

Структура поверхности алюмооксидной керамики при облучении импульсным электронным пучком

© В.А. Бурдовичин,¹ Э.С. Двиллис,² А.В. Медовник,¹ Е.М. Окс,¹ О.Л. Хасанов,² Ю.Г. Юшков¹

¹ Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, 634050 Томск, Россия

² Национальный исследовательский Томский политехнический университет, 634050 Томск, Россия
e-mail: burdov@fet.tusur.ru

(Поступило в Редакцию 27 марта 2012 г.)

Проведены исследования структурных преобразований в приповерхностном слое алюмооксидной керамики при облучении импульсным электронным пучком, генерируемым форвакуумным плазменным источником электронов. Показано, что модификация поверхностных свойств керамики обусловлена формированием в пределах каждого зерна областей, состоящих из плотно упакованных и одинаково ориентированных кристаллитов. Кристаллиты имеют вытянутую форму. Их длина и ширина составляют 0.5–1.5 μm , а поперечный размер 0.1–0.2 μm .

Облучение металлов импульсными потоками ионов и электронов с высокой плотностью энергии пучка в импульсе (порядка 10 J/cm²) представляет собой эффективный способ модификации их поверхностных свойств [1,2]. В обоих случаях основным фактором модификации является тепловой эффект, связанный с оплавлением тонкого поверхностного слоя металла. При этом сверхбыстрая закалка из жидкой фазы металла на поверхности позволяет в нестационарных полях температур и термомеханических напряжений формировать в поверхностном слое неравновесные структурно-фазовые состояния с плавным переходом к матрице [3].

При создании условий для компенсации зарядки непроводящей мишени импульсный электронный пучок может быть успешно применен и для модификации поверхности керамического диэлектрика [4]. Как и для металлов, в результате электронно-лучевого воздействия происходит сглаживание поверхности керамики и возрастание микротвердости. Несомненно, наблюдаемые эффекты также связаны со структурной перестройкой материала.

На возможность наноразмерного структурирования поверхности металлокерамических и керамических материалов при импульсной электронно-пучковой обработке указывалось в [5]. Однако в [5] не контролировался процесс зарядки керамической мишени ускоренным электронным пучком. Можно предположить, что в данном случае при сравнительно низких рабочих давлениях керамическая поверхность могла заряжаться до потенциалов, сравнимых с энергией электронов, и это существенным образом искажало общую картину процесса модификации керамики электронным пучком. Оставлена без внимания и возможность испарения облучаемого материала, которое, как указывается в [6], может оказывать существенное влияние на формирование структуры поверхности.

Развиваемые нами так называемые форвакуумные плазменные источники электронов [7] обеспечивают воз-

можность эффективной генерации импульсных и непрерывных электронных пучков в ранее недоступной области давлений 5–20 Па. Принципиальной особенностью использования указанных устройств является генерация в области транспортировки электронного пучка плотной плазмы, достаточной для полной компенсации заряда, приносимого пучком на изолированный коллектор. В этом случае наведенный на коллектор плавающий потенциал оказывается много меньше ускоряющего электроны напряжения, и процесс электронно-лучевого воздействия на непроводящую керамику практически не отличается от воздействия электронного пучка на металлы [8].

Цель настоящей работы состояла в детальном изучении с использованием современного экспериментального оборудования структурных преобразований в приповерхностном слое диэлектрической керамики при облучении импульсным электронным пучком, генерируемым форвакуумным плазменным источником электронов.

Эксперименты по электронному облучению алюмооксидной керамики проводились с использованием широкоапертурного импульсного плазменного источника электронов на основе разряда с полым катодом [9]. Электронный источник создавался специально для работы в области повышенных давлений и при давлении 4–10 Па, ускоряющем напряжении 10 кВ и длительности импульса 250 μs обеспечивал электронный пучок с током 25 А и плотностью до 3 А/cm². Максимальная плотность энергии пучка в импульсе составляла не более 7.5 J/cm². Как будет показано далее, такой относительно небольшой величины плотности энергии оказалось вполне достаточно для эффективного оплавления поверхности керамики. Это может быть связано с существенно меньшей теплопроводностью керамики по сравнению с металлом. Обратим внимание на тот факт, что в работе [5] при практически одинаковой с используемой нами длительности импульса тока электронного пучка для достижения заметного оплавления

Потеря Δm массы керамических образцов в результате облучения импульсным электронным пучком ($f = 1 \text{ pulse/s}$)

Количество импульсов	10	30	100
$\Delta m, \text{g}$	0	0.010	0.045

поверхности керамики требовались кратно более высокие плотности энергии в десятки J/cm^2 . Возможно, в [5] при оценке плотности энергии не учитывался процесс зарядки непроводящей керамики ускоренным электронным пучком и соответствующее этому торможение электронов перед попаданием на обрабатываемый образец.

Образцы используемой в настоящей работе керамики М 7 имели форму дисков диаметром 25 и толщиной 3 мм. Массовый состав: Al_2O_3 — 94%, 6% — (Fe_2O_3 не более 0.08%, CaCO_3 , SiO_2 , связка: парафин, воск). Плотность 3.5 g/cm^3 . В экспериментах реализовались два варианта облучения. В первом случае частота f повторения импульсов тока электронного пучка составляла 1 pulse/s, во втором 1 pulse/min. Выбор для второго случая столь продолжительного временного промежутка между импульсами был связан с необходимостью обеспечения условий остывания обрабатываемого керамического образца в промежутке между импульсами тока пучка.

Для наблюдения за морфологией поверхности анализировались данные сканирующей электронной микроскопии, полученные в Нано-Центре Национального исследовательского Томского политехнического университета с помощью растрового электронного микроскопа высокого разрешения JSM-7500FA (JEOL); одновременно с помощью приставки энергодисперсионного элементного анализа проводилась оценка поверхностной сегрегации после электронно-лучевой обработки. Испарение керамики в процессе обработки импульсным электронным пучком изучалось взвешиванием образцов на аналитических весах до и после облучения.

В таблице приведены результаты взвешивания керамических образцов до и после обработки различным числом импульсов. Как можно заметить, при числе импульсов 10 с периодом следования 1 s уноса материала не наблюдается. Большее число импульсов облучения вызывает заметное снижение массы образца.

При уменьшении частоты следования импульсов до 1 pulse/min унос материала отсутствует даже при ста импульсах облучения. Эти результаты подтверждают сделанный в [4] на основании расчетов вывод о возможности достижения температуры испарения в поверхностном слое керамики в результате роста начальной температуры обрабатываемого образца от импульса к импульсу.

Изображения, полученные на растровом микроскопе, позволяют проследить эволюцию поверхности. Исходная керамика (рис. 1) состоит из преимущественно равноосных зёрен размером от 0.5 до $7 \mu\text{m}$ и содержит полости, обеспечивающие остаточную пористость

до 10%. Субструктура внутри зёрен не обнаруживается. Облучение исследуемого материала электронным пучком при частоте следования импульсов 1 pulse/s уже при 10 импульсах существенным образом изменяет вид поверхности (рис. 2). Сравнение с исходным изображением дает основания сделать вывод о сглаживании поверхности в результате оплавления зёрен. Упаковка

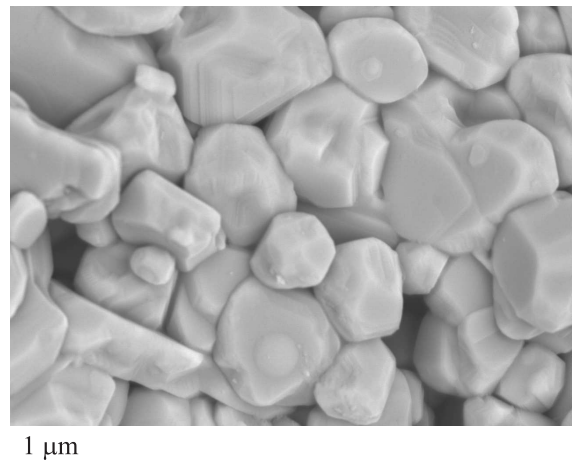


Рис. 1. Микрофотография поверхности исходной керамики.

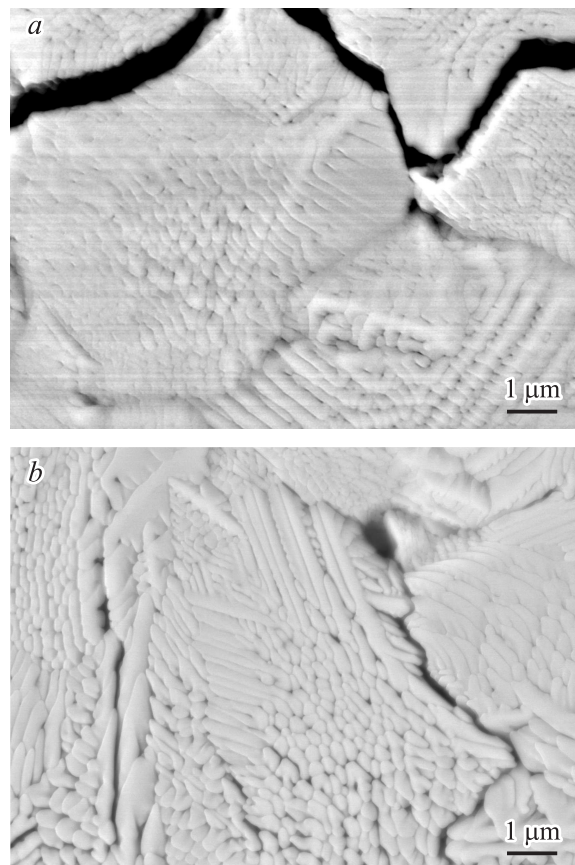
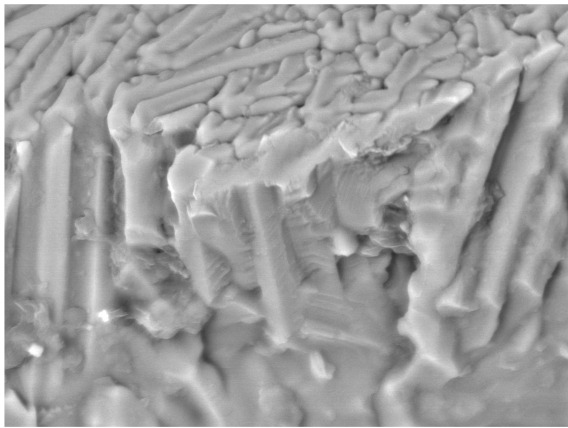


Рис. 2. Микрофотография поверхности керамики, обработанной электронным пучком с частотой повторения импульсов 1 pulse/s. Количество импульсов 10 (a), 100 (b).



1 μm

Рис. 3. Микрофотография поверхностной области керамики на сколе. Количество импульсов 100. Частота повторения импульсов 1 pulse/s.

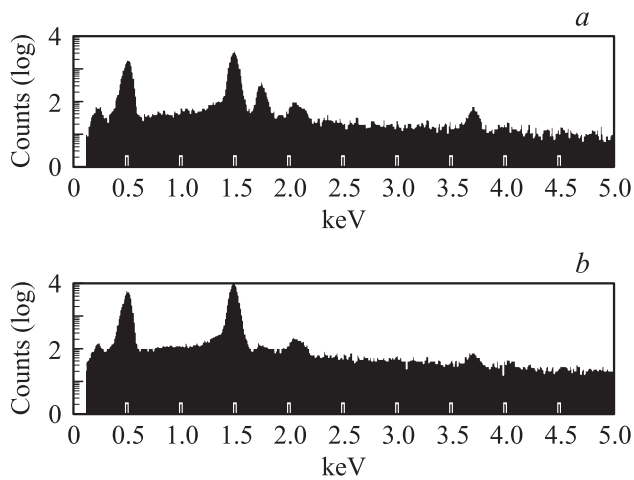


Рис. 4. Спектры характеристического рентгеновского излучения исходной (a) и обработанной (b) керамики.

становится более плотной за счет увеличения площади соприкосновения зерен и исчезновения пор. Наряду с этим появляются трещины, располагающиеся по границам зерен. В пределах каждого зерна обнаруживается субмикронная структура, представляющая собой несколько областей, состоящих из плотно упакованных и одинаково ориентированных кристаллитов. Дальнейшее увеличение числа импульсов не вносит принципиальных изменений в эту структуру (рис. 3). Кристаллиты имеют вытянутую форму. Их длина составляет 0.5–1.5 μm, а поперечный размер 0.1–0.2 μm. Аналогичная структура обнаруживается и на поперечном сколе облученных образцов (рис. 4), что приводит к выводу о том, что кристаллиты вытянуты в направлении, перпендикулярном поверхности. Обратим внимание на тот факт, что в [5] характерные размеры кристаллитов, образованных при обработке керамики импульсным электронным пучком, определены как 40–50 nm. Если не принимать

во внимание недостаточную точность используемого в этом случае экспериментального оборудования, то остается предположить, что такое расхождение связано с различным составом обрабатываемых керамик.

Причина столь значительного изменения структуры керамики при облучении, по-видимому, состоит в скорости и неравновесности процессов плавления и кристаллизации под действием импульсного электронного пучка. Оцененные в [4] соответствующие времена составляют единицы микросекунд. Это дает возможность определить максимальную скорость кристаллизации. Она оказывается порядка 1 m/s. Формирование структуры, плотно упакованной кристаллитами субмикронной структуры, по нашему мнению, ответственно за повышение твердости поверхности. В наших измерениях микротвердость составляла в среднем 5 GPa для исходной керамики и 10 GPa после облучения ста импульсами.

Сходство изображений поверхности, приведенных на рис. 2, означает отсутствие принципиальных различий в структурах, образованных в отсутствие и при наличии испарения. Это показывает, что в отличие от металлов с высокой упругостью паров [6] испарение керамики не дает заметного вклада в формирование поверхностной структуры. Как уже отмечалось выше, для керамики существенную роль играет быстрое протекание процессов плавления и кристаллизации. Достоверность этого вывода подтверждается исследованием керамики, расплавляемой непрерывным пучком и охлаждаемой в течение 10 min [10]. В этом случае субмикронные структуры не обнаруживаются.

Энергодисперсионный элементный анализ исследуемой керамики до и после электронно-лучевой обработки обнаруживает эффект поверхностной сегрегации примесей — оксидов кремния и кальция, присутствующих в исходных образцах в количестве до 1%. После электронно-лучевой обработки в рекристаллизованном слое наблюдается существенное снижение содержания диоксида кремния вплоть до неразличимых методом значений. Представленные на рис. 4 спектры характеристического излучения исходной керамики (a) и обработанной (b) электронным пучком позволяют отметить существенное снижение интенсивности пика кремния в области 1.74 keV и кальция (3.7 keV). Из представленных данных ясно, что эффект сегрегации определяется не столько количеством импульсов, сколько самим процессом рекристаллизации (плавления исходных кристаллитов с последующей повторной кристаллизацией в субмикронную структуру). Другим возможным объяснением кардинального снижения содержания кремния на обработанных участках является его испарение из расплава.

Таким образом, результаты проведенных исследований однозначно свидетельствуют о том, что модификация поверхностных свойств алюмооксидной керамики под действием импульсного электронного пучка обусловлена формированием на поверхности керамики субмикронных кристаллических структур.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, грант 11-8-12052 ОФИ-м и Минобрнауки, проект РФ 3.2372.2011.

Список литературы

- [1] Korotaev A.D., Tyumentsev A.N., Pinzhin Yu.P., Remnev G.E. // Surf. Coat. Tech. 2004. Vol. 185. P. 38–49.
- [2] Proskurovsky D.I., Rotshtein V.P., Ozur G.E. // Surf. Coat. Tech. 1997. Vol. 96. P. 117–122.
- [3] Proskurovsky D., Rotshtein V., Ozur G., Ivanov Yu., Markov A. // Surf. Coat. Tech. 2000. Vol. 125 (1–3). P. 49–56.
- [4] Бурдовицин В.А., Окс Е.М., Скробов Е.В., Юшков Ю.Г. // Перспективные материалы. 2011. № 6. С. 77–82.
- [5] Коваль Н.Н., Иванов Ю.Ф. // Изв. вузов. Сер. физ. 2008. № 5. С. 60–70.
- [6] Ковивчак В.С., Панова Т.В., Михайлов К.А. // Письма в ЖТФ. 2010. Т. 36. Вып. 23. С. 55–61.
- [7] Burdovitsin V.A., Oks E.M. // Laser Part. Beams. 2008. Vol. 26. N 4. P. 619–635.
- [8] Бурдовицин В.А., Климов А.С., Окс Е.М. // Письма в ЖТФ. 2009. Т. 35. Вып. 11. С. 61–66.
- [9] Юшков Ю.Г., Бурдовицин В.А., Медовник А.В., Окс Е.М. // ПТЭ. 2011. № 2. С. 85–88.
- [10] Burdovitsin V.A., Oks E.M., Klimov A.S., Goreev A.K. // Proc. of the 10th Conf. on Modification of Materials with Particle Beams and Plasma Flows. Tomsk. Russia. 2010. P. 239–242.