

[文章编号] 1004-0609(2002)S1-0178-05

冷轧低压电子铝箔退火加热过程中的 再结晶和晶粒长大^①

舒龙卫, 毛卫民, 冯惠平, 余永宁, 徐 进
(北京科技大学 材料学系, 北京 100083)

[摘 要] 采用 EBSD 微取向分析、织构定量分析、晶粒尺寸分析等手段研究了低压电子铝箔不同退火加热过程对再结晶和晶粒长大行为的影响, 并利用再结晶理论对相关过程进行了讨论。初次再结晶前的回复处理会明显降低冷轧铝箔的储存能及再结晶驱动力, 并对再结晶晶粒尺寸和立方织构量产生规律性影响。特定的退火加热过程会诱发电子铝箔的晶粒异常长大, 并导致立方织构量的明显下降。

[关键词] 电子铝箔; 退火; 再结晶; 晶粒长大; 立方织构

[中图分类号] TG 111

[文献标识码] A

低压电子铝箔是制作低压电解电容器阳极极板的材料, 采用腐蚀化成技术可使铝箔表面形成起伏^[1,2], 以扩大极板表面积而大幅度提高比电容。目前低压电子铝箔多采用交流腐蚀的方式扩面, 其效果的好坏与铝箔中的晶粒尺寸及取向有直接的关系。除了控制冷轧过程外^[3~5], 借助调整退火工艺可以控制再结晶和晶粒长大行为, 影响再结晶晶粒的尺寸和取向, 进而影响铝箔的扩面效果。因此有必要系统分析退火工艺对低压电子铝箔再结晶和晶粒长大过程的影响规律。

1 实验方法

选用工业用 95 μm 厚冷轧低压电子铝箔, 其化学成分波动范围为 Fe 0.001% ~ 0.003%, Si 0.001% ~ 0.003%, Cu 0.003% ~ 0.006%, Al > 99.98%。将铝箔样品分成两组, 在盐浴炉中作不同退火处理。其中一组作一次加热, 温度分别为 300, 350, 400, 450 $^{\circ}\text{C}$, 加热时间为 30 min。另一组作两次加热, 先进行 200 $^{\circ}\text{C}$, 1 h 预处理, 水冷后再作 300, 350, 400, 450 $^{\circ}\text{C}$ 加热, 加热时间仍为 30 min。用西门子 D5000 型 X 射线衍射仪测定铝箔的 {111}, {200}, {220} 和 {113} 极图^[6], 用正态分布函数拟合算法计算退火箔立方织构占有率^[7]。用背散射电子衍射 (EBSD) 技术测定微区晶粒取向,

并统计计算晶粒的平均尺寸。实验结果中所用 {111} 极图的极密度水平统一为 1, 2, 4, 8, 16, 32 和 64。

2 实验结果

图 1 给出了冷轧铝箔经 200 $^{\circ}\text{C}$, 1 h 加热后的 {111} 极图。图 2, 3 是两组铝箔试样在不同温度作 30 min 退火后的 {111} 极图。图 1 中的极密度分布呈现较典型的轧制织构, 根据图 1 所示的极图和组织观察可以断定, 200 $^{\circ}\text{C}$, 1 h 加热并未使纯度较高的冷轧铝箔发生明显再结晶, 但根据基本的再结晶理

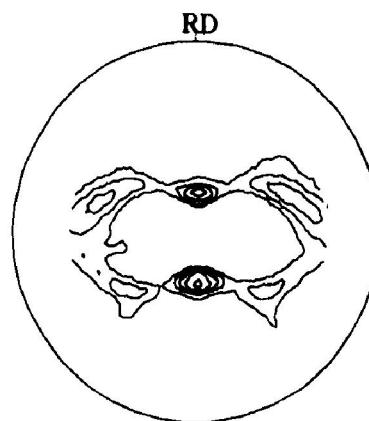


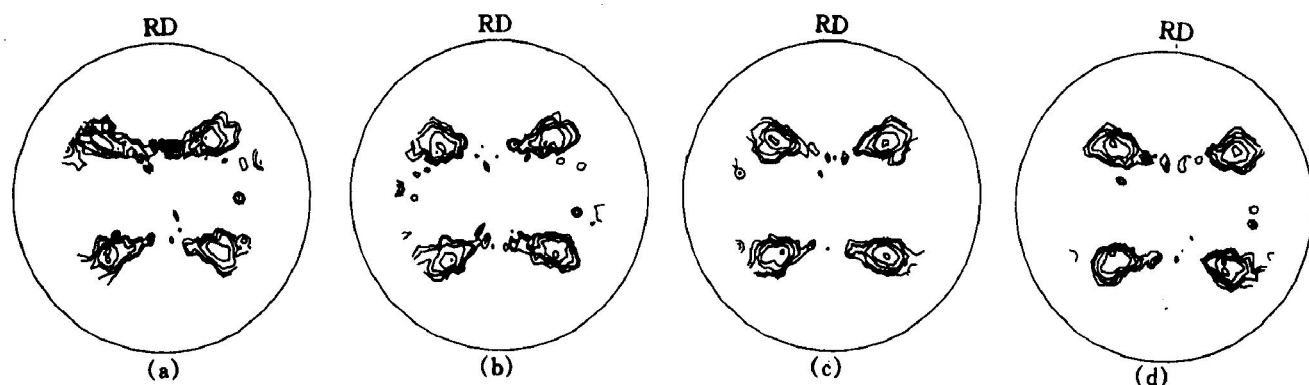
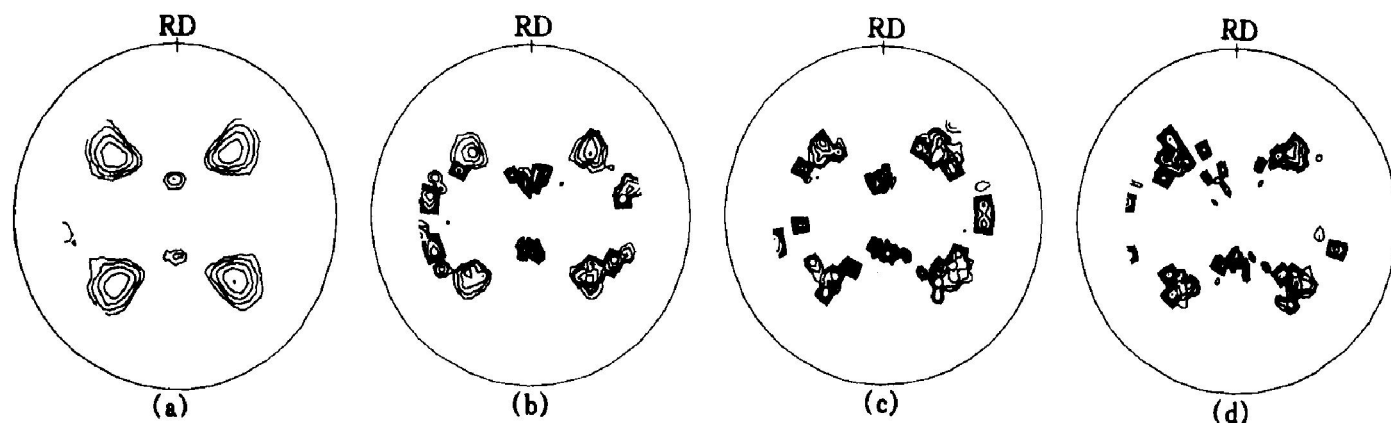
图 1 200 $^{\circ}\text{C}$, 1 h 退火后的组织 ({111} 极图)

Fig. 1 Texture after annealing at 200 $^{\circ}\text{C}$ for 1 h ({111} pole figures)

① [基金项目] 北京市自然科学基金资助项目(2002014)和北京市科学技术委员会资助项目(9550310400)

[收稿日期] 2001-07-26; [修订日期] 2001-11-04

[作者简介] 舒龙卫(1979-), 男, 硕士研究生

图 2 不同退火温度退火处理后的组织($\{111\}$ 极图)**Fig. 2** Textures at different annealing temperature ($\{111\}$ pole figures)(a) $-300\text{ }^{\circ}\text{C}$ for 30 min; (b) $-350\text{ }^{\circ}\text{C}$ for 30 min; (c) $-400\text{ }^{\circ}\text{C}$ for 30 min; (d) $-450\text{ }^{\circ}\text{C}$ for 30 min图 3 预处理后不同退火温度退火处理的组织($\{111\}$ 极图)**Fig. 3** Textures at different annealing temperature after pre-treatment ($\{111\}$ pole figures)(a) $-300\text{ }^{\circ}\text{C}$ for 30 min after $200\text{ }^{\circ}\text{C}$ for 1 h; (b) $-350\text{ }^{\circ}\text{C}$ for 30 min after $200\text{ }^{\circ}\text{C}$ for 1 h;
(c) $-400\text{ }^{\circ}\text{C}$ for 30 min after $200\text{ }^{\circ}\text{C}$ for 1 h; (d) $-450\text{ }^{\circ}\text{C}$ for 30 min after $200\text{ }^{\circ}\text{C}$ for 1 h

论可知冷轧试样会经历一个较强的回复过程。在 $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ 以上加热则可使铝箔发生再结晶, 并产生一定的立方织构组分(参见图 2, 3)。

图 4 列出了各退火试样的立方织构占有率和平均晶粒尺寸。未经回复处理的冷轧铝箔其立方织构占有率随退火温度的升高而增加, 但晶粒尺寸变化不大, 基本保持在 $100\text{ }\mu\text{m}$ 左右。图 2 所示的极图表明此时铝箔织构的主要组分为立方织构。基本一致的晶粒尺寸和显著的立方织构特征表明, 未经回复处理的冷轧铝箔在上述不同温度的加热退火过程中发生了基本相近的再结晶过程, 但是退火温度的升高有利于促进立方取向晶粒的生成, 从而导致立方织构量的上升。

冷轧铝箔经 $200\text{ }^{\circ}\text{C}$, 1 h 预处理后, 其 $300\text{ }^{\circ}\text{C}$, 30 min 退火的晶粒尺寸非常小, 而立方织构量则超过 60%。这种组织及其多晶取向结构明显不同于经同样退火过程但未经预处理的试样。图 5 给出了这

两个试样用 EBSD 技术检测到的退火组织, 可以观察到两试样晶粒尺寸分布的巨大差别。

若将经回复预处理的试样在更高的 $350\text{ }^{\circ}\text{C}$ 加热, 则平均晶粒尺寸急剧增大, 且立方织构量却大幅度降低。试样中所呈现的织构特点也有明显变化。随后继续退火温度的提高, 晶粒尺寸和立方织构量又有适度而稳步的增长。

图 6(a) 给出了 EBSD 法检测到的冷轧铝箔经 $350\text{ }^{\circ}\text{C}$, 30 min 退火后的晶粒组织, 图 6(b) 所示是相应晶粒的取向分布示意图。可以看出, 晶粒尺寸分布比较均匀, 且立方取向与非立方取向晶粒的尺寸没有明显的差别。图 6(c) 所示的铝箔是经 $200\text{ }^{\circ}\text{C}$, 1 h + $350\text{ }^{\circ}\text{C}$, 30 min 退火后的晶粒组织, 其尺寸分布表现出明显的不均匀性。根据图 6(d) 的相应取向分布示意图可以看出, 一些非立方取向晶粒具有很大的尺寸, 而立方取向晶粒的尺寸相对较小, 因而表现出了晶粒异常长大的一些现象。

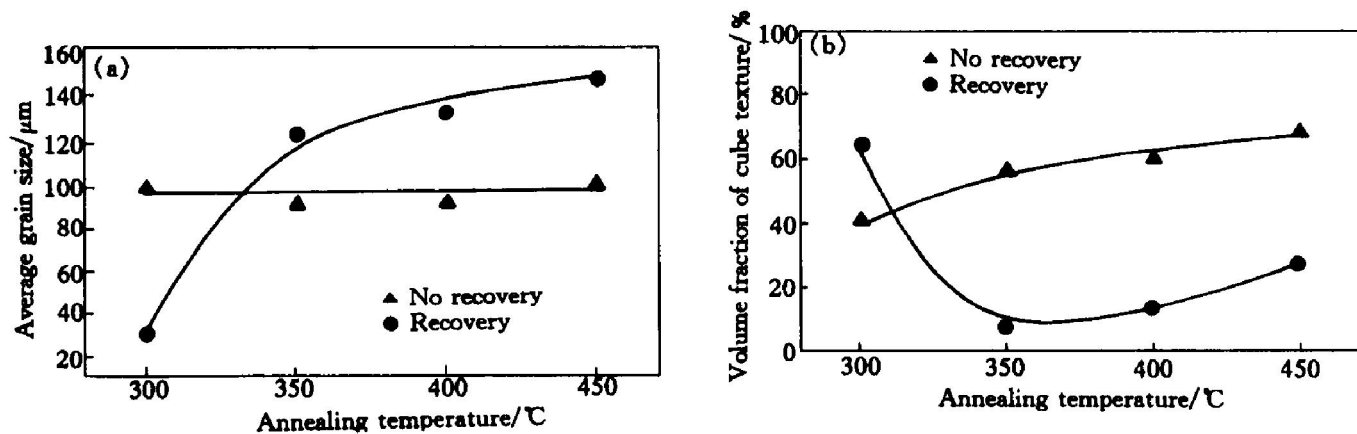


图 4 各退火试样的立方织构占有率和平均晶粒尺寸

Fig. 4 Average grain size and corresponding volume fraction of cube texture

(a) —Average grain size; (b) —Volume fraction of cube texture

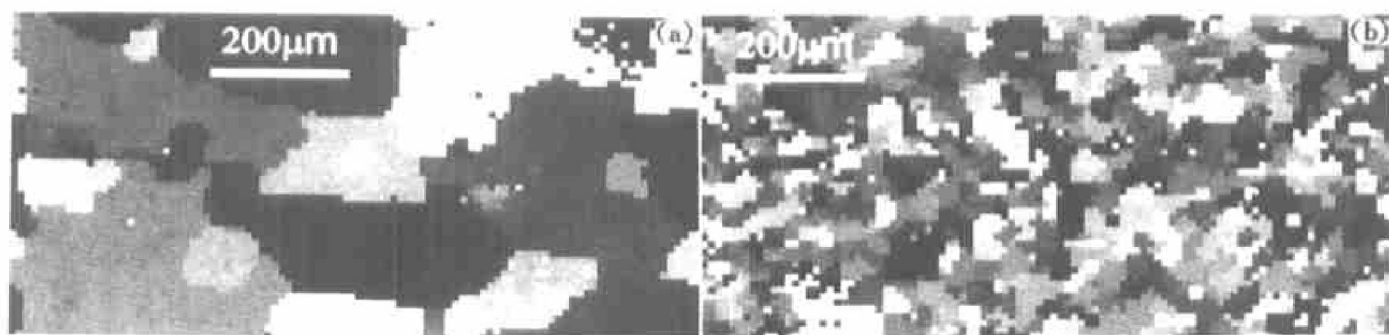


图 5 退火组织

Fig. 5 Annealing structures

(a) —300 °C for 30 min; (b) —300 °C for 30 min after 200 °C for 1 h

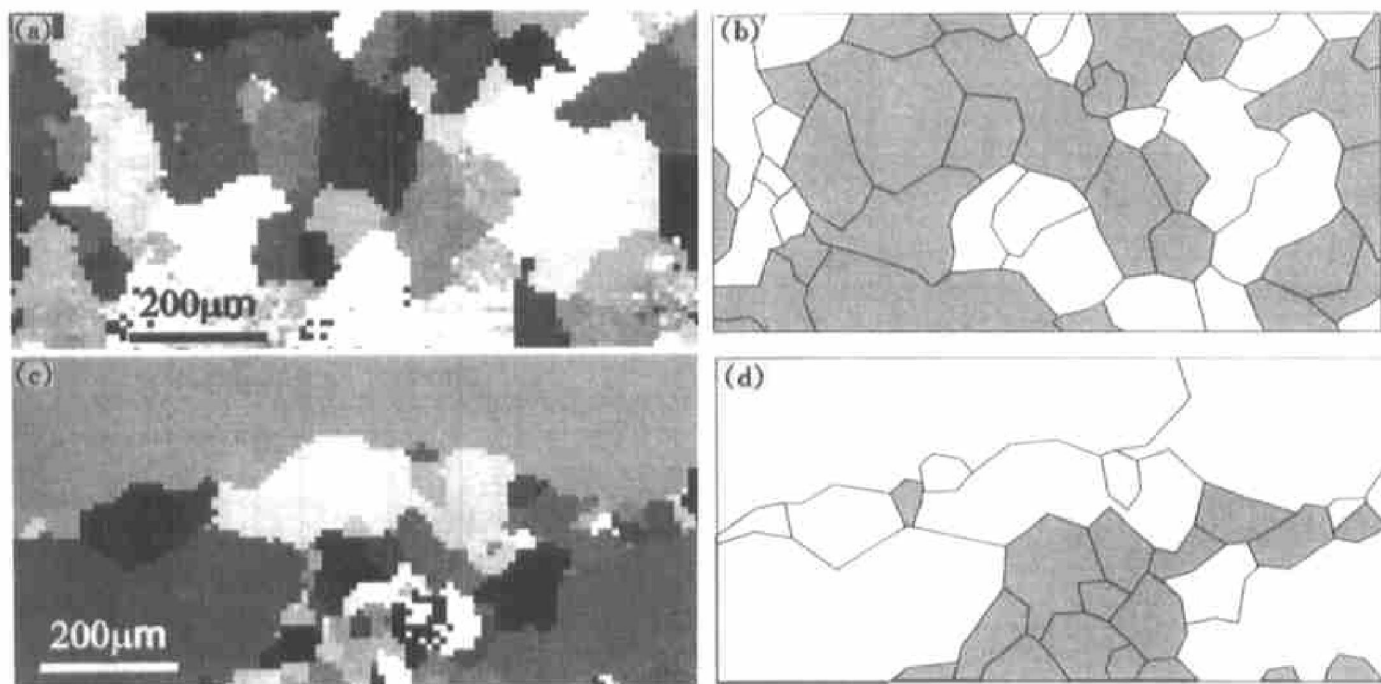


图 6 退火箔 EBSD 分析

Fig. 6 EBSD analysis of annealed foils

(a) —350 °C, 30 min; (b) —Orientation character in (a) (gray color means cube orientation);

(c) —350 °C for 30 min after 200 °C for 1 h; (d) —Orientation character in (c) (gray color means cube orientation)

3 讨论

由于高层错能特性, 冷变形纯铝在 200 °C 加热过程中会产生很强的回复过程^[8], 使冷变形所造成的位错密度大幅度下降, 位错密度的改变会极大影响再结晶的驱动力, 从而影响到冷轧铝箔的再结晶行为。再结晶是一个形核和晶核的生长过程^[9], 其驱动力来源于加工变形时的储存能。经 200 °C 加热后, 由于强回复作用, 释放了大量储存能, 使铝箔内晶粒生长的驱动力降低, 晶粒相应的生长速度大幅度下降, 导致同样在 300 °C 加热 30 min 后的再结晶晶粒尺寸明显小于未经回复处理的试样。另外, 再结晶核的形成也需要一定的孕育过程。在不发生再结晶的前提下, 200 °C 加热提供了较为充分的形核孕育条件, 有利于提高再结晶形核率, 同时晶粒较低的生长速度也有可能造成形核数目的增加, 因而也会促使试样在 300 °C 加热时生成细晶粒组织。

研究表明^[10~12], 在冷轧纯铝板的再结晶过程中立方取向晶粒在形核和长大过程中均有明显的优势, 因此促进再结晶形核或促使晶粒的正常生长的因素都会导致立方织构体积分量的上升。提高加热温度是促进再结晶形核和晶粒长大的重要手段, 所以在未经回复试样的 300~450 °C 以及回复试样的 350~450 °C 加热过程中, 随着加热温度的提高均可以观察到立方织构量增长的现象。由图 4(a) 可以看到, 随着退火温度的提高未回复试样的再结晶晶粒尺寸并没有明显起伏, 即变形基体完成再结晶时具有基本相同的晶粒尺寸, 但立方织构量却随温度不断增加, 因而说明在特定条件下单纯提高加热温度对增加立方织构量的重要作用。

在 300 °C 再结晶退火后, 不仅未回复试样的晶粒尺寸大大高于未回复试样, 而且其立方织构量也明显低于回复试样。从上述讨论可以知道, 未回复试样是在高驱动力的驱动下完成再结晶过程, 而回复试样则由于预处理降低了驱动力。高驱动力不只是有利于立方取向的晶粒的生长, 更会促使非立方取向晶粒也明显提高长大速度, 这反而部分地淹没了立方取向晶粒的生长优势^[8], 并导致较低的立方织构量。

由图 5(b) 可以看出, 经回复处理的试样完成初次再结晶后可以获得很细的晶粒组织。与图 5(a) 相比, 这种组织中蕴含了更高的晶界能, 即蕴含了更高的晶粒长大的驱动力, 因而更能促使晶粒的长

大, 甚至异常长大。回复试样在 350 °C 退火后其立方织构大幅度降低, 而平均晶粒尺寸突然升高, 甚至超过铝箔的厚度 (95 μm)。根据晶粒异常长大的原理可以断定, 这里发生了织构诱发的晶粒异常长大过程^[8]。回复试样在 350 °C 退火的初始阶段也应产生过图 5(b) 所示的组织。由于其更高的加热温度和更高的晶界能, 随即在加热后期发生晶粒异常长大过程。晶粒开始长大时多数晶粒具有立方取向, 立方取向晶粒间因取向差小而通常是小角度晶界, 很难移动; 而非立方取向晶粒有多个取向分量, 其间形成小角度晶界的几率很低, 非立方取向与立方取向晶粒之间也会是大角度晶界, 使得非立方取向的晶粒有更多长大的机会, 这就给尺寸较大的非立方取向晶粒长入立方取向晶粒区提供了有利条件, 进而导致平均晶粒尺寸上升的同时立方织构量大幅度下降, 即立方织构诱发的晶粒异常长大。

4 结论

研究了退火工艺对冷轧低压电子铝箔再结晶和晶粒长大过程的影响。200 °C 回复处理可提高低压电子铝箔再结晶的形核率并降低晶粒的长大速度, 因而导致随后的初次再结晶晶粒比未经回复处理试样明显细化。在晶粒正常长大的条件下, 由于提高再结晶温度可以促进立方取向晶粒发挥形核优势和生长优势, 因而有利于提高电子铝箔的立方织构量。高的再结晶驱动力会一定程度上淹没立方取向晶粒生长优势, 进而降低再结晶后的立方织构量。高立方织构和细晶组织容易引起织构诱发的晶粒异常长大, 并导致立方织构量的明显降低。

通过调整退火加热过程可以控制冷轧铝箔的再结晶晶粒尺寸和立方织构量以满足低压电子铝箔对织构和晶粒组织的各种不同需求。

[REFERENCES]

- [1] Kosuge H. High purity aluminum [J]. Light Metal, 1998, 38(4): 238–248.
- [2] Ibe G. Capacitance and texture formation in aluminum capacitor foils [A]. Bunge H J. Directional Properties of Materials [C]. DGM-Informationsgesellschaft, Oberursel, 1988. 145–156.
- [3] MAO Weimin. Texture in inhomogeneously rolled aluminium sheet [J]. Trans Nonferrous Met Soc China, 1992, 2(1): 98–103.

- [4] MAO Wei-min. Anisotropy of work hardening in 5456 aluminum alloy [J]. Trans Nonferrous Met Soc China, 1998, 8(1): 39– 43.
- [5] MAO Wei-min. Modelling of rolling texture in aluminum [J]. Mat Sci & Eng, 1998, A257: 171– 177.
- [6] 毛卫民, 张新明. 晶体材料织构定量分析[M]. 北京: 冶金工业出版社, 1995. 5– 8.
MAO Wei-min, ZHANG Xing-ming. Quantitative texture analysis of crystalline materials [M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 1995. 5– 8.
- [7] CHEN N, MAO W M, YU Y, et al. A method of quantitative fiber texture analysis [A]. LIANG Z. Proc 11th Inter Conf on Texture of Materials [C]. Xi'an: Inter Acad Publisher, 1996. 81– 83.
- [8] 毛卫民, 赵新兵. 金属的再结晶与晶粒长大[M]. 北京: 冶金工业出版社, 1994. 180– 184, 279– 291.
MAO Wei-min, ZHAO Xing-bing. Recrystallization and Grain Growth of Metals [M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 1994. 180– 184, 279– 291.
- [9] 余永宁. 金属学原理[M]. 北京: 冶金工业出版社, 2000. 441– 469.
YU Yong-ning. Physical Metallurgy [M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2000. 441– 469.
- [10] MAO W M. Formation of recrystallization cube texture in high purity FCC metal sheets [J]. J Materials Engineering & Performance, 1999(8): 556– 560.
- [11] Mao W, Hirsch J, Lücke K. Influence of the cube starting texture on rolling and recrystallization texture development [A]. Kallend J S, Gottstein G. Proc 8th Inter Conf Textures of Materials [C]. USA: The Metallurgical Society, 1988. 613– 618.
- [12] 毛卫民. 晶界快速迁移的原子模型[J]. 中国科学, 1991, 21A(3): 311– 316.
MAO Wei-min. Atom model of grain boundary fast migration [J]. Science of China, 1991, 21A(3): 311– 316.

Recrystallization and grain growth during annealing of cold rolled low voltage electronic aluminum foil

SHU Long-wei, MAO Wei-min, FENG Hu-ping, YU Yong-ning, XU Jin

(Department of Materials, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

[Abstract] The influence of different annealing processes on the recrystallization and grain growth behaviors of low voltage electron aluminum foil was investigated using the quantitative texture analysis, EBSD micro-orientation analysis, as well as grain size measurement. The corresponding processes were also discussed based on the current recrystallization theory. A recovery process before primary recrystallization will reduce the storage energy as well as the recrystallization driving force drastically, and therefore influence the recrystallization grain size and volume fraction of cube texture systematically. An abnormal grain growth process, connected with strong cube texture in electron aluminum foil, could be induced by certain special annealing treatment, which will decrease the volume fraction of cube texture obviously.

[Key words] electron aluminum foil; annealing; recrystallization; grain growth; cube texture

(编辑 吴家泉)