

УДК 621.3.032.21

А. П. КИСЛИЦЫН, А. А. ТАРАН, П. А. КОМОЗЫНСКИЙ

Национальный аэрокосмический университет им. Н. Е. Жуковского «ХАИ», Украина

ФОРМИРОВАНИЕ КРАТЕРОВ НА ПОВЕРХНОСТИ КОМПОЗИЦИОННЫХ ТЕРМОЭМИССИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ В СИСТЕМЕ $Ba_xSr_{1-x}HfO_3 - W$ ПРИ ТОКООТБОРЕ

Представлены результаты экспериментальных исследований трансформации поверхности термоэммиттеров из прессованных композиционных материалов в системе $Ba_xSr_{1-x}HfO_3$ с мелкодисперсным вольфрамом. Показано, что возникновение кратеров при вакуумных пробоях межэлектродного промежутка обусловлено не интенсивной ионной бомбардировкой поверхности термоэммиттера, а формированием токовых каналов в зернистой структуре объема термоэммиттера, плавлением материала в этих каналах и выносом расплавленного материала на поверхность. Пространственная локализация кратеров на поверхности термоэммиттера не связана с зернами вольфрама.

Ключевые слова: термоэммиттер, кратер, зернистая структура, импульсный ток, токовый канал.

1. Общая постановка проблемы и её связь с научно-практическими задачами, обзор публикаций и анализ нерешенных проблем

Научный интерес к исследованию материалов термокатодов, обладающих высокой эмиссионной способностью и обеспечивающих большие плотности эмиссионных токов, сохраняется постоянно высоким [1, 2]. Это обусловлено использованием термокатодов в устройствах авиационно-космической техники (электрореактивные двигатели), в устройствах систем связи (мощные генераторные лампы СВЧ диапазона), в современных технологических устройствах (электронно-лучевые пушки, источники потоков ионов, плазмотроны и пр.). При этом, материалы термоэммиттеров должны не только обеспечивать плотности электронных токов на уровне ~ 100 А/см² и более, обладать стабильными эмиссионными свойствами, но и удовлетворять специфическим требованиям устройств, в которых они используются. Так, в электронно-лучевых пушках от катода требуется повышенная эмиссионная способность, стойкость к воздействиям газов и напыляемых на поверхность эмиттера свариваемых материалов, стабильность задаваемой исходной формы поверхности (для стабилизации фокусируемого пучка) [3]. В [4–6] было показано, что материалы на основе композитов в системе $Ba_xSr_{1-x}HfO_3 - W$ обладают высокой эмиссионной способностью (до 1000 А/см²) и хорошей стойкостью к отравляющему действию кислородосодержащих газов, что позволяет их рассматривать как перспективные материалы катодов для электронно-лучевых пушек.

Однако при эксплуатации этих материалов была отмечена их склонность к формированию на эмиттирующей поверхности кратеров и наплывов [6, 7], которые заметно искажают исходную плоскую форму поверхности, что должно приводить к нарушению работы фокусирующей системы пушки.

Эти обстоятельства обуславливают актуальность дальнейших исследований материалов в системе $Ba_xSr_{1-x}HfO_3 - W$.

2. Цель исследований

Учитывая изложенное выше, целью работы было установление причин появления на эмиттирующей поверхности катодов, изготовленных из прессованных композиционных материалов в системе $Ba_xSr_{1-x}HfO_3 - W$, нарушений исходной плоской структуры поверхности.

3. Результаты исследований

Образцы исследуемых композиционных материалов в системе $Ba_xSr_{1-x}HfO_3 - W$ были изготовлены стандартными методами порошковой металлургии, описанными в работе [4]. Электронно-микроскопическое изображение исходной рабочей поверхности одного из термокатодов, подготовленного к исследованиям, представлено на рис. 1. Характер поверхности образцов других составов перед исследованиями принципиально такой же: зернистая структура с участками выраженной конгломерации вольфрама (светлые области) и следами механической обработки

Исследования осуществлялись в лабораторном

вакуумном диоде с плоской геометрией электродов, межэлектродным зазором 1 мм, давлением остаточных газов в ка мере не хуже $6 \cdot 10^{-5}$ Па при импульсном отборе эмиссионного тока. Генератор высоковольтных импульсов обеспечивал регулировку амплитуды анодного напряжения (300...7000) В и два режима посылки импульсов длительностью (6...30) мкс: с частотой 100 Гц и с использованием однократных импульсов.

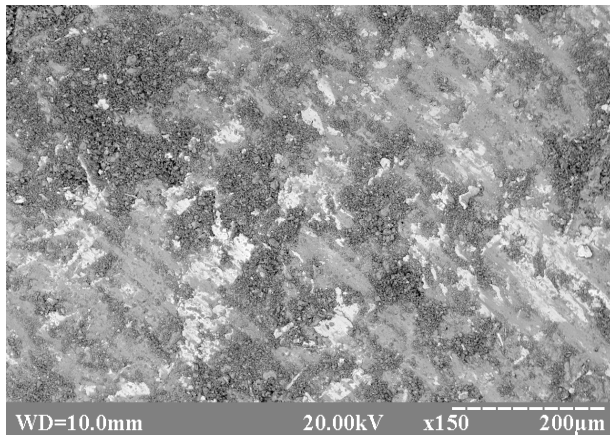


Рис. 1. Электронно-микроскопическое изображение рабочей поверхности термоэмиттера $Ba_{0,5}Sr_{0,5}HfO_3$ с 24 мас.% W перед испытаниями

Ранее [7] было показано, что при отборе эмиссионных токов большой плотности возникают вакуумные пробой межэлектродного промежутка, которые сопровождаются появлением кратеров. Сами пробой возникают только при превышении допустимого уровня плотности электронного эмиссионного тока. В представляемых данной работой исследованиях установлено, что вне зависимости от состава материала термоэмиттера после вакуумных пробоев на его поверхности появляются формообразования в виде кратеров, наплывов, примыкающих к границам кратеров, и вздутий (рис. 2). Анализ электронно-микроскопических изображений, приведенных на рис. 2, позволяет отметить, что в области наплывов, примыкающих к кратерам, материал термоэмиттеров имеет высокопористую структуру.

Элементный состав поверхности в целом и отдельных ее участков контролировался в процессе электронно-микроскопических исследований при помощи энергодисперсионного микроанализатора ЭДАР на растровом электронном микроскопе РЭМ - 106. Эти исследования подтвердили отмеченное в [8] обогащение поверхностных слоев термоэмиттеров гафнием (оксидом гафния), происходящее в процессе работы эмиттера при высоких температурах.

Изменения структуры поверхности и состава приповерхностных слоев рассмотрим на примере

образца $Ba_{0,25}Sr_{0,75}HfO_3$ - 16%W, электронно-микроскопические исследования которого были проведены сразу после высоковольтного пробоя.

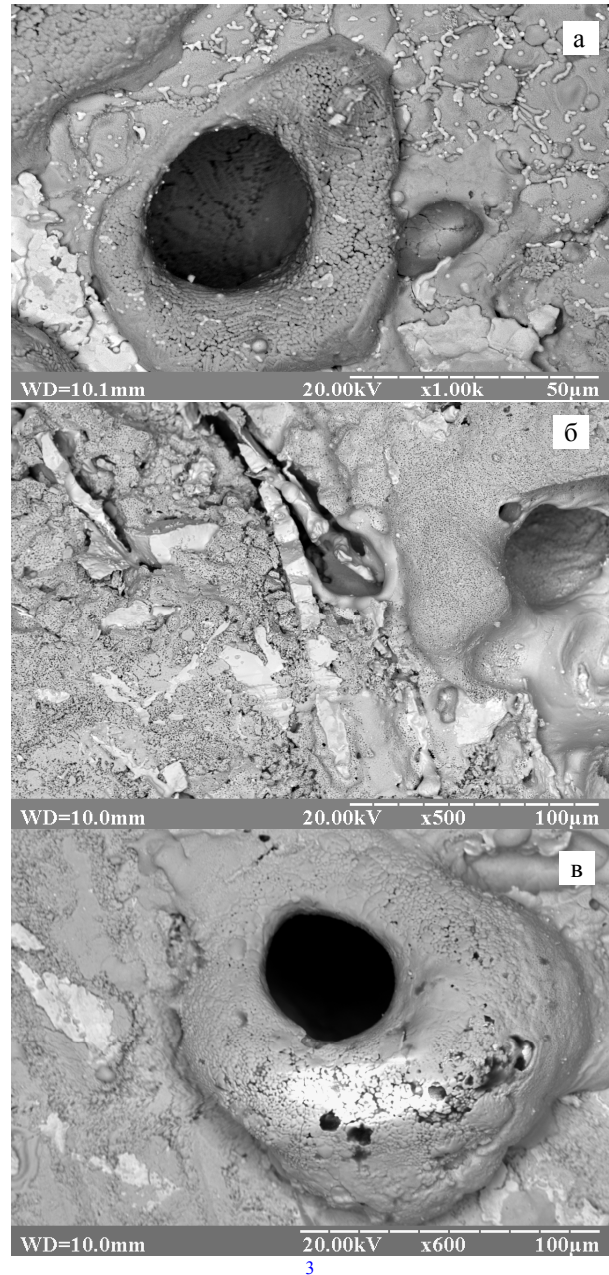


Рис. 2. Электронно-микроскопические изображения кратеров на эмитирующих поверхностях образцов:
а - $Ba_{0,5}Sr_{0,5}HfO_3$ с 60мас.%W;
б - $Ba_{0,5}Sr_{0,5}HfO_3$ с 24мас.%W;
в - $Ba_{0,75}Sr_{0,25}HfO_3$ - 16%W

Пробой межэлектродного промежутка произошел при температуре $T = 1605$ К при анодном напряжении 5 кВ после того как при анодном напряжении 4 кВ был зарегистрирован полный эмиссионный ток 6 А (площадь эмитирующей поверхности ~3,4 мм²). После пробоя отбор тока был прекращен, температура образца понижена до ком-

натной и проведен анализ поверхности термоэмиттера.

Электронно-микроскопическое изображение участка поверхности с кратером и отмеченными на изображении областями контроля элементного состава приведено на рис. 3. Элементный состав в выделенных областях и средний по поверхности приведен в таблице в виде относительного числа атомов, т.е. числа атомов элементов, приходящихся на один атом выбранного элемента, в нашем случае гафния.

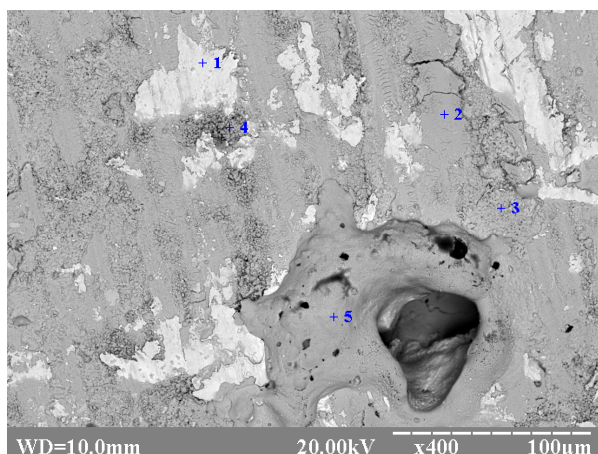


Рис. 3. Электронно-микроскопическое изображение поверхности образца $(\text{Ba}_{0,25}\text{Sr}_{0,75})\text{HfO}_3$ с 16 мас.%W после пробоя (цифрами обозначены области контроля состава)

Таблица

Относительный элементный состав поверхности образца $\text{Ba}_{0,25}\text{Sr}_{0,75}\text{HfO}_3$ с 16 мас. %W в областях, отмеченных на рис. 3

Область контроля	Относительное число атомов соответствующих элементов				
	Hf	Ba	Sr	O	W
Вся поверхность до испытаний	1	0,19	0,34	7,41	0,57
Вся поверхность после испытаний	1	0,12	0,21	4,57	0,26
1	1	0	0	0	27,5
2	1	0,26	0,89	0,30	0
3	1	0,07	0,15	7,42	0
4	1	0,15	0,21	6,0	0,20
5	1	0,14	0,67	12,4	0

Результаты анализа элементного состава после работы, которые представлены в таблице, свидетельствуют о том, что поверхность в целом покрыта преимущественно гафнием (оксидом гафния) с большим избытком кислорода (457 атомов O на 100 атомов Hf) и малым содержанием бария и стронция на поверхности (соответственно 1 и 2 атома на 10

атомов гафния вместо 2,5 и 7,5 атомов согласно стехиометрическому составу $\text{Ba}_{0,25}\text{Sr}_{0,75}\text{HfO}_3$). Область 1 представляет собой зерно W, покрытое пленкой гафния. Область 2 – компактная область практически стехиометрического состава $\text{Ba}_{0,25}\text{Sr}_{0,75}\text{HfO}_3$ с некоторым избытком стронция и заметным избытком кислорода. Область 3 – пористая область, состоящая из гафния (~ 70%) и $(\text{Ba}_{0,25}\text{Sr}_{0,75}\text{HfO}_3)$ с нарушенной стехиометрией по стронцию. Область 4 – зернистая область, содержащая зерна Hf (HfO), $\text{Ba}_{0,25}\text{Sr}_{0,75}\text{HfO}_3$, BaHfO_3 и малое количество вольфрама. Наплыв вблизи кратера (область 5), состоит из $\text{Ba}_{0,25}\text{Sr}_{0,75}\text{HfO}_3$ с незначительным нарушением стехиометрии по стронцию и заметным недостатком бария. В этой области наблюдается очень высокое содержание кислорода, что может быть объяснено высокой сорбционной способностью высокопористого материала наплыва. Недостаток бария и стронция в материале наплыва можно объяснить диссоциацией соединения при его перегреве и селективным испарением бария и стронция.

Электронно-микроскопические изображения поверхности (см. рис. 2 и 3) и результат контроля элементного состава в различных областях поверхности позволяет предположить, что кратеры, по видимому, сформировались не в результате бомбардировки эмиттера ионами, образованными за счет анодных процессов, а в результате плавления материала эмиттера в токовом канале внутри эмиттера с последующим выносом расплавленного материала на поверхность. Обоснованием к такому предположению может служить наличие у всех кратеров каналов, уходящих вглубь образца термоэмиттера. Такие достаточно глубокие каналы не могли быть образованы ионами с энергией ~ 6 кэВ при отсутствии в лабораторном диоде специальной системы фокусирующей поток ионов.

Дополнением к приведенному обоснованию может служить электронно-микроскопическое изображение поперечного скола того же образца $(\text{Ba}_{0,25}\text{Sr}_{0,75}\text{HfO}_3$ с 16 мас. %W), представленное на рис. 4.

На изображении достаточно четко видна область проплавления прессованного композиционного материала, расположенная во внутренней части образца. Вблизи боковой поверхности образца (правая часть изображения) видна пористая структура сплавленных зерен материала, а в левой части - полость, в которой расположены слоистые структуры. Такие трансформации внутренних областей хорошо объясняются неравномерно распределенным током, протекающим через образец и комплексом процессов электропереноса.

Для выяснения механизма возникновения кратеров на эмитирующей поверхности важно устано-

вить закономерность их пространственного расположения на поверхности. С этой целью на рис. 5 приведено сопоставление изображений одного и того же участка поверхности термоэмиттера перед испытаниями (а), после первого этапа испытаний с определением предельных значений эмиссионных токов (б) и после повторных испытаний с отбором токов, не приводящих к пробое межэлектродного промежутка (в). Сопоставление изображений эмитирующей поверхности до и после эмиссионных испытаний (рис. 5) позволяет отметить, что выход каналов на эмитирующую поверхность происходит вдали от зерен вольфрама. Это свидетельствует о том, что пространственное расположение формирующихся токовых каналов определяется не участками материала с повышенной электропроводностью (вольфрамом), а другими факторами.

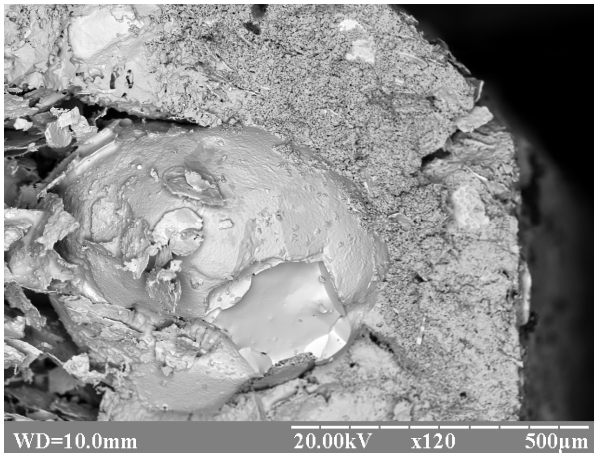


Рис. 4. Электронно-микроскопическое изображение поперечного скола образца $(\text{Ba}_{0,25}\text{Sr}_{0,75})\text{HfO}_3$ с 16 мас.%W

Анализ процессов, протекающих при отборе эмиссионных токов от термоэмиттеров, изготовленных из композиционных материалов, позволяет отметить следующее. Протекание через материал эмиттера токов большой плотности сопровождается значительным перегревом приповерхностных слоев материала [9]. Зернистость структуры материала должна приводить к неоднородному выделению джоулева тепла и неравномерному перегреву материала термоэмиттера. В области преимущественного протекания тока (токовый канал) температура материала может достигнуть температуры плавления и даже превысить ее. Образовавшаяся жидкая фаза будет вытесняться на поверхность, формируя при этом вздутия и кратеры.

Сопоставляя полученный результат с работой [7], необходимо отметить, что в наблюдаемых ситуациях вакуумный пробой инициируется выбросами вещества (плазмообразующего вещества) из катода,

а не распылением вещества анода под действием электронной бомбардировки.

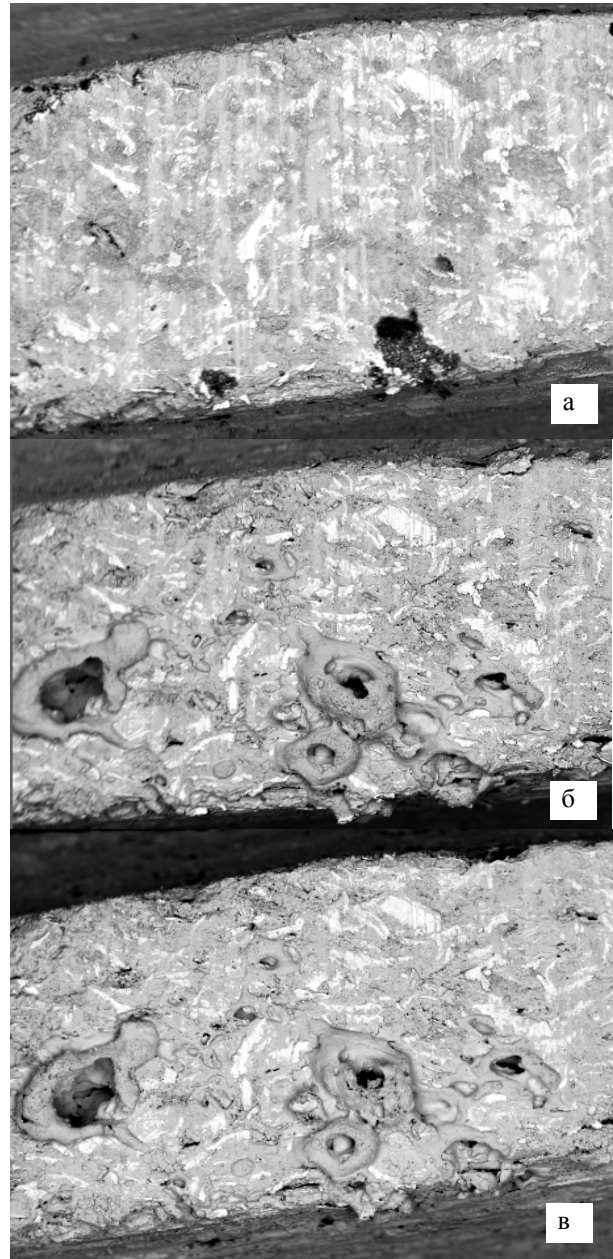


Рис. 5. Электронно-микроскопическое изображение одного и того же участка поверхности образца $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{HfO}_3 - 24\%W$ перед (а) и после (б, в) эмиссионных испытаний

Выводы

Проведенные экспериментальные исследования показали, что причиной появления кратеров на поверхности прессованных композиционных термоэмиттеров не является ионная бомбардировка.

Пространственная удаленность кратеров от зерен вольфрама позволяет предположить локализацию кратеров на участках поверхности термоэмит-

тера, обладающих наилучшими эмиссионными свойствами.

Механизм образования кратеров представляет следующим образом:

- формирование в зернистой структуре материала перколяционных токовых каналов;
- разогрев вещества в области токовых каналов, его плавление и вынос на эмитирующую поверхность.

Результаты проведенных экспериментальных исследований будут в дальнейшем использованы для разработки теоретической модели формирования кратеров на эмитирующей поверхности зернистых композиционных термоэмиттеров.

Литература

1. Ашкинази, Л. А. *Материалы электронных эмиттеров [Электронный ресурс]: учеб. пособие / Л. А. Ашкинази. – М.: Моск. гос. ин-т электроники и математики (Технический университет), 2007. – Режим доступа: http://lit.lib.ru/editors/a/ashkinazi_1_a/text_0050.shtml. – 09.06.2016.*

2. Ашкинази, Л. А. *Результаты в области термо- и вторичноэлектронных катодов за 1990–2016 годы [Электронный ресурс]. – Режим доступа: http://lit.lib.ru/a/ashkinazi_1_a/text_0070.shtml. – 09.06.2016.*

3. Пашкин, А. Н. *Конструктивные особенности сварочных электронно-лучевых пушек [Текст] / А. Н. Пашкин, Е. А. Болдарев // X Всероссийская научно-практическая конференция творческой молодежи "Актуальные проблемы авиации и космонавтики", Красноярск, РФ, 8-12 апреля 2014 г. – 2014. – Т. 1. – С. 114 – 115.*

4. *Материал для термоэлектронного катода [Текст] / О. П. Кислицын, А. О. Таран, С. К. Островский, С. С. Орданьян, П. А. Комозинский, С. И. Планковский / Пат. на винахід 97045 (Україна): МПК 7 НО1J/00 ; заявник й патентовласник Нац. аерокосм. ун-т ім. М. С. Жуковського „Харк. авіац. ін-т”. – № a201011383, заявл. 24.09.2010 ; надрук. 26.12.2011, Бюл. № 24. – 3 с.*

5. *Исследования композиционного материала на основе $Ba_{0,5}Sr_{0,5}HfO_3$ с вольфрамом. Часть 1. Термоэмиссионные свойства [Текст] / А. П. Кислицын, А. А. Таран, П. А. Комозинский, С. С. Орданьян // *Авиационно-космическая техника и технология. – 2013. – № 4(101). – С. 26 – 31.**

6. *1000 A/cm² cathode: to be or not to be? [Text] / A. Taran, O. Kyslytsyn, O. Podshyvalova, S. Ordanjan // Proc. 14th Int. Vacuum Electronic Conf. IVEC 2013, Paris, France, 21–23 May 2013. – P. 1–2.*

7. *Vacuum pulse breakdown ignition in a gap with high-current-density cathode [Text] / A. O. Taran,*

O. P. Kyslytsyn, A. M. Okhrimovskyy, D. A. Oranska // Proc. of the XX-th Int. Conf of Gas Discharges and their Applications, Orleans, France, 6th – 11th July 2014. – 2014. – Vol. 1. – P. 394/745–397/745.

8. *Исследования композиционного материала на основе $Ba_{0,5}Sr_{0,5}HfO_3$ с вольфрамом. Часть 2. Структура и состав поверхности [Текст] / А. П. Кислицын, А. А. Таран, П. А. Комозинский, С. С. Орданьян, С. Л. Абашиш // *Авиационно-космическая техника и технология. – 2014. – № 3(110). – С. 20 – 25.**

9. *Кислицын, А. П. Распределение температуры в активном слое оксидного катода при непрерывном и импульсном токоотборах [Текст] / А. П. Кислицын, С. Ю. Подгорский, А. А. Таран // *Авиационно-космическая техника и технология. – 2012. – № 3(90). – С. 47 – 55.**

References

1. Ashkinazi, L. A. *Materialy jelektronnyh jemit-terov : ucheb. posobie [Materials electron emitters: Proc. benefit]. Moscow, Mosk. gos. in-t jelektroniki i matematiki (Tehnicheskij universitet) Publ. Available at: http://lit.lib.ru/editors/a/ashkinazi_1_a/text_0050.shtml (accessed 09.06.2016).*

2. Ashkinazi, L. A. *[Advances in the Area of Thermionic Cathodes and Secondary-Emission Cathodes in 1990 – 2016]. Available at: http://lit.lib.ru/a/ashkinazi_1_a/text_0070.shtml (accessed 09.06.2016). (In Russian).*

3. Pashkin, A. N., Boldarev, E. A. *Konstruktivnye osobennosti svarochnyh jelektronno-luchevykh pushek [Features welding electron beam guns]. X Vserossijskaja nauchno-prakticheskaja konferencija tvorcheskoj molodezhi "Aktual'nye problemy aviicii i kosmonavтики" [X All-Russian scientific-practical conference of creative youth "Actual problems of aviation and cosmonautics" Krasnoyarsk, Russian Federation, [8-12 April 2014], vol. 1, pp. 114 – 115.*

4. Kyslytsyn, O. P., Taran A. O., Ostrovsky, E. K., Ordanjan, S. S., Komozynskij, P. A., Plankovskiy, S. I. *Material dlya termoelektronnoho katoda [Material for thermionic cathode]. Patent Ukraine, no. a201011383, 2011, Bul. 24. 3 p.*

5. Kyslytsyn, O. P., Taran A. O., Komozynskij, P. A., Ordanjan, S. S. *Investigations of the composite material based on $Ba_{0,5}Sr_{0,5}HfO_3$ with tungsten. part 1. thermionic properties. Aviacijno-kosmicna tehnika i tehnologija – Aerospace technic and technology, 2013, no. 4 (101), pp. 26 – 31.*

6. Taran, A., Kyslytsyn O., Podshyvalova O., Ordanjan S. *1000 A/cm² cathode: to be or not to be? Proc. 14th Int. Vacuum Electronic Conf. IVEC 2013, Paris, France, 21–23 May 2013, pp. 1–2.*

7. Taran, A. O., Kyslytsyn, O. P., Okhrimovskyy, A. M., Oranska, D. A. *Vacuum pulse breakdown ignition in a gap with high-current-density cathode. Proc. of*

the XX-th Int. Conf of Gas Discharges and their Applications, Orleans, France, 6th – 11th July 2014, vol. 1, pp. 394/745–397/745.

8. Kyslytsyn, O. P., Taran, A. O., Komozyński, P. A., Orđanjan, S. S., Abashin S. L. [Investigations of the composite material based on Ba_{0,5}Sr_{0,5}HfO₃ with tungsten. Part 2. Surface structure and composition]. *Aviacijno-kosmicna tehnika i tehnologija – Aerospace*

technic and technology, 2014, no. 3 (110), pp. 20 – 25. (In Russian).

9. Kyslytsyn, A. P., Podgorskij, S. Ju., Taran, A. A. [The temperature distribution in the active layer of the oxide cathode in the continuous and pulsed tokootborah]. *Aviacijno-kosmicna tehnika i tehnologija – Aerospace technic and technology*, 2012, no. 3 (90), pp. 47 – 55. (In Russian).

Поступила в редакцию 7.11.2016, рассмотрена на редколлегии 7.12.2016

ФОРМУВАННЯ КРАТЕРІВ НА ПОВЕРХНІ КОМПОЗИЦІЙНИХ ТЕРМОЕМІСІЙНИХ МАТЕРІАЛІВ В СИСТЕМІ Ba_xSr_{1-x}HfO₃ ПІД ЧАС СТРУМОВІДБОРИ

О. П. Кислицын, А. О. Таран, П. А. Комозинський

Наведено результати експериментальних досліджень трансформації поверхні термоемітерів із пресованих композиційних матеріалів в системі Ba_xSr_{1-x}HfO₃ з дрібнодисперсним вольфрамом. Показано, що виникнення кратерів при вакуумних пробоях між електродного проміжку зумовлено не інтенсивним іонним бомбардуванням поверхні термоемітера, а формуванням струмових каналів в зернистій структурі об'єму термоемітера, плавленням матеріалу в цих каналах і винесенням розплавленого матеріалу на поверхню.

Ключові слова: термоемітер, кратер, зерниста структура, плавлення, струмовий канал.

CRATERS FORMATION ON THE COMPOSITE THERMIONIC MATERIALS SURFACE IN Ba_xSr_{1-x}HfO₃ - W SYSTEM DURING CURRENT TAKE-OFF

O. P. Kyslytsyn, A. O. Taran, P. A. Komozyński

Experimental investigations results of thermionic emitters surface transformation for pressed composition materials based on Ba_xSr_{1-x}HfO₃ with the fine tungsten are presented. It is shown that craters appearance is due to formation current channels in the volume grain structure of emitter interelectrode gap vacuum discharges but is not due intensive ion bombardment of emitter's surface. Material melting in these channels and removal of molten material on the surface are also take place. Spatial localization of craters on the emitter surface is not associated with tungsten grains.

Key words: thermionic emitter, crater, grain structure, melting, current channel.

Кислицын Александр Петрович – канд. техн. наук, доцент, доцент каф. физики, Национальный аэрокосмический университет им Н. Е. Жуковского «Харьковский авиационный институт», Харьков, Украина, e-mail: apkyslytsyn@mail.ru

Таран Анатолий Алексеевич – д-р техн. наук, проф., зав. каф. физики, Национальный аэрокосмический университет им Н. Е. Жуковского «Харьковский авиационный институт», Харьков, Украина, e-mail: anatolytaran49@gmail.com.

Комозинський Петр Адамович - канд. техн. наук, доцент, проф. каф. физики, Национальный аэрокосмический университет им Н. Е. Жуковского «Харьковский авиационный институт», Харьков, Украина.

Kyslytsyn Oleksander – Candidate of Technical Science, Assistant Professor of Dept. of physics, National Aerospace University named after N. Ye. Zhukovsky “KhAI”, Kharkov, Ukraine, e-mail: apkyslytsyn@mail.ru.

Taran Anatoliy – Dr. Sc. Sciences, prof., head Dep. Physics, National Aerospace University named after N. Ye. Zhukovsky “KhAI”, Kharkov, Ukraine, e-mail: anatolytaran49@gmail.com.

Komozyński Petr - Candidate of Technical Science, Professor of Dept. of physics, National Aerospace University named after N. Ye. Zhukovsky “KhAI”, Kharkov, Ukraine.