

# 退火温度对高纯钨靶显微组织和内应力的影响

崔子振<sup>1</sup> 林岩松<sup>1</sup> 石刚<sup>1</sup> 李阳<sup>2</sup> 张德智<sup>1</sup>

(1 航天材料及工艺研究所,北京 100076)

(2 航天长征睿特科技有限公司,天津 300462)

**文 摘** 采用热等静压工艺制备了高纯钨靶,并在不同温度下对其进行退火处理。采用金相显微镜、TEM、XRD 和硬度计对不同温度退火的高纯钨靶的显微组织和内应力进行表征。结果表明:高纯钨靶经 1 200℃真空退火后,保留了热等静压后的细晶组织,晶粒未发生长大,但是位错密度却大幅度减小,晶格畸变率下降,硬度值降低,这是由于退火处理使热等静压高纯钨靶发生回复,内应力得以释放。当退火温度低于 1 200℃时,钨靶的内应力去除不完全,当退火温度高于 1 200℃时钨靶的晶粒开始长大,故热等静压高纯钨靶的最佳退火温度是 1 200℃。

**关键词** 退火,高纯钨靶,显微组织,内应力

中图分类号:TU51

DOI:10.12044/j.issn.1007-2330.2017.04.014

## Effect of Annealing Temperature on Microstructure and Internal Stress of High Purity Tungsten Target

CUI Zizhen<sup>1</sup> LIN Yansong<sup>1</sup> SHI Gang<sup>1</sup> LI Yang<sup>2</sup> ZHANG Dezhi<sup>1</sup>

(1 Aerospace Research Institute of Materials & Processing Technology, Beijing 100076)

(2 Aerospace Long March Arimt Technology Co., Ltd, Tianjin 300462)

**Abstract** High purity tungsten target was prepared by hot isostatic pressing technique and annealed at different temperatures. The microstructure and internal stress of high purity tungsten target were characterized by metallographic microscope, TEM, XRD and hardness tester. The results show that high purity tungsten target after vacuum annealing at 1 200℃ retains the fine grain structure obtained by hot isostatic pressing treatment, grain size does not grow but the dislocation density, lattice distortion and hardness are reduced greatly. This is due to the high purity tungsten target by hot isostatic pressing generates recovery after annealing treatment and the internal stress is released. When the annealing temperature is below 1 200℃, the internal stress of tungsten target cannot be removed completely. When annealing temperature is above 1 200℃, the grain size of the tungsten target begins to grow. So the optimum annealing temperature of high purity tungsten target prepared by hot isostatic pressing is 1 200℃.

**Key words** Annealing, High purity tungsten target, Microstructure, Internal stress

### 0 引言

高纯金属钨具有高电子迁移抗力、高温稳定性和高的电子发射系数,能够弥补传统集成电路铝、硅基器件易于电泄露和铝膜退化等问题,因此高纯钨靶被广泛用作半导体大规模集成电路的门电路电极材料、布线材料和屏蔽金属材料<sup>[1-2]</sup>。

目前,高纯钨靶主要采用熔炼轧制工艺制备,具体工艺是以钨条为原料,采用电弧熔炼、电子束熔炼

和区域熔炼技术提纯金属钨,钨材为铸态,产品纯度较高,但是钨材晶粒粗大,晶界脆性大,加工性能极差<sup>[3-7]</sup>。热等静压工艺<sup>[8]</sup>是制备细晶高致密度难熔金属的有效方法,但是热等静压产品中往往会保留很大的内应力,在后续冷却及机械加工过程易于开裂,最终导致产品报废。因此需要对热等静压产品进行退火处理来消除材料内应力,使工件发生回复,晶格畸变率下降,硬度降低,产品具有良好的机械加工性

收稿日期:2016-12-05

第一作者简介:崔子振,1985年出生,工程师,主要从事难熔金属靶材研究工作。E-mail:cuizzhca@ sina.com

能<sup>[9-10]</sup>。

本文对热等静压高纯钨靶在不同温度下进行退火处理,使其既能去除内应力,又能避免晶粒长大,并且研究了退火温度对其显微组织和内应力的影响规律。

## 1 实验

以纯度为 99.999% 的高纯钨粉为原料,经冷等静压成形后装入包套并进行真空热除气,将除气完成的包套置于热等静压机中进行压制,然后将热等静压高纯钨靶进行退火处理。退火工艺为退火温度分别选取 800、1 000、1 200 和 1 400℃,保温时间为 3 h,随炉降温。试样尺寸为  $\Phi 60$  mm $\times$ 50 mm 的圆柱。采用金相显微镜、TEM、XRD 和硬度计对不同温度退火处理后高纯钨靶的显微组织和内应力进行分析和表征。

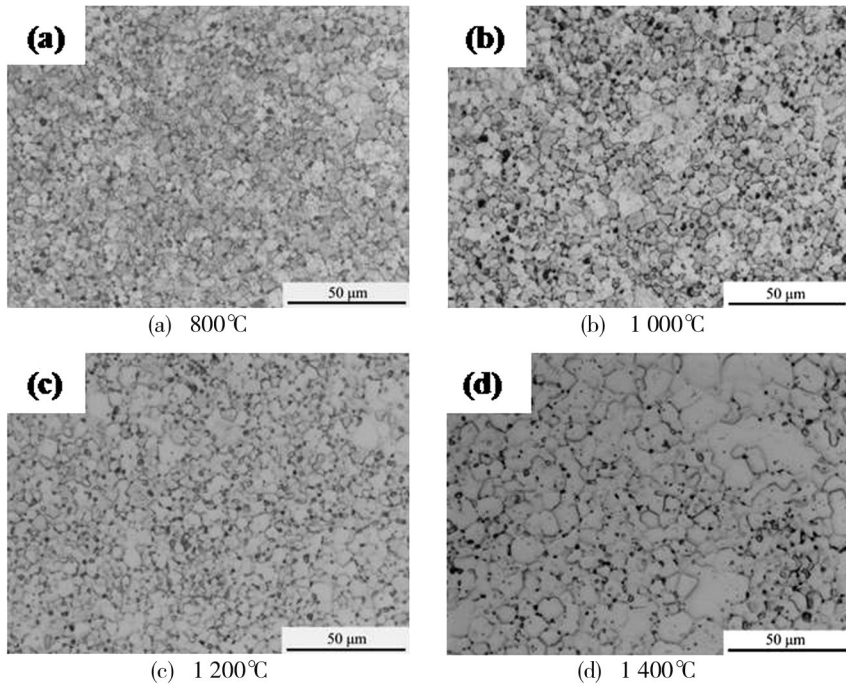


图 1 不同温度退火处理后高纯钨靶金相照片

Fig.1 Optical micrographs of high purity tungsten target after annealing treatment at different temperatures

## 2.2 TEM 分析

图 2 为不同温度退火处理后高纯钨靶 TEM 照片,可以看出,800℃退火的试样晶粒内部分布着高密度位错,晶界处位错密度较晶粒内部低,高的位错密度必然导致高纯钨靶高的内应力,由此可知 800℃退火处理对高纯钨靶内应力去除并不明显,这是因为退火温度低,原子迁移能力有限,回复效果不明显;1 000℃退火试样晶粒内部位错密度大幅度下降,晶界处位错密度依然较高,这是因为随着退火温度的升高,原子迁移能力增强,位错滑移速率提高,位错可以在滑移面上滑移和交滑移,晶粒内部位错向晶界移

## 2 结果与讨论

### 2.1 金相组织分析

图 1 为不同温度退火处理后高纯钨靶的金相照片,可以看出,不同温度退火后高纯钨靶的晶粒均为不规则的等轴晶,当退火温度为 800、1 000 和 1 200℃时,高纯钨靶的晶粒比较细小,且晶粒尺寸分布较为均匀,平均晶粒尺寸为 5 μm 左右;当退火温度提高到 1 400℃时,高纯钨靶的晶粒尺寸分布变得不均匀,部分晶粒发生明显长大,最大晶粒尺寸达到 30 μm,平均晶粒尺寸为 15 μm 左右。说明在 800~1 200℃退火处理时,高纯钨靶只发生回复过程,并没有发生明显的再结晶;当退火温度提高到 1 400℃时,高纯钨靶已经发生明显的再结晶并出现部分晶粒异常长大。因此最佳退火处理温度为 1 200℃。

动,发生一定程度的回复,内应力有所降低;1 200℃退火处理的试样无论是晶粒内部还是晶界处,位错大部分消失,这说明回复过程基本完成,内应力大部分已经去除,结合金相观察结果发现晶粒未见明显长大,说明 1 200℃退火尚不能为晶粒长大提供所必需的驱动力;1 400℃退火处理的试样不仅晶粒内部和晶界处位错几乎完全消失,而且出现了部分晶粒异常长大的现象,这说明 1 400℃退火处理消除了位错缠结引起的阻碍作用,晶界迁移能力得到增强,晶粒开始长大。因此,热等静压高纯钨靶最佳退火处理温度为 1 200℃,这与金相测试结果相一致。

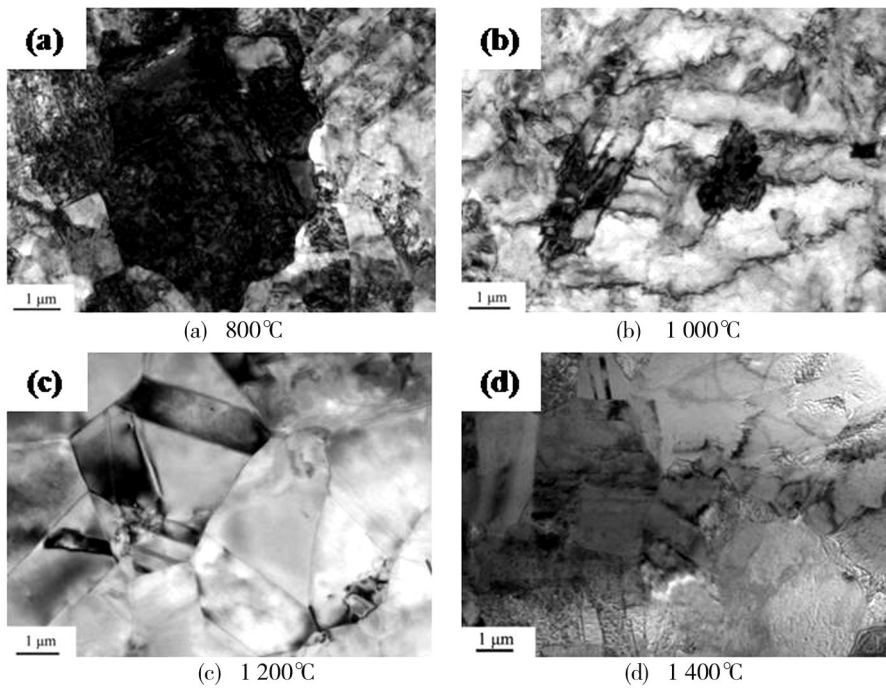


图2 不同温度退火处理后高纯钨靶的 TEM 照片

Fig.2 TEM micrographs of high purity tungsten target after annealing treatment at different temperatures

### 2.3 硬度分析

高纯钨靶退火处理前的硬度值为 45.8HRC,随着退火温度的提高,热等静压高纯钨靶的硬度呈现下降趋势。800°C退火处理的试样硬度值为 45.2HRC;与 800°C退火的试样相比,1 000°C退火处理试样的硬度变化不大,硬度值为 43.2HRC;与 800°C退火的试样相比,1 200°C退火处理试样的硬度下降较为明显,降幅为 8.3HRC;随着退火温度进一步提高到 1 400°C,材料的硬度值基本稳定。这说明 1 200°C退火处理后高纯钨靶的内应力大部分已经去除,这与 TEM 测试结果吻合。

继续提高退火温度至 1 400°C,晶粒开始长大,总的晶界数量减少,高纯钨靶硬度略有下降,甚至出现部分晶粒异常长大现象。退火处理的温度越高,应力去除越完全,硬度降低越明显,进而起到改善材料机加工性能的作用。但是温度过高,晶粒出现异常长大,会对材料的使用性能造成不良影响。因此,综合金相组织、TEM 和硬度测试结果,表明热等静压高纯钨靶最佳退火处理温度为 1 200°C。

### 2.4 XRD 分析

图 3 为不同温度退火处理后高纯钨靶的 X 射线衍射图谱,可以看出,三条主衍射峰,均与理想晶体钨相一致,这说明采用热等静压法制备的高纯钨靶具有各向同性,没有发生择优取向;在 X 射线衍射谱图中除了钨的特征峰,没有发现有其他物质的衍射峰,证明试样纯度较高。800 和 1 000°C退火处理试样的衍射峰较 1 200 和 1 400°C退火试样的衍射峰明显向高

角度偏移,这是由于内应力过大,晶格畸变导致的结果。

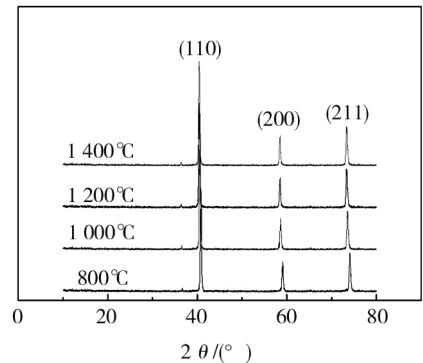


图3 不同温度退火处理后高纯钨靶的 X 射线衍射图谱

Fig.3 XRD patterns of high purity tungsten target after annealing treatment at different temperatures

以第一强峰(110)晶面为基准,根据 XRD 中的衍射角数据计算相应的晶面间距  $d$ 、晶格常数  $a$ 、晶格畸变率  $\gamma$  等参数。将不同温度退火处理的高纯钨靶的 XRD 测试及计算结果列于表 1。

表 1 不同温度退火处理后高纯钨靶的 XRD 测试及计算结果  
Tab.1 XRD test and calculation results of high purity tungsten target after annealing treatment at different temperatures

退火处理温度/°C	衍射角 $2\theta/(\circ)$	晶面间距 $d/\text{nm}$	晶格常数 $a/\text{nm}$	晶格畸变率 $\gamma/\%$
800	40.698	22.175	0.31360	0.923
1000	40.576	22.233	0.31442	0.667
1200	40.350	22.351	0.31609	0.136
1400	40.330	22.361	0.31623	0.092

(下转第 74 页)

齿形切屑中形成明显的绝热剪切带。在扫描电镜下测量不同切削速度下绝热剪切带的宽度(图4)。从图5可以看出:绝热剪切带宽度随切削速度增加而减小,从48.75 m/min时的平均7.9  $\mu\text{m}$ 减小到76.18 m/min时的6.5  $\mu\text{m}$ ,当切削速度提高到97.52 m/min时减小到5.7  $\mu\text{m}$ 。这是因为当切削速度提高时,切削过程中材料的变形速度增加导致锯齿形切屑间形成绝热剪切塑性变形带。

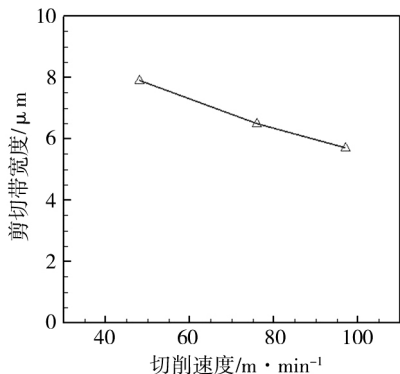


图5 剪切带宽度随切削速度变化图

Fig.5 Variation of of shear band width with cutting speed

### 3 结论

(1) 钛合金切削中当切削速度大于48.75 m/min时,切屑由带状转变为锯齿形。

(2) 锯齿形切屑的形成过程导致了切削过程中切削力的波动变化,切削力的锯齿形波动与切屑的锯齿形相一致。

(3) 锯齿形切屑形成中塑性变形区的宽度随切削速度的增加而减小。

### 参考文献

[1] 岳彩旭,刘献礼,严复钢,等.不同刃口形式下锯齿形切屑形成过程的仿真及实验研究[J].机械科学与技术,2011(4):673-678.

[2] 冯吉路,姜增辉.基于ABAQUS高速切削Ti-6Al-4V切削状态的有限元仿真[J].组合机床与自动化加工技术,2013(2):47-49.

[3] 程职玲,李嫚,周锡宝,等.基于ABAQUS镍基高温合金锯齿形切屑形成过程的有限元模拟[J].现代制造工程,2016(6):99-103.

[4] YANG Q, LIU Z, SHI Z, et al. Analytical modeling of adiabatic shear band spacing for serrated chip in high-speed machining[J]. Int. J. Adv. Manuf. Technol., 2014, 71(9-12): 1901-1908.

[5] WANG B, LIU Z. Evaluation on fracture locus of serrated chip generation with stress triaxiality in high speed machining of Ti-6Al-4V[J]. Materials & Amp. Design, 2016, 98:68-78.

[6] YE G G, XUE S F, JIANG M Q, et al. Modeling periodic adiabatic shear band evolution during high speed machining Ti-6Al-4V alloy[J]. International Journal of Plasticity, 2013, 40: 39-55.

[7] 徐铭,文东辉,戴勇,等. PCBN 刀具切削中锯齿形切屑形态的动态切削力识别[J]. 金刚石与磨料磨具工程, 2005(6): 62-65.

[8] 刘文静,高毅,王敏杰,等.锯齿形切屑对切削力影响试验研究[J]. 金属加工(冷加工), 2015(10): 60-62.

(上接第65页)

从表1中可以看出,随着退火处理温度的提高,衍射峰(110)的衍射角偏移量呈现下降趋势,晶格常数与理论值偏差越来越小,晶格畸变率减小。1 200和1 400 $^{\circ}\text{C}$ 退火处理后高纯钨靶的晶格畸变率只有0.136%和0.092%,这说明经过高温退火处理后钨靶的晶格缺陷基本消失,这与TEM和硬度测试结果相吻合。

### 3 结论

采用热等静压工艺制备的高纯钨靶材,在800~1 400 $^{\circ}\text{C}$ ,随着退火处理温度的提高,位错密度减小,硬度值下降,晶格畸变率降低。内应力随着退火处理温度的提高逐渐得以消除,降低了热等静压高纯钨靶材机械加工过程的开裂倾向,提高了靶材的机加工性能,降低了生产成本。但是1 400 $^{\circ}\text{C}$ 退火处理后内应力消除的同时出现部分晶粒异常长大,对高纯钨靶的使用性能带来不利影响,故热等静压高纯钨靶最佳退火处理温度是1 200 $^{\circ}\text{C}$ 。

### 参考文献

[1] 郭让民.高纯钨溅射靶材制取工艺研究[J].中国钨业,1997,21:39-41.

[2] 赵秦生.国外高纯钨粉和钨材制备[J].稀有金属与硬质合金,2003,31(4):56-57.

[3] 刘文胜,龙路平,马运柱.高纯钨研究现状及制备工艺方法综述[J].粉末冶金技术,2012,30(3):223-224.

[4] 张文林,孙涛,李娟莹.电子束熔炼及其设备[J].冶金设备,2003,140(4):31-34.

[5] 刘春东,张东辉,马铁群,等.电子束熔炼技术及发展趋势浅析[J].河北建筑工程学院学报,2008,26(4):67-68.

[6] 李文良,罗远辉.区域熔炼制备高纯金属的综述[J].矿冶,2010,19(2):57-61.

[7] 吴洪,阎红,王丹.区域熔炼法制备高纯度金属[J].化学工程师,2001,84(3):16-17.

[8] 马福康.等静压技术[M].北京:冶金工业出版社,1991:11-14.

[9] XIE Donghua, LIU Kezhao, XIAN Xiaobin, et al. Effect of annealing temperature on the microstructure and properties of pure vanadium[J]. Rare Metal Materials and Engineering, 2008, 37(9):1567-1568.

[10] 龚梦强,周张健,张珂,等.退火温度与Ti、Al元素对14Cr-ODS合金力学性能的影响[J].粉末冶金材料科学与工程,2015,20(3):358-359.