

- 2005, A413-414; 571-577.
- [23] YANG X L, LEE P D, SOUZA N D. Stray grain formation in the seed region of single-crystal turbine blades[J]. JOM, 2005, 57: 40-44.
- [24] MA D X, POLACZCK A B. Application of a heat conductor technique in the production of single-crystal turbine blades[J]. Metall. Mater. Trans., 2009, B40: 738-748.
- [25] MA D X, WU Q, POLACZCK A B. Some new observations on freckle formation in directionally solidified superalloy components [J]. Metall. Mater. Trans., 2012, B43: 344-353.
- [26] MA D X, POLACZCK A B. The geometrical effect on freckle formation in the directionally solidified superalloy CMSX-4[J]. Metall. Mater. Trans., 2014, A45: 1 435-1 444.
- [27] WANG F, WU Z N, HUANG C, et al. Three-dimensional dendrite growth within the shrouds of single crystal blades of a nickel-based superalloy[J]. Metall. Mater. Trans., 2017, A48: 5 924-5 939.
- [28] WANG F, MA D X, ZHANG J, et al. Effect of local cooling rates on the microstructures of single crystal CMSX-6 superalloy: A comparative assessment of the Bridgman and the downward directional solidification processes [J]. Alloys Compd., 2014, 616: 102-109.
- [29] WANG F, MA D X, ZHANG J, et al. Investigation of segregation and density profiles in the mushy zone of CMSX-4 superalloys solidified during downward and upward directional solidification processes[J]. Alloys Compd., 2015, 620: 24-30.
- [30] NEWELL M, DEVENDRA K, JENNINGS P A, et al. Role of dendrite branching and growth kinetics in the formation of low angle boundaries in Ni-base superalloys[J]. Mater. Sci. Eng., 2005, A412: 307-315.
- [31] SOUZA N D, NEWELL M, DEVENDRA K, et al. Formation of low angle boundaries in Ni-based superalloys [J]. Mater. Sci. Eng., 2005, A413-414: 567-570.
- [32] YANG X L, DONG H B, WANG W, et al. Microscale simulation of stray grain formation in investment cast turbine blades. Mater. Sci. Eng., 2004, A386: 129-139.
- [33] HOUSE R A, TIN S, RAE C M F. A castability model based on elemental solid-liquid partitioning in advanced nickel-base single-crystal superalloys[J]. Metall. Mater. Trans., 2005, A36: 2 761-2 773.
- [34] BREWSTER G, DONG H B, GREEN N R, et al. Surface segregation during directional solidification of ni-base superalloys[J]. Metall. Mater. Trans., 2008, B39: 87-93.
- [35] 刘志义, 雷毅, 傅恒志. DD8 镍基单晶高温合金制备中的杂质长大机制[J]. 金属学报, 2000, 36: 1-6.
- [36] 傅恒志, 何国, 李建国. 单晶高温合金定向凝固过程中晶体竞争生长观察[J]. 金属学报, 1997, 33: 1 233-1 238.
- [37] LI Y F, LIU L, HUANG T W, et al. The process analysis of seeding-grain selection and its effect on stray grain and orientation control[J]. Alloys Compd., 2016, 657: 341-347.
- [38] LI Y F, LIU L, HUANG T W, et al. Multi-scale characterization of stray grain in the platform of nickel base single crystal turbine blade[J]. Vacuum, 2016, 131: 181-187.
- [39] XU Q Y, LIU B C, LIANG Z J, et al. Modeling of unidirectional growth in a single crystal turbine blade casting[J]. Mater. Sci. Forum, 2006, 508: 111-116.
- [40] YU J, XU Q Y, LIU B C, et al. Numerical simulation of unidirectional solidification process of turbine blade castings[J]. Adv. Mater. Research, 2007, 26-28: 947-951.
- [41] CHEN R, XU Q Y, LIU B C. Cellular automaton simulation of three-dimensional dendrite growth in Al-7Si-Mg ternary aluminum alloys[J]. Comp. Mater. Sci. 2015, 105: 90-100.
- [42] PAN H W, HAN Z Q, LIU B C. Study on dendritic growth in pressurized solidification of Mg-Al alloy using phase field simulation[J]. Mater. Sci. Technol., 2016, 32: 68-75.
- [43] YAN X W, ZHANG H, TANG N, et al. Multi-scale simulation of single crystal hollow turbine blade manufactured by liquid metal cooling process[J]. Progress in Natural Science: Materials International, 2018, 28: 78-84.
- [44] HARRIS K, ERICKSON G L. Single crystal alloy technology. USA: 4643782[P]. 1987-02-17.
- [45] HIGGINBOTHAM G J S. From research to cost-effective directional solidification and single-crystal production-an integrated approach[J]. Mater. Sci. Technol., 1986(2): 442-459.
- [46] XIANG S S, MAO S C, WEI H, et al. Selective evolution of secondary precipitation in a Ni-based single crystal superalloy both in the matrix and at the dislocation nodes[J]. Acta Mater., 2016, 116: 343-353.
- [47] DING Q Q, LI S Z, CHEN L Q, et al. Re segregation at interfacial dislocation network in a nickel-based superalloy[J]. Acta Mater., 2018, 154: 137-146.
- [48] 赵代银, 何建, 伍林, 等. 陶瓷型芯在高温合金熔模铸造中的应用技术[J]. 特种铸造及有色合金, 2020, 40(9): 999-1 003.
- [49] 贾志宏, 马奥林, 赵玉涛, 等. 单晶高温合金螺旋选晶器选晶行为的模拟和试验研究[J]. 特种铸造及有色合金, 2019, 39(3): 242-246.
- [50] 雷四雄, 杨伟, 郑行, 等. 精铸工艺对 K438 合金组织及高温力学性能的影响[J]. 特种铸造及有色合金, 2019, 39(3): 306-309.
- [51] 郭钊, 周建新, 殷亚军, 等. 基于改进差分网格的高温合金定向凝固数值模拟[J]. 特种铸造及有色合金, 2019, 39(6): 613-618.
- [52] 赵金乾, 李嘉荣. 单晶高温合金小角度晶界组织演化[J]. 特种铸造及有色合金, 2018, 38(2): 122-125.
- [53] 李海松, 李林蓄, 曾洪, 等. 镍基高温合金单晶叶片凝固组织模拟[J]. 特种铸造及有色合金, 2018, 38(12): 1 312-1 316.
- [54] GIAMEI A F, TSCHINKEL J G. Liquid metal cooling: A new solidification technique[J]. Metall. Trans. A-Phys. Metall. Mater. Sci. 1976 (7): 1 427-1 434.

(编辑:彭瑾)

欢迎使用在线稿件处理系统

投稿、查稿、审稿

敬请登录 www.special-cast.com

镍基单晶高温合金竞争生长机制的研究及其发展

孟祥斌^{1,3} 李金国² 王欢³ 郭宁¹ 张朝威² 刘纪德² 梁静静² 李力刚⁴ 肖斌⁵ 全议森³ 唐炳涛¹

[1.齐鲁工业大学(山东省科学院)机械与汽车工程学院; 2.中国科学院金属研究所; 3.山东泰全重型汽车配件股份有限公司技术中心; 4.中国科学院沈阳自动化研究所; 5.山东高信化学股份有限公司技术中心]

摘要 回顾了近几十年来镍基单晶高温合金定向凝固过程中晶粒竞争生长机制的研究历程,并介绍了近年来在定向凝固晶粒竞争生长研究方面的工作进展,最后展望了其未来的发展方向。

关键词 镍基单晶高温合金;温度场;溶质场;协同作用;异常生长

中图分类号 TG132.3⁺2 **文献标志码** A

DOI:10.15980/j.tzzz.2021.11.002

开放科学(资源服务)标识码(OSID):



Mechanism of Competitive Grain Growth of Nickel-based Superalloy and Its Development

Meng Xiangbin^{1,3}, Li Jinguo², Wang Huan³, Guo Ning¹, Zhang Chaowei², Liu Jide²,
Liang Jingjing², Li Ligang⁴, Xiao Bin⁵, Tong Yisen³, Tang Bingtao¹

[1.School of Mechanical and Automotive Engineering, Qilu University of Technology (Shandong Academy of Sciences); 2.Institute of Metal Research, Chinese Academy of Sciences; 3.Technical Center of Shandong Taiquan Heavy Truck Parts Stock Co., Ltd.; 4.Shenyang Institute of Automation, Chinese Academy of Sciences; 5.Technology Center of Shandong Gaoxin Chemical Co., Ltd.]

Abstract: The course of competitive growth mechanism of nickel based single crystal superalloy during directional solidification in recent decades were systematically reviewed. Furthermore, the progress in this field was introduced. Finally, the future outlooks were prospected.

Key Words: Nickel-base Superalloy, Temperature Field, Solution Field, Synergistic Effect, Unusual Overgrowth

发动机的推重比是衡量发动机性能的重要指标,也是衡量其设计、材料和加工工艺水平的综合性指标,而发动机的涡轮前燃气温度则是影响其推重比的关键因素。随着先进航空发动机推重比和涡轮前温度的持续升高,涡轮叶片需要在更严苛的高温高压环境下,长期承受热应力和离心力的交互作用。目前主要通过提高涡轮叶片材料承温能力、优化防护涂层设计和改进叶片冷却技术3种途径来满足先进航空发动机涡轮叶片对高温性能的苛刻要求。纵观先进航空发动机几十年来发展历程^[1~3],见图1,可知采用新型含Re镍基单晶高温合金制备具有复杂冷却通道的大尺寸涡轮叶片,并在叶片表面涂覆先进热障涂层,已成为继续提升新型航空发动机关键热端部件整体性能的有效手段和必然趋势。

对于面心立方结构(fcc)的镍基单晶高温合金来说,<001>取向是其择优生长方向,即生长速度最快的方向^[4,5]。同时,<001>取向的镍基单晶高温合金也具有最佳的综合性能。为此,通常采用选晶技术或者籽晶技术与定向凝固技术相结合,制备<001>取向平行于主应力轴,具有良好综合性能的镍基单晶高温合金叶片。但是,随着新型含Re镍基单晶高温合金的广泛应用和先进单晶涡轮叶片尺寸大型化、结构复杂化,叶片制备过程中特别容易出现取向偏离^[6~18]、小角度晶界^[19~21]、杂晶形核与长大^[22~27]等一系列问题,显著降低了单晶叶片的合格率,大幅增加了制备成本,严重限制了单晶叶片的工程化应用。从本质上讲,取向偏离、小角度晶界和杂晶等凝固缺陷形成问题,都是定向凝固过程中择优取向晶粒(晶粒取向接近<001>)和非择优

收稿日期:2021-03-23
基金项目:国家自然科学基金资助项目(U1508213,51771190,51601102,51871221);国家科技重大专项资助项目(J2019-VI-0023-0139,2017-VI-0003-0073);山东省自然科学基金面上项目(ZR2020ME110);西北工业大学凝固技术国家重点实验室资助项目(SKLSP201847,SKLSP201834);齐鲁工业大学青年博士合作项目(2018BSHZ003);德阳市开放式校市合作技术研发项目(2018CKJ001)
第一作者简介:孟祥斌,男,1984年出生,副教授,济南(250021),E-mail:mengxiangbin84@163.com
通信作者:李金国,男,1975年出生,研究员,沈阳(110016),E-mail:jgli@imr.ac.cn
引用格式:孟祥斌,李金国,王欢,等.镍基单晶高温合金竞争生长机制的研究及其发展[J].特种铸造及有色合金,2021,41(11):1328-1333.
MENG X B, LI J G, WANG H, et al. Mechanism of competitive grain growth of nickel-based superalloy and its development[J]. Special Casting & Nonferrous Alloys, 2021, 41(11):1328-1333.

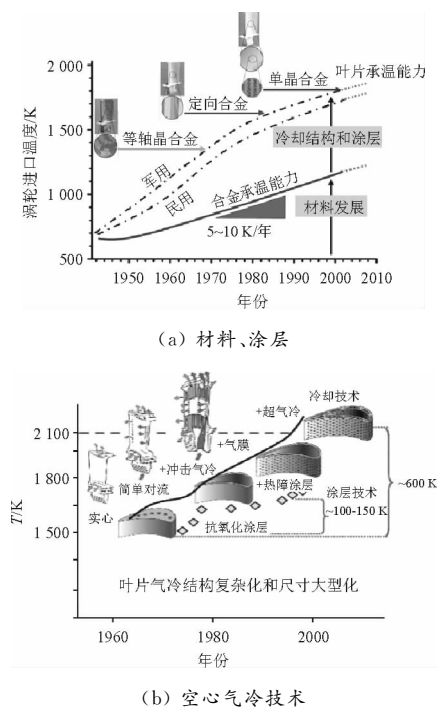


图 1 先进航空发动机涡轮叶片的发展历程
Fig.1 Developing course of advanced aero-engine turbine blade materials

取向晶粒(晶粒取向偏离 $\langle 001 \rangle$)之间的竞争生长问题。因此,为了改进现有单晶制备技术,减少定向凝固过程中的铸造缺陷,提高单晶叶片质量,必须深入研究定向凝固的理论基础——晶粒之间的竞争生长机制。

1 Walton-Chalmers 经典竞争生长模型

对于晶粒竞争生长机制的研究起源于 20 世纪 50~60 年代。WALTON D 等^[28]和 CHALMERS B^[29]在研究 Pb-Ag 合金凝固过程中不同取向晶粒之间的生长行为时,分别提出了经典的竞争生长理论,认为热力学过冷和成分过冷是导致柱状晶区的各向异性生长,并最终出现择优生长现象的主要原因。RAPPAZ M 等^[30]和 GANDIN C A 等^[31,32]继承并发展了这一理论,在过冷度控制着晶粒竞争生长行为的基础上,构建了晶粒竞争生长的温度场模型,见图 2。晶粒 A_1 和晶粒 A_2 为择优取向的晶粒,晶粒 B 为非择优取向的晶粒,并与择优取向的晶粒 A_1 和 A_2 有 θ 的偏差(相对于温度梯度的方向)。如果非择优取向晶粒 B 要保持与晶粒 A_1 和 A_2 沿温度梯度方向有相同的生长速度,其枝晶尖端就需要以 $v_\theta = v_L / \cos\theta$ 的速度生长,因而在枝晶前端需要更大的过冷度。这样,竞争生长过程中,非择优取向晶粒 B 的枝晶前沿就会落后于择优取向晶粒 A_1 和 A_2 。根据晶粒 A 和 B 之间的取向关系,会出现汇聚生长(见图 2 中 A_1 和 B)和发散生长(见图 2 中 B 和 A_2)两种情况。汇聚生长中,由于晶粒 B 落后于晶粒 A_1 ,

晶粒 B 的枝晶会在晶界处撞上晶粒 A_1 , 停止生长,始终无法超过晶粒 A_1 。发散生长中,由于在晶界附近会出现一个有利于高次枝晶生长的空间,因而晶粒 A_2 会分枝出高次枝晶,挤压晶粒 B 的生长空间。两种情况下,择优取向晶粒 A_1 和 A_2 存活下来,而非择优取向晶粒 B 则会被挤掉,最终消失。温度场模型的最终结果是,择优取向的晶粒 A 通过竞争生长保留下来,也被称为择优生长。

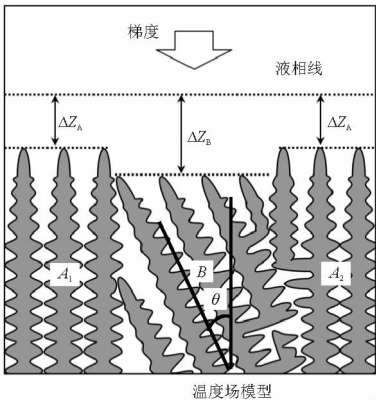


图 2 Walton-Chalmers 经典竞争生长模型
Fig.2 The classical Walton-Chalmers competitive growth model

2 溶质场竞争生长模型

在过去的 20 多年中, Walton-Chalmers 竞争生长模型和结论逐渐被越来越多的研究人员接受和认可。但是,随着对晶粒之间竞争生长行为研究的不断深入,发现许多试验现象不符合该经典模型,或无法用该温度场模型解释。ZHOU Y Z 等^[33,34]通过一系列双晶试验,发现了汇聚双晶试样在低抽拉速率条件下,非择优晶粒会超过择优晶粒的异常现象。研究者分别利用相场法在 Ni 基高温合金和 Al-Cu 合金中重现了汇聚情况下非择优取向晶粒超过择优取向晶粒的现象^[35~40]。为了解释这一反常现象,提出了晶粒竞争生长的溶质场模型,见图 3。研究认为,由于汇聚情况下不同取向晶

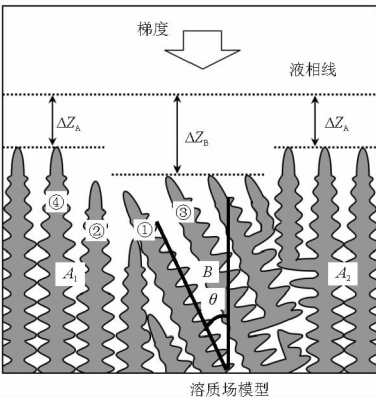


图 3 溶质场控制的竞争生长模型
Fig.3 The competitive growth model inhibited by solution field

粒的枝晶在晶界发生聚集,造成晶界附近溶质交互作用很强烈,显著影响晶界附近的枝晶生长,导致晶界附近的枝晶落后于远离晶界的枝晶,即图 3 中晶界附近择优取向的枝晶②落后于远离晶界择优取向的枝晶④,晶界附近非择优取向的枝晶①落后于远离晶界非择优取向的枝晶③。这样,晶界附近的非择优取向的枝晶①和择优取向的枝晶②在糊状区的枝晶前沿的位置很接近,最终导致非择优晶粒既有超过择优晶粒的可能(见图 3 中①),也有被择优取向晶粒阻挡的可能性(见图 3 中②)。最终,在汇聚情况下,非择优取向晶粒 B 逐渐挤掉择优取向晶粒 A_1 。

3 三维取向关系下的竞争生长模型

现有温度场模型和溶质场模型扩展了研究者对竞争生长机制的认识,成功的解释了竞争生长过程中很多常见试验现象,为深入理解和掌握竞争生长机制奠定了坚实的基础。但是,竞争生长过程中的一些基本问题仍然没有得到彻底解决。首先,无论是温度场模型,还是溶质场模型都是在二维取向关系下对晶粒的竞争生长行为进行研究,而实际晶粒的取向关系是三维的,要比二维情况复杂很多^[41~45]。其次,现有研究工作对汇聚情况下晶粒的竞争生长行为和相应的控制机制还存在比较严重的分歧和争议,温度场模型和溶质场模型在汇聚情况下存在不可调和的矛盾。第三,现有研究大多是人为地把温度场和溶质场分开,着重强调了单一控制因素(温度场或溶质场)对竞争生长行为的影响,忽视了定向凝固过程中温度场和溶质场之间的交互作用,也未能充分说明这些控制因素的作用方式和影响范围。而实际的竞争生长过程中,温度场和溶质场是一个整体,二者通过协同作用共同影响晶粒的竞争生长行为。此外,现有针对竞争生长的研究主要集中于晶粒的汇聚情况,而忽略了异面情况和发散情况这两种基本取向关系下晶粒的竞争生长行为。最后,现有研究更多关注宏观尺度的温度场、溶质场和流场等,或者介观尺度的枝晶生长,枝晶取向等,尚未从微观尺度上阐明晶粒竞争生长过程及显微组织(γ 相、 γ' 相形貌,尺寸,数量,晶体取向,位错组态等)的演化规律,无法解释晶粒竞争生长行为与显微组织特征之间的响应关系,而显微组织演化与晶粒之间的竞争生长行为其实是密不可分的。

在本研究的前期工作中,扩展了晶粒的取向关系,提出了异面生长这一双晶的基本取向关系,成功将双晶的二维取向关系扩展到三维^[41,42]。随后,通过试验和模拟相结合的方法,初步研究了三维取向关系下晶粒的竞争生长行为。结果表明,竞争晶粒的生长是由温度场和溶质场的协同作用控制的,其控制方式与择优取向晶

粒和非择优取向晶粒之间的取向偏差有关,见图 4。在汇聚情况下,当非择优取向晶粒取向偏差较小时,非择优取向晶粒占据优势,溶质场主导竞争晶粒生长过程,见图 4a 和图 4b;当非择优取向晶粒取向偏差较大时,择优取向晶粒开始占据优势,晶粒竞争生长过程的控制因素逐渐由溶质场转变为温度场,见图 4c~图 4f。为了解释汇聚情况下竞争生长由溶质场控制向温度场控制的这一反常转变,提出了与双晶取向偏差相关的温度场-溶质场协同控制模型,并通过一个临界取向偏差 θ_{cm} 来确定该转变的临界条件。

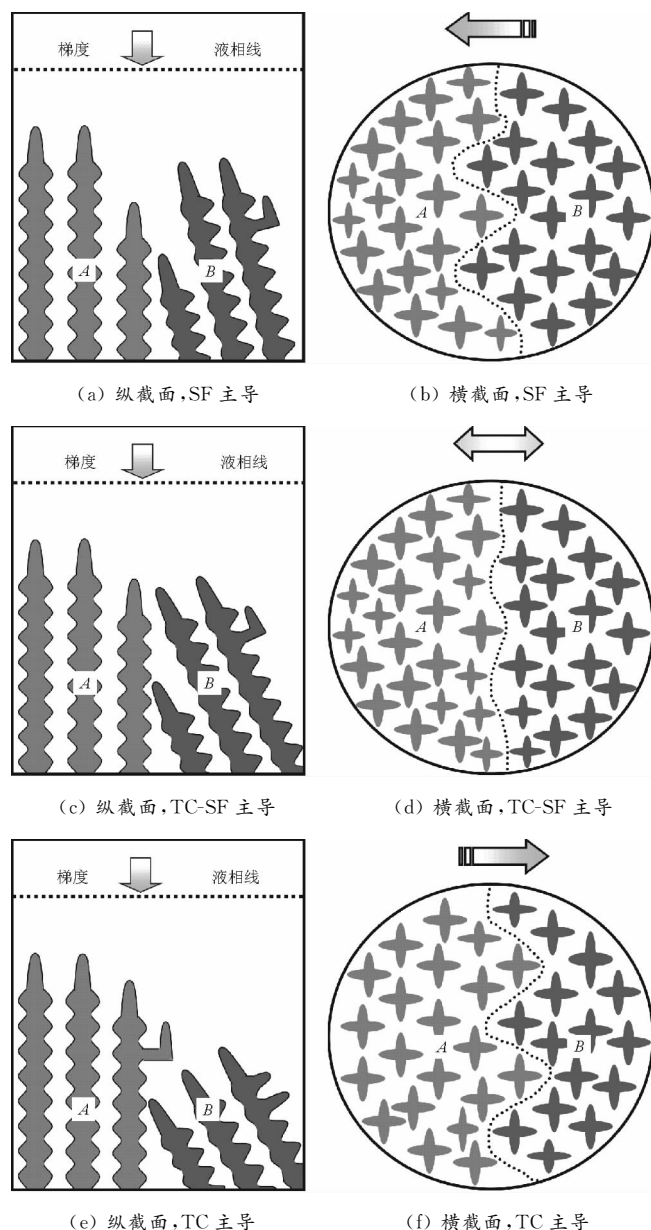


图 4 汇聚情况下晶粒竞争生长的示意图
(SF 为溶质场,TC 为温度场)

Fig.4 Schematic diagram of competitive grain growth in the convergent case

在此基础上,为了研究取向演化规律与 γ 相、 γ' 相等显微组织的关联性,还利用了 HR-EBSD 技术^[46~48],

在取向偏差为 $0^{\circ}/20^{\circ}$ 的双晶试样中观察了晶界附近的取向演化情况。结果表明,在 $0^{\circ}/20^{\circ}$ 双晶试样晶界处 $1\sim 2\ \mu\text{m}$ 的范围内($2\sim 3$ 个 γ' 相的距离),晶体取向在 γ' 相中呈连续变化,而在 γ 相和 γ' 相相界面附近与 γ 通道内,晶体取向发生明显偏转,见图 5。图 5a 和图 5b 表明, γ 相为细窄的连续通道,硬度较低;而硬度较高的 γ' 析出相呈现为大小不一、形状不规则的立方块状。根

据这一结果,初步推测是由于定向凝固过程中产生的收缩应力引起了枝晶取向发生了宏观性枝晶偏转,见图 5e。而图 5f 中,晶界附近 γ' 相内部和 γ 通道中不同的取向偏转特征则与 γ 相和 γ' 相的凝固顺序和力学性能差异有关。也就是说,从微观尺度上晶界处的 γ 相和 γ' 相的组织特征和取向演化规律与定向凝固过程中的温度场、溶质场分布,以及晶界处的枝晶生长行为密切

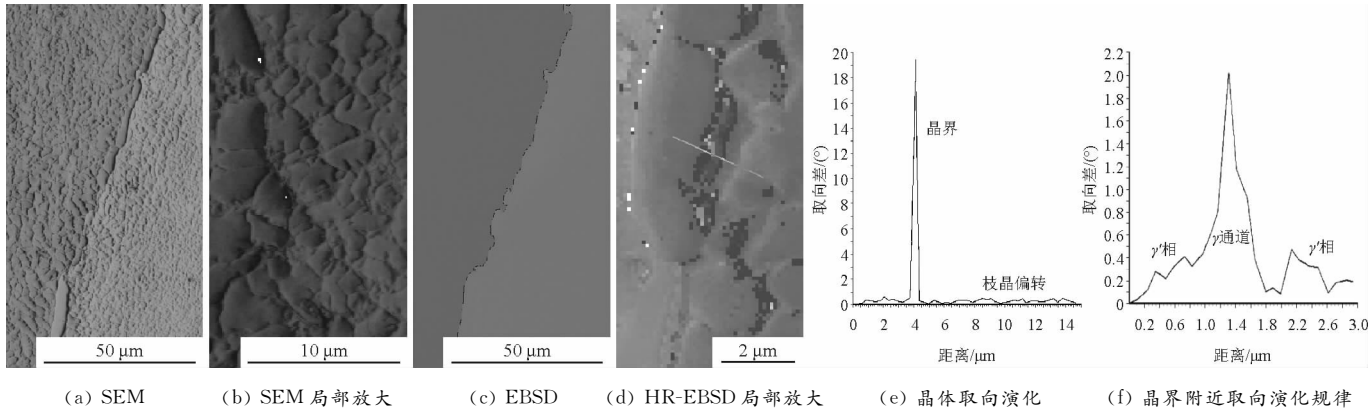


图 5 晶界处 γ 相、 γ' 相组织特征和晶粒取向演化规律

Fig.5 The evolution rule of structure characteristics and grain orientation of γ phase and γ' phase on the grain boundary 相关。

但是,现有研究工作还处于唯象阶段,未能系统地阐明晶粒竞争生长过程中晶粒取向、生长工艺与显微组织(γ 相、 γ' 相形貌,尺寸,数量,晶体取向)之间的关联性,尚未揭示晶粒竞争生长过程中显微组织、介观组织(枝晶生长,枝晶取向)和宏观控制因素(温度场和溶质场)之间的响应关系,以及建立满足多尺度条件下的晶粒竞争生长模型。此外,现有研究仍主要集中于晶粒的汇聚情况,而对异面情况和发散情况这两种基本取向关系下晶粒的竞争生长行为关注较少,更为深入的研究工作亟待开展。

4 未来竞争生长领域的研究方向

纵观几十年来晶粒竞争生长领域的研究历程,从最初观察 Pb-Ag 合金中枝晶生长行为,到系统总结了过冷度与晶粒竞争生长规律的基础上提出温度场模型,再到通过反常试验现象——非择优晶粒的异常生长归纳出溶质场模型,直到现阶段尝试融合温度场模型和溶质场模型,有针对性地提出温度场-溶质场协同控制模型,定义临界偏转角度的概念用以区分温度场和溶质场的控制方式和作用范围,对晶粒竞争生长行为的认识逐渐加深,对竞争生长机制方面的研究获得了持续的进展。目前,竞争生长领域的研究工作正在从表观试验现象的唯象阶段向介观-微观机制的系统归纳总结阶段逐步深化,未来以下几个方面的工作仍有待解决。

4.1 汇聚情况下晶粒的竞争生长机制

现有研究工作重点关注汇聚情况下晶粒的竞争生长行为和相应的控制机制。温度场模型认为,定向凝固过程中的热力学过冷和成分过冷控制着晶粒的竞争生长行为,由于非择优取向晶粒的生长方向与温度梯度的方向存在偏差,因而需要更大的过冷度才能在温度梯度方向上与择优生长的晶粒保持一致,导致非择优取向晶粒的枝晶前端落后于择优取向的晶粒,并最终被择优取向的晶粒挤掉。而溶质场模型则认为,汇聚情况下不同取向晶粒的枝晶在晶界发生聚集造成晶界附近存在强烈的溶质交互作用,导致晶界附近的枝晶落后于远离晶界的枝晶,最终非择优取向晶粒逐渐挤掉择优取向晶粒。因此,汇聚情况下温度场模型和溶质场模型在晶粒竞争生长的最终结果存在着严重的分歧。为了调和温度场模型和溶质场模型之间的矛盾,提出了温度场-溶质场协同控制模型。但是,该模型还未能从本质上说明随着偏转角度的增加,竞争生长过程的主导控制因素从溶质场向温度场转变的根本原因。同时,该模型未得到大量竞争生长试验数据的支持,也未得到相关研究人员的广泛认可。综上所述,汇聚情况下晶粒的竞争生长机制仍是竞争生长领域的研究热点。

4.2 三维取向关系下晶粒的竞争生长机制

在二维取向关系下,双晶取向关系可以分为汇聚关系和发散关系。无论是温度场模型,还是溶质场模型都是在二维取向关系下对晶粒的竞争生长行为进行研究。