

# 67%变形量纯钨轧板在 1250 °C 退火 过程中的再结晶行为

周智伟<sup>1</sup>, 王康<sup>1</sup>, 咎祥<sup>1,2</sup>, 罗来马<sup>1,2</sup>, 吴玉程<sup>1,2</sup>

(1. 合肥工业大学 材料科学与工程学院, 合肥 230009;  
2. 有色金属与加工技术国家地方联合工程研究中心, 合肥 230009)

**摘要:** **目的** 研究轧制压下量为 67% 的纯钨板在退火过程中的再结晶行为。**方法** 对 67% 变形量纯钨板在 1250 °C 下进行等温退火实验, 运用电子背散射衍射技术获得了变形态和退火态的显微组织与织构, 量化了其晶粒尺寸、纵横比以及主要纤维织构的体积分数, 分析了变形态组织中潜在晶核的信息。在此基础上, 对再结晶前后的显微组织和织构进行了对比分析。**结果** 温轧后纯钨板的组织中包含潜在的再结晶晶核, W67 在 1250 °C 下退火过程中以较快速度发生了不连续静态再结晶。**结论** 随着退火时间的增加, 再结晶晶粒的尺寸逐渐增大, 但其纵横比基本保持不变。在再结晶过程中,  $\theta$  纤维织构和  $\alpha$  纤维织构有所增加, 而  $\gamma$  纤维织构明显减少。

**关键词:** 纯钨; 温轧; 等温退火; 再结晶; 织构

**DOI:** 10.3969/j.issn.1674-6457.2021.02.009

**中图分类号:** TG146.4<sup>+</sup>11 **文献标识码:** A **文章编号:** 1674-6457(2021)02-0056-06

## Recrystallization Behaviour of Pure Tungsten Plate Warm Rolled to 67% Thickness Reduction during Isothermal Annealing at 1250 °C

ZHOU Zhi-wei<sup>1</sup>, WANG Kang<sup>1</sup>, ZAN Xiang<sup>1</sup>, LUO Lai-ma<sup>1,2</sup>, WU Yu-cheng<sup>1,2</sup>

(1. School of Materials Science and Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China;  
2. National-Local Joint Engineering Research Centre of Nonferrous Metals and Processing Technology, Hefei 230009, China)

**ABSTRACT:** The work aims to study the recrystallization behaviour of pure tungsten plate with 67% of rolling thickness reduction. Isothermal annealing experiment was carried out on pure tungsten plate with 67% rolling thickness reduction at 1250 °C. The electron backscatter diffraction technique was used to analyze the microstructure and texture evolution during reduction and annealing. The grain size, aspect ratio and volume fraction of main fibre texture were quantified. The potential nuclei information in the deformed texture was analyzed. On this basis, the microstructure and texture before and after recrystallization were compared. The microstructure of the pure tungsten plate contained potential recrystallized nuclei. Discontinuous static recrystallization occurred at a faster rate during annealing at 1250 °C. As the annealing time increases, the size of the recrystallized grains gradually increases, but its aspect ratio remains constant. During the recrystallization process, the  $\theta$  fibre texture and  $\alpha$  fibre texture increase while the  $\gamma$  fibre texture decreases significantly.

**KEY WORDS:** pure tungsten; warm rolling; isothermal annealing; recrystallization; texture

收稿日期: 2020-10-30

基金项目: 国家磁约束核聚变能发展研究专项 (2019YFE03120003)

作者简介: 周智伟 (1997—), 男, 硕士生, 主要研究方向为聚变堆用先进钨基材料制备及高温服役性能。

通讯作者: 咎祥 (1979—), 男, 博士, 副研究员, 主要研究方向为聚变堆用先进钨基材料的制备及服役性能、金属材料塑性加工工艺及模具设计、材料动态力学行为。

面向等离子体材料 (Plasma facing materials, PFMs) 是聚变反应堆中最关键的组件之一, 其服役条件非常复杂和严苛, 在聚变堆中主要承受高热负荷、中子辐照和离子撞击的耦合作用<sup>[1]</sup>。钨及其复合材料 (W-PFMs) 作为难熔金属, 可以满足面向等离子体部件的许多要求: 高熔点 (3695 K)、良好的热导性 (164 W/(m·K))、低热膨胀系数、高温强度和低蒸气压等特性<sup>[2]</sup>, 目前被视为最有前景的面向等离子体材料, 并将有望应用在聚变反应堆如 ITER, DEMO, CFETR 中<sup>[3-4]</sup>。尽管钨具有以上优点, 但是其目前仍然面临以下关键问题: 低温脆性 (DBTT 通常在 400 °C 以上)、再结晶脆化 (1200~1300 °C 发生再结晶)、烧结致密化和大尺寸制备困难、辐照脆化、H 同位素/He 的滞留、辐照起泡、开裂甚至熔化等<sup>[4-6]</sup>。钨部件通常是通过传统粉末冶金和塑性变形制造而来, 塑性变形后的钨即使在室温下表现出较好的延展性, 但在较高温度下服役会发生再结晶, 而再结晶的发生会引起力学性能的退化和显微组织、组织的演变, 从而会影响钨部件的高温服役寿命。国内外已经对纯钨板及钨复合材料的再结晶行为做了大量研究<sup>[7-12]</sup>, 具有不同变形组织的材料在不同退火温度下具有不同的再结晶行为<sup>[13]</sup>, 因此, 有必要研究不同钨板在不同温度下的再结晶行为, 为聚变堆用钨材料提供数据参考。文中通过等温退火实验来研究温轧压下量为 67% 的纯钨板在 1250 °C 退火过程中的再结晶行为, 通过电子背散射衍射技术表征钨板在退火过程中的显微组织和组织的演变行为。

## 1 材料与实验

所用材料为北京天龙钨钼科技有限公司的商业纯钨板 (轧制比为 67%) (以下简称为 W67)。首先采用传统粉末冶金方法制得烧结坯, 通过多次温轧获得轧制板, 轧制过程的起始温度为 1500 °C。通过电火花线切割机从钨板上沿 RD×TD×ND 方向 (RD 是指轧制方向, TD 是指横向, ND 是指法向方向) 切出 8 mm×7 mm×6 mm 的小样品, 为了保证取样的均匀性, 所有样品都取自钨板中间且同一厚度层。根据设定好的时间, 在 1250 °C 下分别对小样品进行不同时间的等温退火实验。所有的样品在热处理之前均密封在真空石英管内, 以防止退火过程中被氧化。

运用电子背散射衍射 (EBSD) 来分析退火过程中 RD/ND 面上的显微组织演变, 通过金相学方法来对测试面进行机械研磨和震动抛光。EBSD 数据的采集运用配有牛津仪器 NordlysMax3 EBSD 采集探头的 Hitachi S-3400N 扫描电镜, 采用 70° 预倾斜样品架, 电压为 20 kV, 扫描步长为 1 μm。运用 MTEX 软件包来处理 EBSD 数据。运用 Grain orientation spread

(GOS) 的值来定义再结晶区域, 再结晶晶粒的定义遵循以下原则: 晶粒具有较小的 GOS 值 ( $GOS < 1^\circ$ ), 晶粒至少包含 8 个像素点 (面积  $\geq 8 \mu\text{m}^2$ ), 再结晶晶粒至少包含部分的高角度边界 (HAB)。同时, 再结晶晶粒或者晶核至少包含 20% 的高角度边界 (HAB)。取向差大于 15° 的边界定义为高角度边界, 取向差介于 2° 和 15° 的边界定义为小角度边界 (LAB)。再结晶的体积分数定义为再结晶晶粒与所有晶粒的面积之比。晶体织构使用取向分布函数 (ODF) 表示, 该函数是通过 MTEX 软件包且使用核密度估计法 (核密度函数的半宽为 5°) 对所有测量取向进行计算得来的。

## 2 结果与分析

### 2.1 显微组织分析

W67 钨板轧制态 (图 1a—c) 和退火态 (图 1d—l) 的显微组织如图 1 所示。图 1a, d, g, j 为所有晶粒的取向, 图 1b, e, h, k 为再结晶组织的取向, 图 1c, f, i, l 为变形组织的取向。图 1 中所有黑线为取向差大于 15° 的高角度边界。从图 1a 可以看出, 轧制态的显微组织主要为沿轧制方向拉长的细长晶粒, 部分晶粒中有变形带, 其与轧制方向成一定角度。再结晶晶核通常是起源于变形组织中的具有较小畸变的亚晶粒。图 1b 显示了温轧钨板中一些潜在的再结晶晶核, 可以看出这些潜在的晶核主要出现在具有较大曲率半径的高角度边界的凸出部分或者三叉晶界处<sup>[14]</sup>。图 1c 显示了温轧钨板中主要的组织为变形晶粒。图 1d—f 为 W67 在 1250 °C 下退火 3 h 的显微组织。图 1e 中该显微组织包含了大量的再结晶晶粒, 且一些再结晶晶粒沿轧制方向拉长, 再结晶面积分数达到了 77.72%。图 1f 显示出少量的变形组织, 有些变形组织正在被再结晶晶粒所吞并<sup>[15]</sup>。图 1g—i 为 W67 在 1250 °C 下退火 10 h 的显微组织, 从图 1h 可以看出, 该样品的显微组织基本为再结晶晶粒, 其再结晶晶粒的占比为 96.99%。从图 1i 可以清楚看到还有少量残余的变形组织, 其将在接下来的退火过程中被再结晶晶粒所吞并。图 1j—l 为 W67 在 1250 °C 下退火 60 h 的显微组织, 从图 1k 和图 1l 可以看出其样品已经发生了完全再结晶, 其再结晶面积分数为 100%。

图 2 为轧制态和退火态样品再结晶晶粒的等效圆直径 (ECD) 与纵横比 (AR) 的散点图, 图 2a—d 中的数据分别从图 1b, e, h, k 中获得, 可以得到每个再结晶晶核/晶粒的等效圆直径和长宽比。图 2a 显示出大量的等效圆直径小于 10 μm 的潜在晶核, 大部分晶核的纵横比小于 3, 个别晶核的纵横比接近 5。图 2b 中既包含尺寸较大的再结晶晶粒, 又包含较小

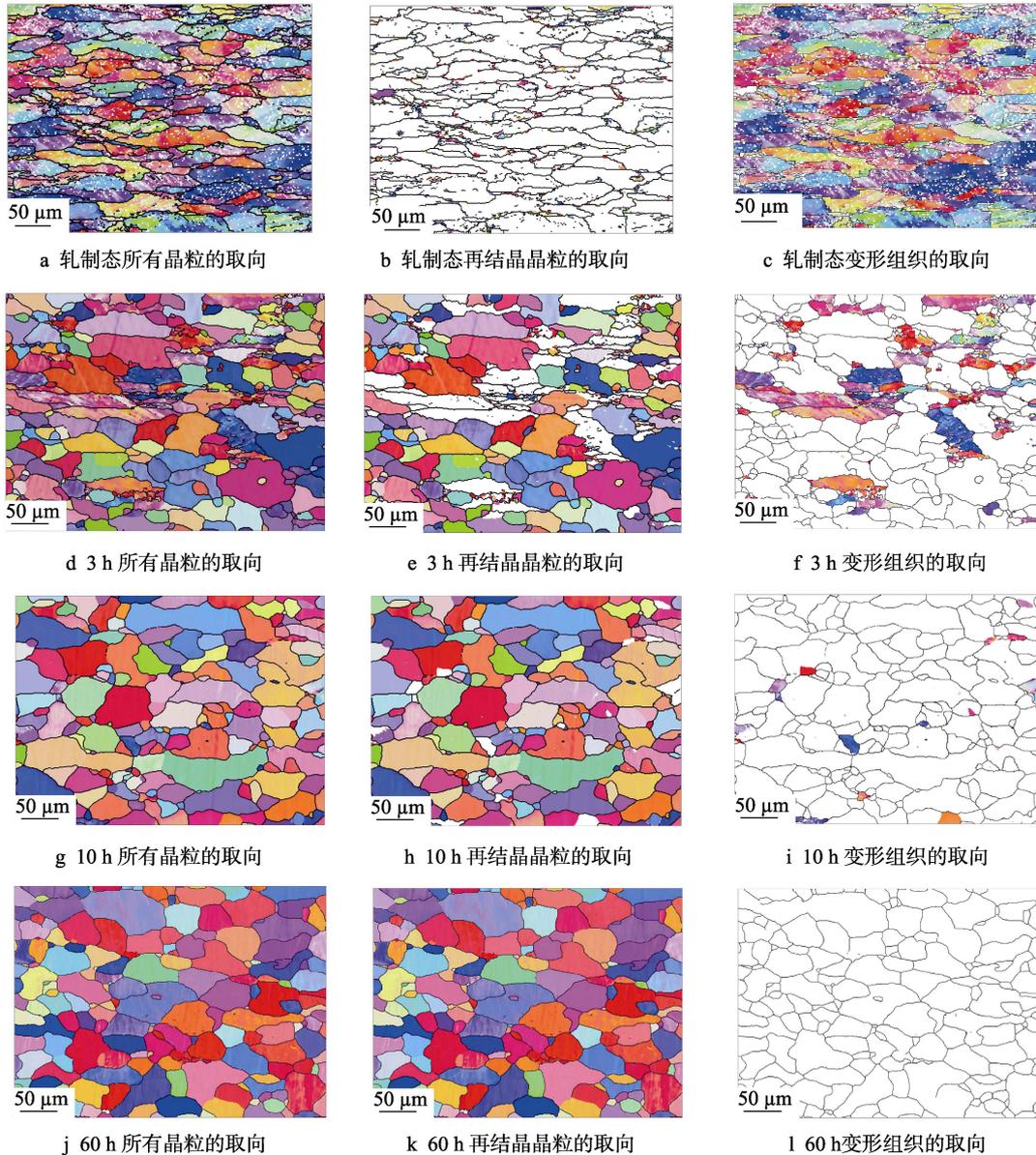


图1 W67在轧制态(图1a—c)和在1250℃退火态(图1d—l)的显微组织

Fig.1 Microstructure of W67 in the as-received (1a-c) and annealed (at 1,250 °C) (1d-l) W67

尺寸的潜在晶核,有些再结晶晶粒具有较大的纵横比,其最大值达到了6.2,再结晶晶粒是从原有的变形晶粒中形核长大,其继承了原有晶粒的特征并沿原始晶粒几何特征排布。随着再结晶面积分数的增加,从图2c可以看出较小尺寸的晶粒明显减少。图2d中晶粒的尺寸和纵横比与图2c接近。

表1为从图2中获得的不同样品再结晶晶核/晶粒的平均等效圆直径和平均纵横比。随着再结晶面积分数的增加,再结晶晶核/晶粒的数目明显减少,平均等效圆直径逐渐增大,但是其平均纵横比基本保持在1.6~1.8。随着退火时间的增加,平均等效圆直径的变异系数逐渐增大,表明晶粒分布越集中;平均纵横比的变异系数先增加后减小,这可能由于再结晶晶粒在长大过程中受到织构的影响会改变其生长的方向。

## 2.2 织构分析

三维取向分布函数(ODF)能够完整、确切和定量地表征织构,文中运用ODF图来定量分析W67在1250℃退火过程中的织构演变,图3为W67在不同状态下的取向分布函数的 $\varphi_2=45^\circ$ 的截面。根据图3获得各个状态下不同纤维织构的体积分数和织构指数(Texture index)如表2所示<sup>[16]</sup>。图3a为在ODF图 $\varphi_2=45^\circ$ 的截面上表示的典型bcc金属的织构类型。图3b为轧制态W67的 $\varphi_2=45^\circ$ 的ODF截面,其轧制织构的分布总体比较随机,织构指数为1.38。最大的取向密度出现在 $\gamma$ 纤维织构( $\langle 111 \rangle // ND$ )以及 $\theta$ 纤维织构( $\langle 001 \rangle // ND$ )上,其 $\theta$ 纤维织构、 $\alpha$ 纤维织构以及 $\gamma$ 纤维织构的体积分数分别为13.1%,26.7%,

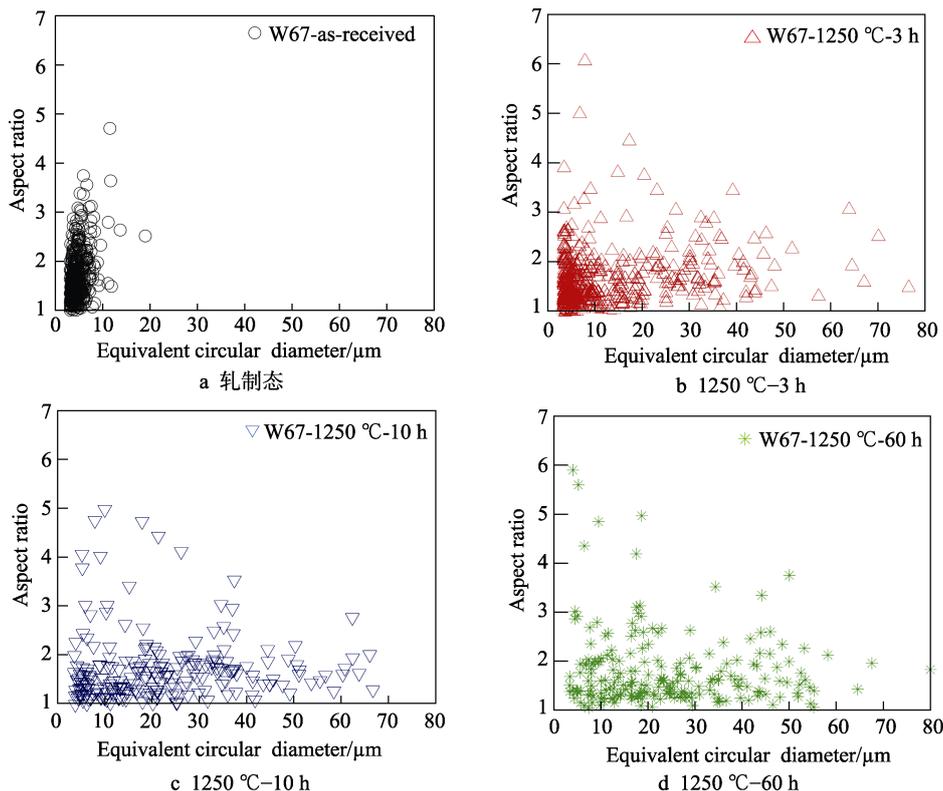


图 2 W67 的轧制态和退火态样品的再结晶晶粒的等效圆直径与纵横比的散点图  
Fig.2 Scatter diagrams of equivalent circle diameter and aspect ratio of recrystallized grains of as-received and annealed samples of W67

表 1 W67 在不同状态下再结晶晶粒的平均等效圆直径和平均纵横比的统计  
Tab.1 Statistics for grain size (ECD) and average aspect ratio (AR) of recrystallized grains identified in different states of W67

| 样品状态         | 再结晶体积分数/% | 晶粒数目 | 平均等效圆直径 $\mu_{ECD}/\mu m$ | 标准差 $\sigma_{ECD}$ | 变异系数 $\sigma_{ECD}/\mu_{ECD}$ | 平均纵横比 $\mu_{AR}$ | 标准差 $\sigma_{AR}$ | 变异系数 $\sigma_{AR}/\mu_{AR}$ |
|--------------|-----------|------|---------------------------|--------------------|-------------------------------|------------------|-------------------|-----------------------------|
| 轧制态          | 9.72      | 885  | 4.2                       | 1.3                | 1.28                          | 1.7              | 0.4               | 4.25                        |
| 1250 °C-3 h  | 77.72     | 421  | 12.5                      | 12.8               | 1.00                          | 1.7              | 0.6               | 2.83                        |
| 1250 °C-10 h | 96.99     | 219  | 22.4                      | 16.3               | 1.37                          | 1.8              | 0.7               | 2.57                        |
| 1250 °C-60 h | 100       | 153  | 24.3                      | 16.6               | 1.46                          | 1.6              | 0.5               | 3.2                         |

表 2 W67 在轧制态和在 1250 °C 退火态的组织体积分、组织指数及最大取向强度  
Tab.2 Quantitative texture parameters for as-received and annealed (at 1250 °C) W67

| 样品状态         | 组织体积分/%       |               |               | 组织指数<br>(Texture index) | 最大取向强度 |
|--------------|---------------|---------------|---------------|-------------------------|--------|
|              | $\theta$ 纤维组织 | $\alpha$ 纤维组织 | $\gamma$ 纤维组织 |                         |        |
| 轧制态          | 13.1          | 26.7          | 23.6          | 1.38                    | 3.22   |
| 1250 °C-3 h  | 20.4          | 33.4          | 18.0          | 1.86                    | 5.83   |
| 1250 °C-10 h | 21.5          | 18.5          | 15.7          | 1.91                    | 9.96   |
| 1250 °C-60 h | 29.6          | 32.5          | 22.1          | 2.23                    | 6.22   |
| 随机组织         | 10.0          | 19.7          | 13.2          | 1.00                    |        |

23.6%。W67 在 1250 °C 下退火 3 h 样品中组织的最大取向密度出现在  $\alpha$  纤维组织和  $\theta$  纤维组织(见图 3c)，组织指数与轧制态相比较有所增加(见表 2)，说明组织越强。W67 在 1250 °C 退火 10 h 后的组织如图 3d 所示，组织主要为 (111) <112> 组织组分和立方

组织 (001) <100>，其组织指数进一步增加到 1.91，组织分布越集中。完全再结晶后晶粒继续长大，一些择优生长的晶粒将吞并其他取向的晶粒，因此 W67 在 1250 °C 退火 60 h 后的组织具有较大的组织指数 (2.23)，组织强度越大，其再结晶组织的最大取向

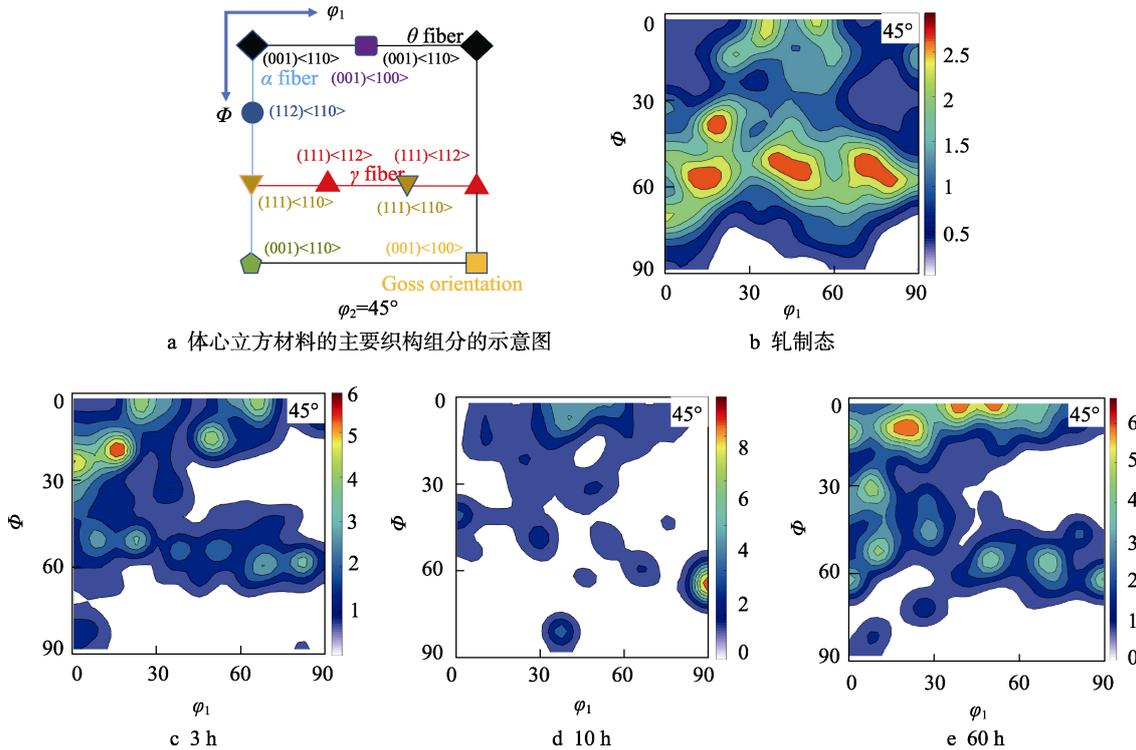


图3 W67在不同状态下的取向分布函数的 $\varphi_2=45^\circ$ 的截面

Fig.3 ODF section ( $\varphi_2=45^\circ$ ) of W67 in different states

密度主要出现在 $\theta$ 纤维组织。W67在轧制态和在 $1250^\circ\text{C}$ 退火态的组织体积分数、组织指数及最大取向强度见表2,为了便于比较,计算了随机取向的相应数值,从表2可知,随着退火时间的增加, $\theta$ 纤维组织的体积分数逐渐增加, $\gamma$ 纤维组织的体积分数先降低后增大, $\alpha$ 纤维组织的体积分数总体有所增加,说明再结晶过程中 $\theta$ 纤维组织和 $\alpha$ 纤维组织的晶粒择优生长。组织指数也随着退火时间的增加而增大,说明再结晶后组织强度逐渐增加。

### 3 结语

67%轧制压下量的纯钨板在温轧后变形组织中出现了潜在的再结晶晶核,在后期 $1250^\circ\text{C}$ 的等温退火过程中,这些潜在的再结晶晶核可以快速成核而发生不连续再结晶。再结晶晶粒随着退火时间的增加而逐渐增大,但其纵横比基本保持不变。再结晶过程中 $\theta$ 纤维组织和 $\alpha$ 纤维组织逐渐增加,而 $\gamma$ 纤维组织明显减少。在选择和制备未来聚变堆用钨材料时应该避免由于加工温度较大而导致材料内部出现较多的潜在再结晶晶核。

#### 参考文献:

- [1] LINKE J, DU J, LOEWENHOFF T, et al. Challenges for Plasma-Facing Components in Nuclear Fusion[J]. Matter and Radiation at Extremes, 2019, 4(5): 1—18.
- [2] LASSNER E, SCHUBERT W D. Tungsten: Properties, Chemistry, Technology of the Element, Alloys, and Chemical Compounds[M]. New York: Springer US, 1999: 124—125.
- [3] KAUFMANN M, NEU R. Tungsten as First Wall Material in Fusion Devices[J]. Fusion Engineering and Design, 2007, 82: 521—527.
- [4] NAUJOKS D, ASMUSSEN K, BESSENRODT-WEBERPALS M, et al. Tungsten as Target Material in Fusion Devices[J]. Nuclear Fusion, 1996, 36(6): 671—687.
- [5] PINTSUK G, PROKHODTSEVA A, UYTENDENHOUWEN I. Thermal Shock Characterization of Tungsten Deformed in Two Orthogonal Directions[J]. Journal of Nuclear Materials, 2011, 417(1/2/3): 481—486.
- [6] WURSTER S, BALUC N, BATTABYAL M, et al. Recent Progress in R&D on Tungsten Alloys for Divertor Structural and Plasma Facing Materials[J]. Journal of Nuclear Materials, 2013, 442(1/2/3): S181—S189.
- [7] ALFONSO A, JENSEN D J, LUO G N, et al. Thermal Stability of a Highly-Deformed Warm-Rolled Tungsten Plate in the Temperature Range  $1100\text{--}1250^\circ\text{C}$ [J]. Fusion Engineering and Design, 2015, 98/99: 1924—1928.
- [8] ZHANG Xiao-xin, YAN Qing-zhi, LANG Shao-ting, et al. Texture Evolution and Basic Thermal-Mechanical Properties of Pure Tungsten under Various Rolling Reductions[J]. Journal of Nuclear Materials, 2016, 468: 339—347.
- [9] ZHANG Xiao-xin, YAN Qing-zhi, LANG Shao-ting, et

- al. Evolution of Hot Rolling Texture in Pure Tungsten and Lanthanum Oxide Doped Tungsten with Various Reductions[J]. *Materials and Design*, 2016, 109(5): 443—455.
- [10] CIUCANII U M, THUM A, CHLOE D, et al. Isothermal Annealing of Thin Rolled Tungsten Plates in the Temperature Range from 1300 °C to 1400 °C[J]. *Nuclear Materials and Energy*, 2018, 15: 128—134.
- [11] TSUCHIDA K, MIYAZAWA T, HASEGAWA A, et al. Recrystallization Behavior of Hot-Rolled Pure Tungsten and Its Alloy Plates during High-Temperature Annealing[J]. *Nuclear Materials and Energy*, 2018, 15: 158—163.
- [12] BONK S, REISER J, HOFFMANN J, et al. Cold Rolled Tungsten (W) Plates and Foils: Evolution of the Microstructure[J]. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 2016, 60: 92—98.
- [13] HUMPHREYS F J, HATHERLY M. *Recrystallization and Related Annealing Phenomena (Second Edition)*[M]. Oxford: Elsevier, 2004: 333—378.
- [14] RIOS P R, SICILIANO J F, SANDIM H R Z, et al. Nucleation and Growth during Recrystallization[J]. *Materials Research*, 2005, 8(3): 225—238.
- [15] RAABE D. *Physical Metallurgy (Fifth Edition)*[M]. Oxford: Elsevier, 2014: 2291—2397.
- [16] BUNGE H J. *Texture Analysis in Materials Science: Mathematical Methods*[M]. England: Butterworth-Heinemann, 1982: 405—419.