.2020.100735](https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2020.100735).
 30. Cheng Y.-L., Xue Z., Wang Q., Wu X.-Q., Matykina E., Skeldon P., Thompson G.E. New findings on properties of plasma electrolytic oxidation coatings from study of an Al-Cu-Li alloy // *Electrochimica Acta*. 2013. Vol. 107. P. 358–378. DOI: [10.1016/j.electacta.2013.06.022](https://doi.org/10.1016/j.electacta.2013.06.022).
 31. Troughton S.C., Clyne T.W. Cathodic discharges during high frequency plasma electrolytic oxidation // *Surface and Coatings Technology*. 2018. Vol. 352. P. 591–599. DOI: [10.1016/j.surfcoat.2018.08.049](https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2018.08.049).
 32. Polunin A.V., Denisova A.G., Cheretaeva A.O., Shafееv M.R., Borgardt E.D., Rastegaev I.A., Katsman A.V. The effect of process current parameters on the properties of oxide layers under plasma electrolytic oxidation of AMg6 alloy // *Journal of Physics: Conference Series*. 2021. Vol. 2144. Article number 012018. DOI: [10.1088/1742-6596/2144/1/012018](https://doi.org/10.1088/1742-6596/2144/1/012018).
 33. Polunin A.V., Cheretaeva A.O., Shafееv M.R., Denisova A.G., Borgardt E.D., Rastegaev I.A., Katsman A.V., Krishtal M.M. Mechanical and anticorrosive properties of oxide layers formed by PEO on wrought 1560 Al-Mg alloy: The effect of electric current parameters // *AIP Conference Proceedings*. 2022. Vol. 2533. Article number 020029. DOI: [10.1063/5.0098844](https://doi.org/10.1063/5.0098844).

REFERENCES

1. Mardare C.C., Hassel A.W. Review on the Versatility of Tungsten Oxide Coatings. *Physica Status Solidi A*, 2019, vol. 216, no. 12, article number 1900047. DOI: [10.1002/pssa.201900047](https://doi.org/10.1002/pssa.201900047).
2. Simchen F., Sieber M., Kopp A., Lampke T. Introduction to Plasma Electrolytic Oxidation—An Overview of

- the Process and Applications. *Coatings*, 2020, vol. 10, no. 7, article number 628. DOI: [10.3390/coatings10070628](https://doi.org/10.3390/coatings10070628).
3. Martin J., Melhem A., Shchedrina I., Duchanoy T., Nominé A., Henrion G., Czerwicz T., Belmonte T. Effects of electrical parameters on plasma electrolytic oxidation of aluminium. *Surface and Coatings Technology*, 2013, vol. 221, pp. 70–76. DOI: [10.1016/j.surfcoat.2013.01.029](https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2013.01.029).
 4. Rogov A.B., Yerokhin A., Matthews A. The role of cathodic current in plasma electrolytic oxidation of aluminum: Phenomenological concepts of the “soft sparking” mode. *Langmuir*, 2017, vol. 33, no. 41, pp. 11059–11069. DOI: [10.1021/acs.langmuir.7b02284](https://doi.org/10.1021/acs.langmuir.7b02284).
 5. Rogov A.B., Matthews A., Yerokhin A. Relaxation Kinetics of Plasma Electrolytic Oxidation Coated Al Electrode: Insight into the Role of Negative Current. *The Journal of Physical Chemistry C*, 2020, vol. 124, no. 43, pp. 23784–23797. DOI: [10.1021/acs.jpcc.0c07714](https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.0c07714).
 6. Rahmati M., Raecissi K., Toroghinejad M.R., Hakimizad A., Santamaria M. Effect of Pulse Current Mode on Microstructure, Composition and Corrosion Performance of the Coatings Produced by Plasma Electrolytic Oxidation on AZ31 Mg Alloy. *Coatings*, 2019, vol. 9, no. 10, article number 688. DOI: [10.3390/coatings9100688](https://doi.org/10.3390/coatings9100688).
 7. Butyagin P.I., Khokhryakov E.V., Mamaev A.I. Effect of Electrolyte Composition on the Wear Resistance of MAO Coatings. *Tekhnologiya metallov*, 2005, no. 1, pp. 36–40. EDN: [KVFCP](https://www.edn.ru/kvfcp/).
 8. Kuchmin I.B., Nechaev G.G., Soloveva N.D. Changes in the character of physical and chemical properties of two-silicate alkaline electrolyte for microarc oxidation over the production process. *Vestnik Saratovskogo gosudarstvennogo tekhnicheskogo universiteta*, 2013, vol. 4, no. 1, pp. 57–62. EDN: [SEFXLX](https://www.edn.ru/sefxlx/).
 9. Hussein R.O., Northwood D.O., Nie X. Processing Microstructure Relationships in the Plasma Electrolytic Oxidation (PEO) Coating of a Magnesium Alloy. *Materials Sciences and Applications*, 2014, vol. 5, no. 3, pp. 124–139. DOI: [10.4236/msa.2014.53017](https://doi.org/10.4236/msa.2014.53017).
 10. Yerokhin A.L., Nie X., Leyland A., Matthews A., Doney S.J. Plasma electrolysis for surface engineering. *Surface and Coatings Technology*, 1999, vol. 122, no. 2-3, pp. 73–93. DOI: [10.1016/S0257-8972\(99\)00441-7](https://doi.org/10.1016/S0257-8972(99)00441-7).
 11. Suminov I.V., Belkin P.N., Epelfeld A.V., Lyudin V.B., Krit B.L., Borisov A.M. *Plazmenno-elektroliticheskoe modifitsirovanie poverkhnosti metallov i splavov* [Plasma-electrolytic surface modification of metals and alloys]. Moscow, Tekhnosfera Publ., 2011. Vol. 2, 512 p.
 12. Golubkov P.E., Pecherskaya E.A., Kozlov G.V., Zinchenko T.O., Melnikov O.A., Shepeleva J.V. Application of impedance spectroscopy for research of the micro-arc oxidation process. *Proceedings – 2020 7th International Congress on Energy Fluxes and Radiation Effects (EFRE 2020)*. Tomsk, Publishing House of IAO SB RAS, 2020, pp. 773–777.
 13. Arrabal R., Matykina E., Hashimoto T., Skeldon P., Thompson G.E. Characterization of AC PEO coatings on magnesium alloys. *Surface and Coatings Technology*, 2009, vol. 203, no. 16, pp. 2207–2220. DOI: [10.1016/j.surfcoat.2009.02.011](https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2009.02.011).
 14. Clyne T.W., Troughton S.Ch. A review of recent work on discharge characteristics during plasma electrolytic oxidation of various metals. *International Materials Reviews*, 2019, vol. 64, no. 3, pp. 127–162. DOI: [10.1080/09506608.2018.1466492](https://doi.org/10.1080/09506608.2018.1466492).
 15. Rakoch A.G., Gladkova A.A., Linn Z., Strekalina D.M. The evidence of cathodic micro-discharges during plasma electrolytic oxidation of light metallic alloys and micro-discharge intensity depending on pH of the electrolyte. *Surface and Coatings Technology*, 2015, vol. 269, pp. 138–144. DOI: [10.1016/j.surfcoat.2015.02.026](https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2015.02.026).
 16. Wang L., Chen L., Yan Z., Fu W. Optical emission spectroscopy studies of discharge mechanism and plasma characteristics during plasma electrolytic oxidation of magnesium in different electrolytes. *Surface and Coatings Technology*, 2010, vol. 205, no. 6, pp. 1651–1658. DOI: [10.1016/j.surfcoat.2010.10.022](https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2010.10.022).
 17. Jin F.-Y., Wang K., Zhu M., Shen L.-R., Li J., Hong H.-H., Chu P.K. Infrared reflection by alumina films produced on aluminum alloy by plasma electrolytic oxidation. *Materials Chemistry and Physics*, 2009, vol. 114, no. 1, pp. 398–401. DOI: [10.1016/j.matchemphys.2008.09.060](https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2008.09.060).
 18. Golubkov P.E. Analysis of the applicability of thickness measurement methods dielectric layers in controlled synthesis protective coatings by micro-arc method oxygenating. *Izmerenie. Monitoring. Upravlenie. Kontrol*, 2020, no. 1, pp. 81–92. DOI: [10.21685/2307-5538-2020-1-11](https://doi.org/10.21685/2307-5538-2020-1-11).
 19. Rastegaeva I.I., Rastegaev I.A., Vikarchuk A.A., Merson D.L., Seleznev M.N., Vinogradov A.Yu. Acoustic emission-based feedback system for optimization of liquid processing in rotor devices. *Pribory i sistemy. Upravlenie, Kontrol, Diagnostika*, 2012, no. 5, pp. 25–31. EDN: [SMJQD](https://www.edn.ru/smjqod/).
 20. Darband G.B., Aliofkhaezai M., Hamghalam P., Valizade N. Plasma electrolytic oxidation of magnesium and its alloys: Mechanism, properties and applications. *Journal of Magnesium and Alloys*, 2017, vol. 5, no. 1, pp. 74–132. DOI: [10.1016/j.jma.2017.02.004](https://doi.org/10.1016/j.jma.2017.02.004).
 21. Tjiang F., Ye L., Huang Y.-J., Chou C.-C., Tsai D.-S. Effect of processing parameters on soft regime behavior of plasma electrolytic oxidation of magnesium. *Ceramics International*, 2017, vol. 43, no. 1, pp. S567–S572. DOI: [10.1016/j.ceramint.2017.05.179](https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.05.179).
 22. Tsai D.-S., Chou C.-C. Review of the Soft Sparking Issues in Plasma Electrolytic Oxidation. *Metals*, 2018, vol. 8, no. 2, article number 105. DOI: [10.3390/met8020105](https://doi.org/10.3390/met8020105).
 23. Bespalova Zh.I., Panenko I.N., Dubovskov V.V., Kozachenko P.N., Kudryavtsev Yu.D. Investigation of the formation of optical black oxide-ceramic coatings on the surface of aluminum alloy 1160. *Izvestiya vysshikh uchebnykh zavedeniy. Severo-Kavkazskiy region. Seriya: Estestvennyye nauki*, 2012, no. 5, pp. 63–66. EDN: [PFATGJ](https://www.edn.ru/pfatgj/).
 24. Mukaeva V.R., Gorbatkov M.V., Farrakhov R.G., Parfenov E.V. A study of the acoustic characteristics of plasma electrolytic oxidation of aluminum. *Elektrotekhnicheskie i informatsionnye komplekсы i sistemy*, 2018, vol. 14, no. 3, pp. 60–65. EDN: [YSAZNZ](https://www.edn.ru/ysaznz/).

25. Bao F., Bashkov O.V., Chzhan D., Lyuy L., Bashkova T.I. The study of the influence of micro-arc oxidation modes on the morphology and parameters of an oxide coating on the D16AT aluminum alloy. *Frontier Materials & Technologies*, 2023, no. 1, pp. 7–21. DOI: [10.18323/2782-4039-2023-1-7-21](https://doi.org/10.18323/2782-4039-2023-1-7-21).
26. Boinet M., Verdier S., Maximovitch S., Dalard F. Plasma electrolytic oxidation of AM60 magnesium alloy: Monitoring by acoustic emission technique. Electrochemical properties of coatings. *Surface and Coatings Technology*, 2005, vol. 199, no. 2-3, pp. 141–149. DOI: [10.1016/j.surfcoat.2004.10.145](https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2004.10.145).
27. Boinet M., Verdier S., Maximovitch S., Dalard F. Application of acoustic emission technique for in situ study of plasma anodizing. *NDT & E International*, 2004, vol. 37, no. 3, pp. 213–219. DOI: [10.1016/j.ndteint.2003.09.011](https://doi.org/10.1016/j.ndteint.2003.09.011).
28. Rastegaev I.A., Polunin A.V. Regularities and features of acoustic emission under plasma electrolytic oxidation of wrought Al-Mg alloy. *Journal of Physics: Conference Series*, 2021, vol. 2144, article number 012020. DOI: [10.1088/1742-6596/2144/1/012020](https://doi.org/10.1088/1742-6596/2144/1/012020).
29. Kaseem M., Fatimah S., Nashrah N., Ko Y.G. Recent progress in surface modification of metals coated by plasma electrolytic oxidation: Principle, structure, and performance. *Progress in Materials Science*, 2021, vol. 117, article number 100735. DOI: [10.1016/j.pmatsci.2020.100735](https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2020.100735).
30. Cheng Y.-L., Xue Z., Wang Q., Wu X.-Q., Matykina E., Skeldon P., Thompson G.E. New findings on properties of plasma electrolytic oxidation coatings from study of an Al-Cu-Li alloy. *Electrochimica Acta*, 2013, vol. 107, pp. 358–378. DOI: [10.1016/j.electacta.2013.06.022](https://doi.org/10.1016/j.electacta.2013.06.022).
31. Troughton S.C., Clyne T.W. Cathodic discharges during high frequency plasma electrolytic oxidation. *Surface and Coatings Technology*, 2018, vol. 352, pp. 591–599. DOI: [10.1016/j.surfcoat.2018.08.049](https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2018.08.049).
32. Polunin A.V., Denisova A.G., Cheretaeva A.O., Shafeev M.R., Borgardt E.D., Rastegaev I.A., Katsman A.V. The effect of process current parameters on the properties of oxide layers under plasma electrolytic oxidation of AMg6 alloy. *Journal of Physics: Conference Series*, 2021, vol. 2144, article number 012018. DOI: [10.1088/1742-6596/2144/1/012018](https://doi.org/10.1088/1742-6596/2144/1/012018).
33. Polunin A.V., Cheretaeva A.O., Shafeev M.R., Denisova A.G., Borgardt E.D., Rastegaev I.A., Katsman A.V., Krishtal M.M. Mechanical and anticorrosive properties of oxide layers formed by PEO on wrought 1560 Al-Mg alloy: The effect of electric current parameters. *AIP Conference Proceedings*, 2022, vol. 2533, article number 020029. DOI: [10.1063/5.0098844](https://doi.org/10.1063/5.0098844).

Cyclic regularities of the acoustic emission generation during plasma-electrolytic oxidation of an Al–Mg alloy in the bipolar mode

© 2023

Igor A. Rastegaev^{*1}, PhD (Physics and Mathematics),

senior researcher of the Research Institute of Advanced Technologies

Marat R. Shafeev², junior researcher of the Research Institute of Advanced Technologies

Inna I. Rastegaeva³, senior lecturer of Chair “Nanotechnologies, Materials Science and Mechanics”

Anton V. Polunin⁴, PhD (Engineering), leading researcher of the Research Institute of Advanced Technologies

Mikhail M. Krishtal⁵, Doctor of Sciences (Physics and Mathematics), Professor,
chief researcher of the Research Institute of Advanced Technologies

Togliatti State University, Togliatti (Russia)

*E-mail: RastIgaev@yandex.ru,
I.Rastegaev@tlttsu.ru

¹ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-3807-8105>

²ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-4490-6547>

³ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-7634-2328>

⁴ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-8484-2456>

⁵ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-7189-0002>

Received 03.05.2023

Accepted 13.06.2023

Abstract: The paper analyzes the features of the acoustic emission (AE) signal generation during plasma-electrolytic oxidation (PEO) of the AMg6 aluminum alloy in a bipolar (anode-cathode) pulsed mode within each cycle of voltage application. The authors studied the range of PEO modes that almost completely covers all standard technological modes for processing aluminum alloys by the current densities (6–18 A/dm²) and current ratio in half-cycles (0.7–1.3), which allowed fixing and studying the AE accompanying the formation of oxide layers for various purposes. For the first time, due to AE registration, a new PEO stage was identified, in which there was no microarc breakdown to the substrate, but which was accompanied by an increase in the layer thickness, and the nature of which has not yet been determined. According to the known features of the oxidation stages, the authors systematized the repetitive forms of AE manifestation in the cycles of exposure and identified their five types and three subtypes. The study shows that the approach used to establish the PEO stages by the “acoustic emission amplitude” parameter has poor accuracy, since it does not take into account the form of signals and the half-period of their registration. Therefore, the authors developed and tested a new approach for analyzing AE frames synchronously with the cycles of change in the forming voltage during PEO, and proposed a new “acoustic-emission median” parameter, which allows identifying the main types and subtypes of signals accompanying the oxidation stages. An experimental study of the proposed AE parameter was carried out to identify these PEO stages, which confirmed the operability, high accuracy and sensitivity of the proposed parameter to the subtypes of AE signals recorded at

the cathode stage of “soft sparking”. The latter is of particular interest, since it is a means of studying a given oxidation stage with a resolution equal to the exposure cycle.

Keywords: aluminum alloy; plasma electrolytic oxidation; acoustic emission; microarc discharges.

Acknowledgments: This work was supported by the Russian Science Foundation (Project No. 20-79-10262, <https://rscf.ru/project/20-79-10262/>).

For citation: Rastegaev I.A., Shafeev M.R., Rastegaeva I.I., Polunin A.V., Krishtal M.M. Cyclic regularities of the acoustic emission generation during plasma-electrolytic oxidation of an Al–Mg alloy in the bipolar mode. *Frontier Materials & Technologies*, 2023, no. 2, pp. 103–116. DOI: 10.18323/2782-4039-2023-2-64-8.