文章编号：1000-5773(2013)01-0099-06

表面状态对强流脉冲电子束辐照诱发金属表面熔坑的影响*

王晓彤[1]，彭冬晋[1]，邹　阳[1]，万明珍[1]，蔡　杰[1]，关庆丰[1,2]

（1.江苏大学材料学院，江苏镇江　212013；
2.吉林大学超硬材料国家重点实验室，吉林长春　130012）

摘要：为了考察材料晶体学特性对表面熔坑形成机制的影响，利用强流脉冲电子束(HCPEB)对喷丸前、后的304奥氏体不锈钢进行表面辐照处理，对HCPEB诱发的表面熔坑形貌进行了详细的表征。实验结果表明，HCPEB辐照后样品表面形成了大量的火山状熔坑，熔坑数密度和熔坑尺寸随电子束能量的增加而减小，材料表面的杂质或夹杂物容易成为熔坑的核心，并在熔坑形成的喷发过程中被清除，起到净化表面的作用。此外，喷丸前、后样品表面熔坑数密度遵循相似的分布规律，喷丸处理使熔坑数密度显著增大，表明材料的晶体学特性对表面熔坑形成有重要的影响，晶界、位错等结构缺陷是熔坑形核的择优位置。

关键词：强流脉冲电子束；304不锈钢；熔坑
中图分类号：O532.24；O347.5　　**文献标识码**：A

1　引　言

强流脉冲电子束(High Current Pulsed Electron Beam，HCPEB)是一种新的脉冲载能束表面处理技术，能将很高的能量(10^5～10^9 W/cm^2)在几微秒的时间内瞬间沉积到材料表层，造成材料表面极为快速的加热，使材料表面熔化乃至汽化，在材料表面快速的凝固过程中形成许多常规处理难以获得的新结构[1-4]，进而改善材料的性能。表面火山坑(熔坑)的形成是HCPEB处理材料过程中无法避免的一种结构现象，这些结构会增加材料表面的粗糙度，降低材料的机械性能，被认为是限制这项新技术广泛应用的一大瓶颈。但最近的一些研究表明，熔坑在喷发过程中可清除材料表层杂质颗粒或夹杂物，产生所谓的“选择净化”效应[5-6]，起到提高材料抗腐蚀性的作用；此外，熔坑的形成和电子束爆炸发射过程中产生的动态热应力场和应力波有着密切的关系，因此研究熔坑形成机制对确定动态热应力场和应力波在材料表面改性过程中的作用有着十分重要的意义。

关于熔坑的形成机制，目前广为接受的观点是喷发机制[7-8]，即在脉冲束流作用下，被轰击表面下的次表层附近最先达到熔点，内部熔化使体积迅速膨胀，导致材料表面产生类似于火山似的喷发而形成熔坑。但这一机制过于宏观，无法描述材料的晶体学特征(如晶粒度、位错密度等)对熔坑形成及演化的影响规律。与此相关的实验证据也十分缺乏。鉴于此，本研究利用HCPEB对具有不同表面状态的AISI 304奥氏体不锈钢样品进行轰击，对HCPEB诱发的表面熔坑进行详细表征，考察表面原始状态对表面熔坑形成机制的影响，重点探讨具有不同晶体学特征的材料表面熔坑随HCPEB参数变化的规律，为深

* **收稿日期**：2011-06-22；**修回日期**：2012-01-20
基金项目：国家自然科学基金(U1233111，50671042)；吉林大学超硬材料国家重点实验室开放基金(201205，201003)
作者简介：王晓彤(1989－)，女，硕士研究生，主要从事载能束表面改性研究. E-mail：897851852@qq.com
通讯作者：关庆丰(1963－)，男，教授，博士生导师，主要从事表面改性及微结构研究. E-mail：guanqf@ujs.edu.cn

入研究表面熔坑的形成机制提供必要的实验及理论储备。

2 实验方法

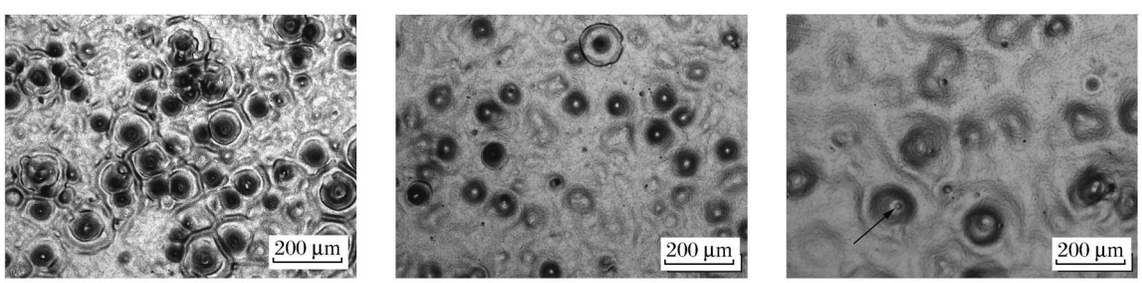
采用“Nadezhda-2”型 HCPEB 装置作为轰击源。该装置使用等离子系统产生电子，使具有高能量密度的电子束在极短时间内传播较远的距离，进而高速轰击材料表面，达到爆炸发射。HCPEB 装置的详细介绍见文献[9]。

选用 AISI 304 奥氏体不锈钢(0Cr18Ni9Ti)作为实验材料，化学成分(质量分数)为：Cr(18.2%)、Ni(9.4%)、Mn(1.5%)、Si(0.4%)、Mo(0.2%)、Cu(0.2%)、Co(0.1%)、Ti(0.003%)、P(0.027%)、S(0.003%)和 C(0.044%)。使用电火花线切割，将不锈钢切割成尺寸为 10 mm×10 mm×6 mm 的样品。为了考察材料表面状态对表面熔坑形成机制的影响，将其中一部分样品预先进行表面喷丸处理。采用直径为 0.2 mm 的陶瓷丸，工作压力为 0.6 MPa，喷嘴距样品的距离和角度分别为 60 mm 和 90°，在此参数下，喷丸覆盖率可达 200%，A 试片测得的喷丸强度为 0.15 A·mm。喷丸处理可以显著细化表层晶粒，晶粒尺寸由原始的几十微米细化到 100 nm 以下；此外，在大应变、高应变速率和多向载荷共同作用下，喷丸预处理还会在样品表层诱发剧烈的变形，使材料表层的缺陷密度提高 2～3 个数量级[10]，因此喷丸前、后样品的晶体学特征有着很大的差别。

对喷丸和未喷丸两种样品进行打磨、抛光，然后在丙酮溶液中进行超声清洗、吹干，最后放在 HCPEB 装置上对抛光面进行表面轰击。实验参数：电子束能量分别为 21.6、24.3 和 27.0 keV，脉冲次数为 5、10、20，脉冲宽度为 1.5 μs，真空度小于 8 mPa，样品距阴极电子枪距离 L 为 5 cm。HCPEB 处理后的样品表面形貌在 LEICA DM-2500M 型金相显微镜、NT1100 型轮廓仪、JSM-7001F 型热场发射扫描电子显微镜(Scanning Electron Microscopy，SEM)上进行观察。

3 结果与讨论

图 1(a)～图 1(c)为未喷丸样品经不同能量 HCPEB 辐照后样品表面的金相照片，从中可以清晰地看到，材料表面密集分布着大量的从几十到数百微米不等的熔坑。图 1(a)和图 1(b)显示的火山状熔坑呈中心下凹、边缘略微突起的形貌，熔坑中心均有一小孔；图 1(c)中箭头所示熔坑内的小孔表明，熔坑的形成的确为次表层液体喷发所致。从图 1(a)～图 1(c)中还可以看出，HCPEB 轰击后 304 不锈钢表面变得凹凸不平，粗糙度明显增加。



(a) 21.6 keV (b) 24.3 keV (c) 27.0 keV

图 1 不同电子束能量 5 次脉冲处理后表面熔坑形貌

Fig. 1 Morphologies of craters induced by HCPEB irradiation with 5 pulses at different electron beam energy

图 2 为 5 次脉冲下未喷丸样品表面熔坑数密度与电子束能量的关系曲线。可以看出，在低能量(21.6 keV)下未喷丸样品表面熔坑数密度较大，约为 6×10^{8} m^{-2}，随着辐照能量逐渐升高，熔坑数密度反而减小。Proskurovsky 等人[9]在研究奥氏体不锈钢时发现，在高能量电子束作用下，材料外表熔化层的夹杂物能完全或部分溶解到原始材料表层结构中，导致 HCPEB 辐照后材料表层的化学成分分布更加均匀，降低了表面熔坑形核率，从而出现电子束能量越高熔坑数密度越低的现象。

图 3 为 10 次 24.3 keV 的 HCPEB 辐照后熔坑的轮廓仪分析结果。在图 3 中箭头所示的熔坑左侧区域，表面较光滑平整；而熔坑右侧区域则布满条纹状褶皱，有明显喷发重熔痕迹。Qin 等人[11]的数值模拟结果表明，在熔坑形成过程中准静态应力、热弹性应力和冲击热应力产生，其中后两者是应力波的重要组成部分。熔坑喷出物质反作用于样品表层而产生的应力波称为冲击热应力波，其幅值可达几百兆帕，可沿基体内部传播，对材料表面形貌和内部结构起着重要影响。对图 3 中箭头所示熔坑的轮廓进行测量，测得的熔坑深度为 3.1 μm，直径约 28 μm，喷发引起的塑性变形使样品表面略高于熔坑，约为 0.6 μm。

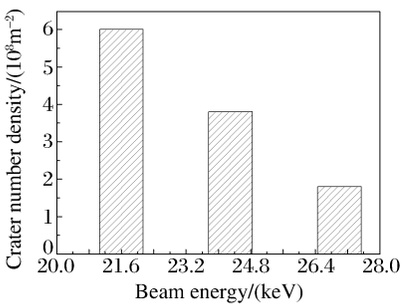


图 2　熔坑数密度随电子束能量的变化

Fig. 2　Number density of craters with the electron beam energy

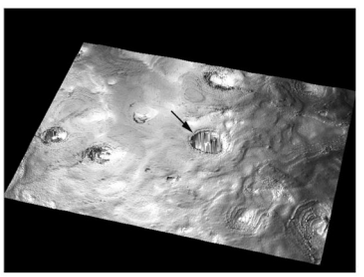


图 3　24.3 keV、10 次轰击后熔坑的三维形貌

Fig. 3　3D morphology of craters after bombardment with 10 pulses of 24.3 keV

表 1 列出了利用轮廓仪测得的不同参数下样品表面的熔坑直径，其中 E 为电子束能量，n 为脉冲次数。可以看出：相同电子束能量下熔坑直径的大小并未随脉冲次数的增加发生明显变化；随着电子束能量的升高，熔坑直径呈显著增大趋势。许多学者[6,12-13]认为，脉冲次数是影响熔坑形成的关键因素，而关于电子束能量对熔坑形成影响的研究则较为少见。本实验结果表明，电子束能量对熔坑尺寸产生重要影响。图 4 分别为 3 种不同电子束能量下熔坑直径分布曲线，其中 D_{ave} 为结合表 1 数据得到的 3 种电子束能量下的熔坑平均直径。可见，3 种能量下熔坑直径均接近正态分布，并且 D_{ave} 随电子束能量的增加而增大。

表 1　HCPEB 处理后样品表面熔坑的平均直径

Table 1　Average diameter of craters formed by HCPEB

E/(keV)	Average diameter/(μm)		
	$n=5$	$n=10$	$n=20$
21.6	18.15	18.56	18.32
24.3	31.21	31.40	31.89
27.0	38.07	38.23	38.78

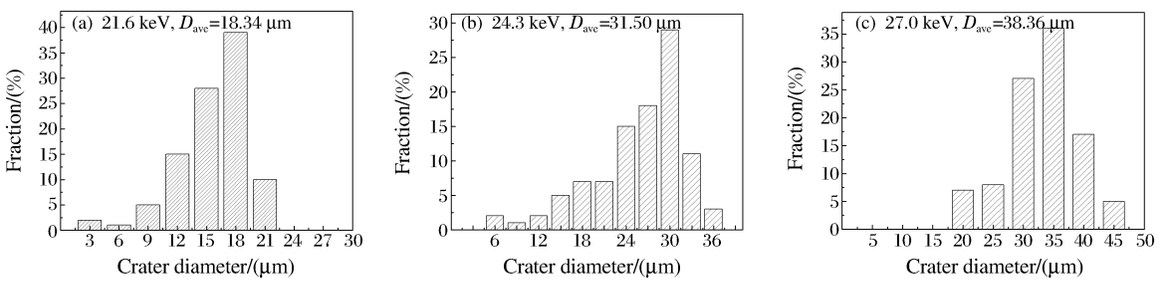
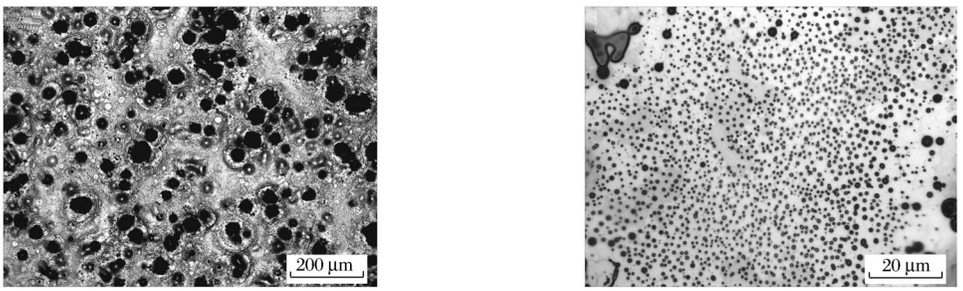


图 4　不同能量的 HCPEB 处理后样品表面熔坑直径分布

Fig. 4　Crater diameter distributions after HCPEB treatment with different electron beam energy

图 5(a)为喷丸样品经 10 次 HCPEB 轰击后的表面形貌。可以看出,喷丸样品的熔坑尺寸与未喷丸样品相比没有明显变化,但熔坑数密度显著增加,此外部分较大熔坑周围还形成了尺寸较小(1～5 μm)的微孔洞,如图 5(b)所示,这些微孔洞并未显示出喷发痕迹,这在未喷丸样品中是不常见的。因此,可以推测这些微孔洞与尺寸较大的火山状熔坑的形成机制有所不同,具体的形成机制有待进一步研究。



(a) Craters (b) Micropores

图 5 喷丸处理的样品经 21.6 keV、10 次轰击后表面熔坑形貌

Fig. 5 Surface morphologies of sample with shot peening treatment and electron beam bombardment of 21.6 keV and 10 pulses

图 6 为熔坑数密度随轰击次数变化曲线。可以看出:喷丸和未喷丸样品表面熔坑数密度遵循相似的分布规律;5 次脉冲辐照时,熔坑数密度达到最大,其中喷丸样品的表面火山状熔坑数密度达到 7.8×10^{8} m^{-2},为未喷丸样品的 3 倍左右,说明晶界和位错等结构缺陷大大增加了熔坑的形核几率,有理由认为这些线或面等结构缺陷能够成为熔坑的形核核心;对于喷丸样品,10 次脉冲辐照后,熔坑数密度开始急剧减少,20 次后趋于平缓,产生这种现象的原因在于喷丸处理使 304 不锈钢表层杂质颗粒增多,熔坑形核几率增大,经过多次(10 次以上)轰击后,夹杂粒子由于熔坑的喷发被清除,形成所谓的 HCPEB 选择净化效应[5-6,14],降低了熔坑形核几率,而先前形成的熔坑也被后来的脉冲辐照抛光抹平,因此 10 次脉冲后熔坑数密度反而降低。

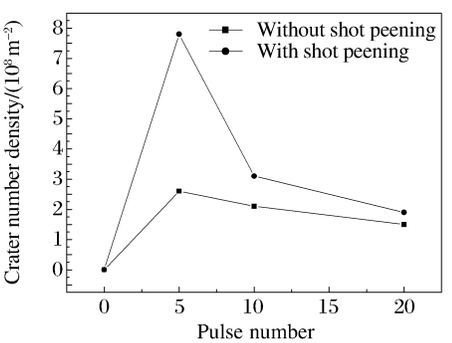


图 6 21.6 keV 的 HCPEB 辐照后 304 不锈钢表面熔坑数密度

Fig. 6 Crater number density of 304 stainless steel induced by HCPEB of 21.6 keV

与未喷丸样品相比,喷丸处理后的 304 不锈钢表层具有更多的晶界、位错等缺陷结构。这些缺陷区域往往具有相对较高的能量,熔点较低。在 HCPEB 的高能量轰击作用下,缺陷区域更易于熔化并喷发形成熔坑。另一方面,从电子束在材料改性过程中的固有特性来看,脉冲电子束辐照金属材料时会产生两种不同的相互作用,即弹性散射和非弹性散射[15]。由于晶粒内部完整晶体中原子排列具有周期性结构,当入射脉冲电子束辐照材料表面时,如果电子束波长与入射角遵循布拉格定律,就会发生相干散射,即弹性散射,在这种情况下脉冲电子束的弹性散射将进入表面以下更深的区域;由于晶界和位错附近区域内含有大量的无序原子,此时类似于非晶结构,电子束与这些晶体缺陷的相互作用以非弹性散射为主,脉冲电子束辐照这些区域时能量损耗更大,辐射深度相对较小,即单位缺陷能量沉积密度较大,沉积的能量主要以热能形式被晶体缺陷吸收,致使表层温度场分布发生变化,导致表层晶界和位错等区域的温度迅速升高,率先形核熔化,进而喷发形成熔坑。这应该就是喷丸处理后 304 不锈钢表面熔坑数密度显著高于未喷丸样品的原因。

4 结　论

HCPEB 辐照 AISI 304 奥氏体不锈钢时可在其表层形成大量火山坑状熔坑,熔坑数密度和熔坑尺寸随电子束能量的增加而减小。材料表面的杂质或夹杂物容易成为熔坑的核心,随着脉冲次数的增加,熔坑形核的杂质和夹杂物颗粒在喷发过程中更易被清除,起到净化表面的作用。喷丸和未喷丸样品的表面熔坑数密度遵循相似的分布规律,喷丸处理使熔坑数密度显著增大,晶界、位错等结构缺陷处是熔坑形核的择优区域。

References:

[1] Guan Q F, Pan L, Zou H, et al. Stacking fault tetrahedra in aluminum [J]. J Mater Sci, 2004, 39(20): 6349-6351.

[2] Cheng D Q, Guan Q F, Zhu J, et al. Mechanism of surface nanocrystallization in pure nickel induced by high-current pulsed electron beam [J]. Acta Physica Sinica, 2009, 58(10): 7300-7305. (in Chinese)
程笃庆,关庆丰,朱　健,等. 强流脉冲电子束诱发纯镍表层纳米结构的形成机制 [J]. 物理学报, 2009, 58(10): 7300-7305.

[3] Wang X T, Guan Q F, Qiu D H, et al. Defect microstructures in polycrystalline pure copper induced by high-current pulsed electron beam: The vacancy defect clusters and surface micropores [J]. Acta Physica Sinica, 2010, 59(10): 7252-7257. (in Chinese)
王雪涛,关庆丰,邱冬华,等. 强流脉冲电子束作用下金属纯 Cu 的微观结构状态——空位簇缺陷及表面微孔结构 [J]. 物理学报, 2010, 59(10): 7252-7257.

[4] Guan Q F, Gu Q Q, Li Y, et al. Microstructures in polycrystalline pure copper induced by high-current pulsed electron beam: Deformation structures [J]. Acta Physica Sinica, 2011, 60(8): 086106. (in Chinese)
关庆丰,顾倩倩,李　艳,等. 强流脉冲电子束作用下金属纯 Cu 的微观结构状态——变形结构 [J]. 物理学报, 2011, 60(8): 086106.

[5] Zhang K M, Yang D Z, Zou J X, et al. Improved in vitro corrosion resistance of a NiTi alloy by high current pulsed electron beam treatment [J]. Surf Coat Technol, 2006, 201(6): 3096-3102.

[6] Zou H, Zou J X, Chen Y J, et al. Crater-shaped damages bombarded by high current pulsed electron beams [J]. Chinese Journal of Vacuum Science and Technology, 2004, 24(5): 343-346. (in Chinese)
邹　慧,邹建新,陈亚军,等. 碳素钢强流脉冲电子束处理后的表面火山口状凹坑研究 [J]. 真空科学与技术学报, 2004, 24(5): 343-346.

[7] Qin Y, Dong C, Wang X G, et al. Temperature profile and crater formation induced in high-current pulsed electron beam processing [J]. J Vac Sci Technol A, 2003, 21(6): 1934-1938.

[8] Qin Y, Wu A M, Zou J X, et al. Numerical simulation research of crater formation induced by high current pulsed electron beam bombardment [J]. Transactions of Metal Heat Treatment, 2003, 24(1): 85-89. (in Chinese)
秦　颖,吴爱民,邹建新,等. 强流脉冲电子束轰击产生表面熔坑的数值模拟研究 [J]. 金属热处理学报, 2003, 24(1): 85-89.

[9] Proskurovsky D I, Rotshtein V P, Ozur G E, et al. Pulsed electron-beam technology for surface modification of metallic materials [J]. J Vac Sci Technol A, 1998, 16(4): 2480-2488.

[10] Han J, Sheng G M, Hu G X. Self-nanocrystallized mechanism for 0Cr18Ni9Ti by means of high energy shot peening [J]. Journal of Central South University (Science and Technology), 2009, 40(3): 644-649. (in Chinese)
韩　靖,盛光敏,胡国雄. 高能喷丸 0Cr18Ni9Ti 不锈钢自纳米化机理 [J]. 中南大学学报(自然科学版), 2009, 40(3): 644-649.

[11] Qin Y, Zou J X, Dong C, et al. Temperature-stress fields and related phenomena induced by a high current pulsed electron beam [J]. Nucl Instrum Meth B, 2004, 225(4): 544-554.

[12] Zhang K M, Zou J X, Grosdidier T, et al. Formation and evolution of craters in carbon steels during low-energy high-current pulsed electron-beam treatment [J]. J Vac Sci Technol A, 2009, 27(5): 1217-1226.

[13] Shulov V A, Nochovnaya N A. Crater formation on the surface of metals and alloys during high power ion beam processing [J]. Nucl Instrum Meth B, 1999, 148(1/2/3/4): 154-158.

[14] Zhang K M, Zou J X, Grosdidier T, et al. Improved pitting corrosion resistance of AISI 316L stainless steel treated by high current pulsed electron beam [J]. Surf Coat Technol, 2006, 201(3/4): 1393-1400.

[15] Schiller S, Heisig U, Panzer S. Electron Beam Technology [M]. New York: John Wiley & Sons Inc, 1982: 29-42.

Influence of Surface State on the Crater Formation of Metallic Material Surface Irradiated by High-Current Pulsed Electron Beam

WANG Xiao-Tong[1], PENG Dong-Jin[1], ZOU Yang[1], WAN Ming-Zhen[1], CAI Jie[1], GUAN Qing-Feng[1,2]

(1. *School of Material Science and Engineering, Jiangsu University, Zhenjiang* 212013, *China*;
2. *National Laboratory of Superhard Materials, Jilin University, Changchun* 130012, *China*)

Abstract: In order to investigate the influence of crystallographic properties of materials on the formation mechanism of surface craters, high current pulsed electron beam (HCPEB) was used to irradiate a 304 austenitic stainless steel with and without shot peening treatment. The morphologies of surface crater induced by HCPEB were characterized in detail. The experimental results indicate that a large number of volcano-like craters are inevitably formed on the surface sample after HCPEB irradiation. The number density and dimension of craters decrease with the increase in electron beam energy. It is found that inclusions on the surface layer easily become the new nucleation sites of craters; however, they are gradually removed during the period of eruption in the formation of the crater, and showing a surface purification effect. Additionally, it is established that the number density of craters on shot peening samples is significantly increased than untreated ones. The number densities of craters on the samples with and without shot peening treatment follow the similar law. The present results indicate that the crystallographic properties of materials have a great importance to the formation of surface craters, and the structure defects, such as grain boundaries and dislocations are the preferred sites of the nucleation of craters.

Key words: high current pulsed electron beam; 304 stainless steel; crater