

文章编号: 1004-0609(2004)06-0901-06

FGH95 高温合金的静态再结晶机制^①

胡本芙¹, 陈焕铭^{1, 2}, 金开生¹, 李慧英¹

(1. 北京科技大学 材料科学与工程学院, 北京 100083;

2. 宁夏大学 物理与电气信息工程学院, 银川 750021)

摘 要: 对热等静压 FGH95 合金高温挤压形变后的试样进行静态再结晶处理, 讨论了其再结晶形核机制及 γ' 相对再结晶过程的影响。结果表明: 合金在 γ' 相几乎完全溶解温度以上再结晶时, 形核以应变诱发晶界迁移机制进行, 而在 γ' 相大量存在的温度范围内则是以亚晶粗化形核机制进行; γ' 相的分解速率对再结晶速率有重要影响, 随再结晶温度的升高, γ' 相分解速率加快, 再结晶激活能减小, 再结晶速率加快, γ' 相分解后以同步或不同步方式重新析出。

关键词: FGH95 高温合金; 静态再结晶; 形核机制

中图分类号: TF 125.212

文献标识码: A

Static recrystallization mechanism of FGH95 superalloy

HU Ben-fu¹, CHEN Huan-ming^{1, 2}, JIN Kai-sheng¹, LI Hui-ying¹

(1. School of Materials Science and Engineering,

University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China;

2. School of Physics and Electrical Information Engineering,

Ningxia University, Yinchuan 750021, China)

Abstract: The as-HIPed FGH95 alloy was deformed by extrusion at high temperature, and then the as-extruded sample was treated with static recrystallization. The nucleation mechanism and the influence of γ' phase on recrystallization process during static recrystallization were also discussed. The results indicate that the nucleation mechanism is strain-induced boundary migration (SIBM) when alloy is treated near the temperature at which γ' phase can be dissolved completely, and it is subgrain coalescence when alloy is treated at the temperature at which a lot of γ' phase exist. The γ' phase decomposition rate has an important influence on the recrystallization rate. With the recrystallization temperature increasing, the γ' phase decomposition rate increases and the activation energy of recrystallization decreases, resulting in recrystallization rate to increase. The γ' phase reprecipitates in recrystallized grains by synchronization or non-synchronization.

Key words: FGH95 superalloy; static recrystallization; nucleation mechanism

粉末高温合金是 20 世纪 60 年代诞生的新一代高温合金, 由于其组织均匀、无宏观偏析、屈服强度高和疲劳性能好等优点, 很快成为先进航空发动机涡轮盘、档环等关键部件的首选材料^[1-5]。FGH95 合金是一种 γ' 相沉淀强化型镍基粉末高温合金, γ' 相体积分数接近 55%, 在 650 °C 范围内具有较高

的拉伸强度^[6-9]。国内目前采用的成型工艺是热等静压加包套锻造^[10]。本文作者将热等静压 FGH95 合金进行高温挤压形变并对挤压后的试样进行静态再结晶处理, 采用光学显微镜(OM)及透射电镜(TEM)观察其再结晶行为并讨论了 γ' 相对再结晶过程的影响。这方面的研究对于通过形变来获得细

① 基金项目: 国防科工委“九五”攻关资助项目(95-YJ-20)

收稿日期: 2003-10-17; 修订日期: 2004-01-08

作者简介: 胡本芙(1937-), 男, 教授, 博士生导师。

通讯作者: 胡本芙, 教授; 电话: 010-62333037; E-mail: hubenfu@163.net

晶的生产工艺的制定具有实际意义。

1 实验

将热等静压 FGH95 合金重新包套(热等静压制度分别为: 1 120 °C, 105 MPa, 3 h; 1 190 °C, 105 MPa, 3 h)。包套尺寸为 d 100 mm $\times$ 90 mm, 将包套的试样加热至 1 120 °C 保温 2 h 后挤压, 挤压比为 6.5:1。对挤压后的试样分别在 850、900、950、1 100、1 150 和 1 170 °C 下进行静态再结晶处理, 保温时间分别为 10、20、30、40、60 和 90 min。光学显微镜观察试样用的浸蚀剂溶液成分为 CuCl_2 (5 g) + HCl (100 mL) + 酒精 (100 mL), 浸蚀 2 min; 采用电解双喷方法制备用于透射电镜观察(型号为 H-800)的薄膜试样。

2 实验结果

2.1 形核与长大

对 1 150 和 1 170 °C 静态再结晶处理试样的光学显微镜观察表明, 再结晶以应变诱发晶界迁移的弓突方式进行(图 1(a) 和(b) 中箭头所示), 即由于大角度晶界两侧亚晶含有不同的位错密度, 致使亚晶所含的应变存储能不同。在应变存储能差这一驱动力作用下, 大角度晶界向位错密度高的一侧移动, 进而形成无应变的再结晶晶粒。由于加热温度很高, 保温 10 min 后大部分晶界已经平直化, 说明在这一温度区间再结晶进行得很快。

用透射电镜对 1100 °C 以下静态再结晶处理后的薄晶体试样进行观察, 发现再结晶晶粒主要在

γ/γ' 界面上及高形变缺陷处形核, 新晶粒是通过亚晶形核并长大的。如图 2(a) 和(b) 所示, 在 γ/γ' 界面处形成的亚晶粒 S, 其晶界由位错组成, 亚晶粒内部位错密度很低, H 晶粒则已开始长大, 在其内部已有明显的小 γ' 相颗粒析出。如图 2(c) 所示, 正在形成的亚晶粒 S 的形核位置处于具有高形变缺陷的形变带, 在形变区储存的应变能的驱动下, 通过位错的迁移或攀移来完成长大。实验中还观察到一处亚晶在 MC 型碳化物上形核(见图 2(d)), 但这种现象在本实验中并不常见, 即碳化物并不能作为新晶粒形核的优先部位。

实验中还发现: 再结晶晶粒(图 3 中晶粒 R) 形核后在长大的过程中其晶界的迁移往往受阻, 在这种受阻界面前沿又发生亚晶形核现象(见图 3(a) 和(b))。这是因为在 1 100 °C 以下 γ' 相体积分数还相当高, 对界面的阻碍作用很显著, 迁移界面很难挣脱 γ' 相的钉扎作用, 再结晶的继续进行是依靠重新形核来完成的, 而不是原有界面的继续推移。

2.2 再结晶过程中 γ' 相的变化

图 2(a) 和(b) 不仅揭示了新的 γ 亚晶在大 γ' 相(尺寸大于 1.0 μm) 与 γ 相界面上诱发形成, 而且表明大 γ' 相本身也可以进行回复和再结晶。大 γ' 相的再结晶也是通过亚晶长大进行的, 亚晶在应变能驱动下逐步长大, 使大 γ' 相的位错密度逐渐减小。由于位错运动在本质上是原子组态的运动, 大 γ' 相再结晶需要其周围的基体提供 γ' 相形成元素(如 Al、Ti), 其结果是在大 γ' 相周围产生贫 γ' 相区(如图 2(a) 和(b) 中的 A、B 所示)。这样就为 γ 亚晶的形成提供了部分化学驱动力, 再加上 γ/γ' 界面上

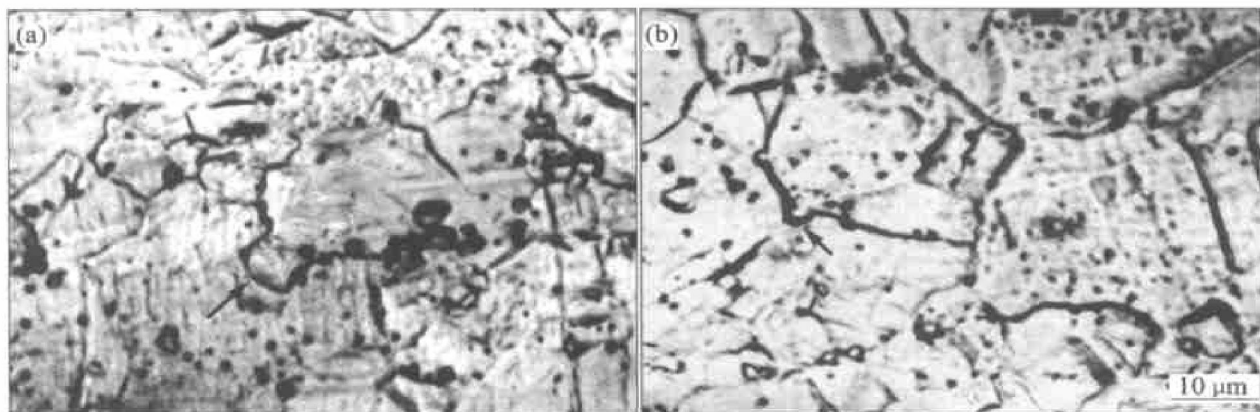


图 1 应变诱发晶界迁移

Fig. 1 Strain induced boundary migration

(a) —1 120 °C HIP + Extrusion + 1 150 °C, 10 min; (b) —1 120 °C HIP + Extrusion + 1 170 °C, 10 min

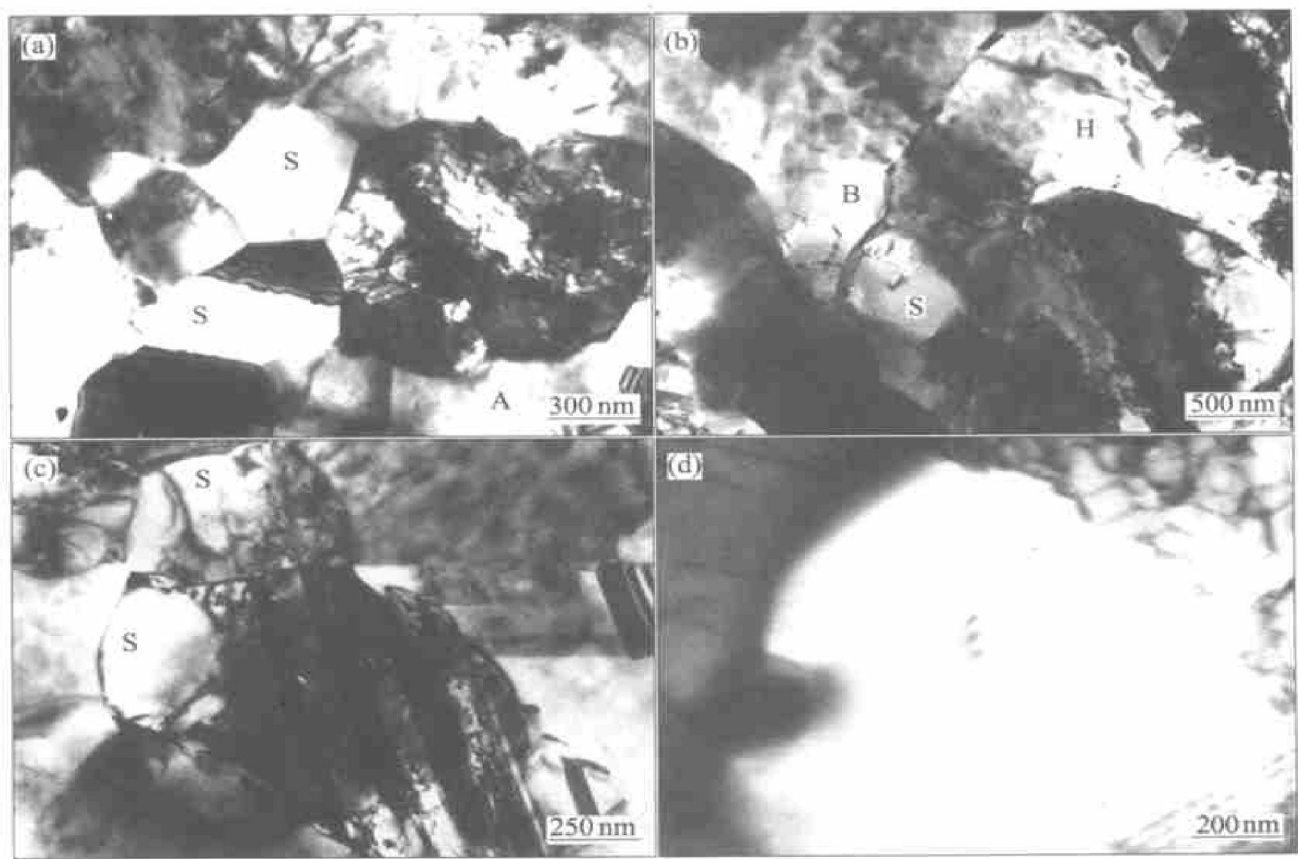


图 2 亚晶形核与长大

Fig. 2 Nucleation and growth of subgrains

(a) $-1\ 120\ ^\circ\text{CHIP} + \text{Extrusion} + 850\ ^\circ\text{C}, 10\ \text{min}$; (b) $-1\ 190\ ^\circ\text{CHIP} + \text{Extrusion} + 850\ ^\circ\text{C}, 10\ \text{min}$;
(c) $-1\ 120\ ^\circ\text{CHIP} + \text{Extrusion} + 850\ ^\circ\text{C}, 10\ \text{min}$; (d) $-1\ 190\ ^\circ\text{CHIP} + \text{Extrusion} + 1\ 100\ ^\circ\text{C}, 10\ \text{min}$

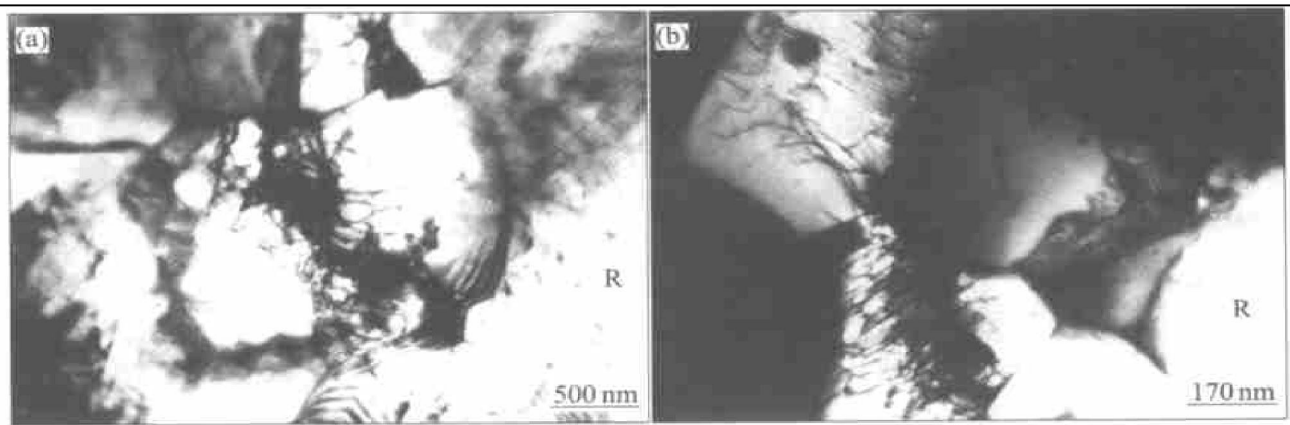


图 3 亚晶在受阻界面前形成

Fig. 3 Subgrain formation before pinning boundary

(a) $-1\ 120\ ^\circ\text{CHIP} + \text{Extrusion} + 850\ ^\circ\text{C}, 10\ \text{min}$; (b) $-1\ 190\ ^\circ\text{CHIP} + \text{Extrusion} + 1\ 100\ ^\circ\text{C}, 10\ \text{min}$

应变能的驱动, γ 相亚晶粗化长大, 发生再结晶。而 γ 相亚晶晶粒长大时造成其界面富有 γ' 相形成元素, 因此进一步促使大 γ' 相的再结晶。所以, 当大 γ' 相和基体同时再结晶时, 由于合金元素的互补, 二者再结晶可以互相协调, 使得大 γ' 相亚晶的位置与基体 γ 相亚晶的形核位置离得很近。

在 γ' 相体积含量很高的合金再结晶过程中, 实验还观察到 γ' 相在界面前沿发生溶解的现象(图 4(a)), 与图 2(a) 和(b) 不同, 在其界面周围没有产生贫 γ' 相区。因此 γ' 相只能是随晶粒界面的推移, 在对界面起钉扎作用的同时其形成元素沿界面扩散至别处。在界面后面观察到了两种类型的析出, 一

种如图4(b)所示, γ' 相尺寸在整个晶粒范围内大小不均匀, 靠近界面处(图4(b)箭头所示) γ' 相尺寸较小, 而在晶粒中心 γ' 相则较大; 另一种类型是 γ' 相紧接着界面而析出(图4(c)箭头所示), 并与界面的推移保持同步。由于这种 γ' 相随界面不断推移而析出, 故称其为同步析出, 相应的第一种方式称为不同步析出, 这两种析出方式似乎应与界面前沿 γ' 相形成元素的摩尔分数大小有关。

2.3 再结晶动力学

对原始挤压态及静态再结晶处理的试样进行维

氏硬度(HV)测定(载荷为200 N), 结果如图5(a)所示。对于不同再结晶温度(T)下处理的试样, 随再结晶时间的延长, 试样的硬度均逐渐下降, 选择硬度降至HV450时的时间(t)作为再结晶完成的时间, 作出 $\ln(1/t) - 1/T$ 曲线, 利用其斜率可以求得表观再结晶激活能 Q , 如图5(b)所示。1 120 °CHIP + Extrusion 试样的再结晶激活能为 656 kJ/mol, 1 190 °CHIP + Extrusion 试样的再结晶激活能为 615 kJ/mol, 其平均值为 635 kJ/mol。从这一结果看 Q 值相当高, 这可能与再结晶过程中存在第二相粒子 γ' 有关。文献[11]中提到的Zener的夹杂假设认为:

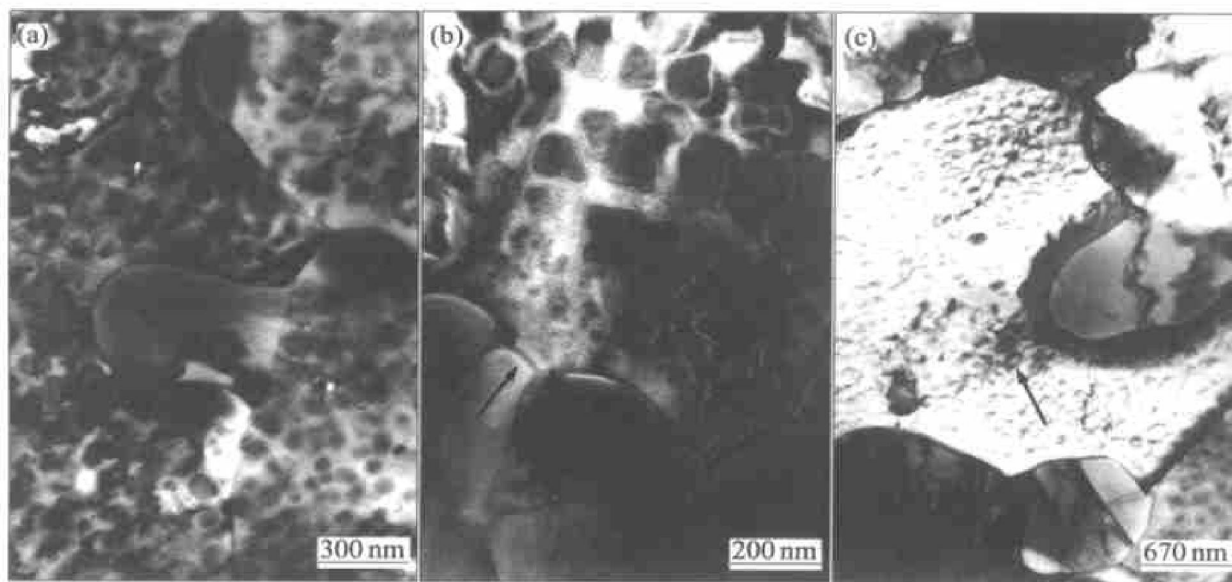


图4 再结晶过程中 γ' 的分解与析出

Fig. 4 Decomposition and precipitation of γ' phase during recrystallization

(a) —1 120 °CHIP+ Extrusion+ 950 °C, 10 min; (b) —1 120 °CHIP+ Extrusion+ 850 °C, 10 min;

(c) —1 190 °CHIP+ Extrusion+ 900 °C, 10 min

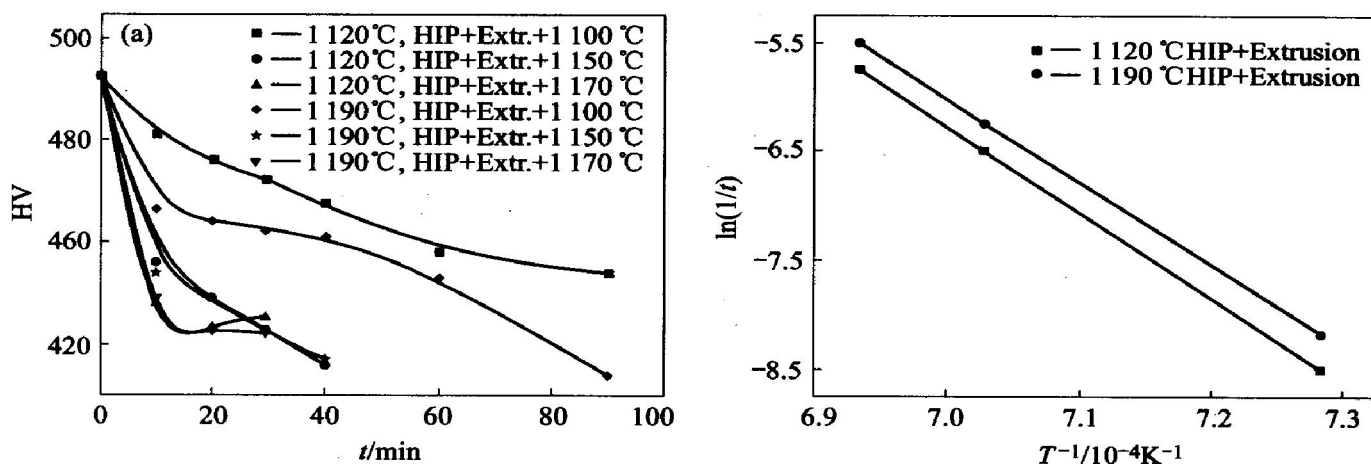


图5 再结晶时间与硬度及再结晶温度的关系

Fig. 5 Relationships among recrystallization time hardness and recrystallization temperature

(a) —Curves of HV — t ; (b) —Curves of $\ln(1/t) - 1/T$ (HV 450)

由于第二相粒子对界面的钉扎, 界面迁移的激活能应是温度的函数, 不同粒子在不同温度处于不同的稳定状态, 故不同再结晶温度下的 Q 值也不相同。只有当温度超过第二相粒子溶解温度时, Q 值才表现为 Ni 合金的真实值 ($Q_{\text{Ni}} = 273 \text{ kJ/mol}$)。

3 讨论

通常导致再结晶的形核机制有两种: 一种是应变诱发晶界迁移 (SIBM)^[12], 另一种形核方式是亚晶形核^[13]。第一种机制是由于应变造成缺陷密度的不同, 使得已有晶界由低密度一侧向高密度一侧弓出, 达到一定尺寸后成为稳定界面。它不但受应变能控制, 同时在很大程度上受晶界上第二相粒子的大小、数量的影响。对 FGH95 合金而言, 当温度升高到 γ' 相几乎完全溶解的温度以上时, 类似于单相合金的再结晶可以按 SIBM 机制进行, 因而在实验中观察到 1150 °C 以上再结晶以弓突方式进行。第二种机制是指在 γ' 相大量存在的温度范围内, 由于 γ' 相对晶界有很强的钉扎作用而使 SIBM 机制受阻, 大部分形变倾向于集中在晶界和第二相粒子周围, 使得在 γ/γ' 界面堆积成网状高密度位错, 有利于亚晶形核。Bee 等^[14] 在解释项链组织产生的原因时, 也认为锻造前在晶界上的块状大 γ' 相能够诱发亚晶粗化形核, 并认为亚晶粗化是惟一可能的形核机制。实验中观察到新晶粒除了在 γ/γ' 界面形核外, 同样在没有大 γ' 相的高形变缺陷处形核, 其原因可能是由于挤压比锻造的形变量大得多, 使得形变基体的应变能足以提供亚晶长大所需的驱动力。

在 γ' 相大量存在的温度范围内进行的再结晶, 形核机制除了受 γ' 相大小、数量的控制外, 形核后新晶粒的界面移动或长大也同样受 γ' 相的影响。由于 γ' 相在界面溶解, 使得界面上 γ' 相形成元素处于过饱和状态, γ' 相可以通过其形成元素的短程扩散形核并快速生长的同步方式析出, 也可通过不同步方式在界面后析出, 先析出的 γ' 相随后发生粗化, 如图 4 所示。Menzies 等^[15] 的实验结果也表明, γ' 相是通过沿界面快速扩散而溶解, 但是如果 γ' 相尺寸较大, 在界面不能完全溶解, 则这种 γ' 相就会钉扎住移动的界面。

γ' 相的大量存在对再结晶过程影响的另一个方面是, 再结晶速率受晶粒界面前沿 γ' 相的溶解速率控制。在 γ' 相溶解温度以下, 由于组织中存在不同尺寸分布的 γ' 相, 它的稳定性取决于温度; 随着温度的升高, γ' 相溶解速率加快, 稳定性减小, 对界

面移动的阻力也减小。因此, 再结晶激活能减小时, 再结晶速率加快。只有当温度升至 γ' 相完全溶解温度以上时, 此时的激活能才表现为再结晶过程的真实激活能。由此可见, 由于 γ' 相溶解速率决定了再结晶速率, 因此激活能必然受制于温度, 温度上升, 激活能下降, 再结晶速率加快。实验中被用来表示单一激活能过程的 Arrhenius 方程所测得的 Q 值可以由两部分组成, 一部分为 Ni 合金的激活能 Q_{Ni} , 另一部分为摆脱 γ' 相钉扎作用所需激活能 $Q_{\gamma'}$, 即 $Q = Q_{\text{Ni}} + Q_{\gamma'}$ 。

4 结论

1) FGH95 高温合金在 γ' 相完全溶解温度以上再结晶时, 形核以应变诱发晶界迁移的弓突方式进行, 而在 γ' 相大量存在的温度范围内再结晶则是以亚晶粗化形核机制进行。

2) FGH95 高温合金再结晶速率受 γ' 相的溶解速率控制, 随再结晶温度的升高, γ' 相分解速率加快, 再结晶激活能减小, 再结晶速率加快, γ' 相溶解后可以以同步或不同步方式重新析出。

REFERENCES

- [1] 国为民, 吴剑涛, 张凤戈, 等. FGH95 粉末高温合金非金属夹杂物的研究[J]. 材料工程, 2002(增刊): 54 - 57.
GUO Wei-min, WU Jian-tao, ZHANG Feng-ge, et al. Study of non-metallic inclusions in PM superalloy FGH95[J]. Journal of Materials Engineering, 2002(Suppl.): 54 - 57.
- [2] 张义文. 俄罗斯粉末冶金高温合金[J]. 钢铁研究学报, 1998, 10(3): 74 - 76.
ZHANG Yi-wen. Powder metallurgy in Russia[J]. Journal of Iron and Steel Research, 1998, 10(3): 74 - 76.
- [3] 陈焕铭, 胡本英, 余泉茂, 等. 等离子旋转电极雾化熔滴的热量传输与凝固行为[J]. 中国有色金属学报, 2002, 12(5): 884 - 890.
CHEN Huan-ming, HU Ben-fu, YU Quan-mao, et al. Heat transfer and solidification behavior of droplets during plasma rotating electrode processing[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2002, 12(5): 884 - 890.
- [4] 陈焕铭, 胡本英, 李慧英, 等. 等离子旋转电极雾化 FGH95 高温合金粉末的预热处理[J]. 中国有色金属学报, 2003, 13(3): 554 - 559.
CHEN Huan-ming, HU Ben-fu, LI Hui-ying, et al. Pre-heat treatment of PREP FGH95 superalloy powders[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2003, 13(3): 554 - 559.

- [5] MAO Jian, CHANG Ke-min, YANG Wan-hong. Cooling precipitation and strengthening study in powder metallurgy superalloy Rene88DT[J]. Materials Science and Engineering A, 2002, A332: 318-329.
- [6] 张莹, 李世魁, 陈生大. 用等离子旋转电极法制取镍基高温合金粉末[J]. 粉末冶金工业, 1998, 8(6): 17-22.
- ZHANG Ying, LI Shi-kui, CHEN Sheng-da. Production of nickel-based superalloy powder by the plasma electrode process[J]. Powder Metallurgy Industry, 1998, 8(6): 17-22.
- [7] HU Ben-fu, ZHANG Shou-hua. Carbide phases in Ni-based P/M superalloy[J]. Journal of University of Science & Technology Beijing, 1994, 1(1): 1-7.
- [8] 何承群, 胡本芙, 国为民, 等. 等离子体旋转自耗电极端部熔池中的流场分析[J]. 金属学报, 2000, 36(2): 187-190.
- HE Cheng-qun, HU Ben-fu, GUO Wei-min, et al. Analysis on fluid field in the end of plasma rotating electrode[J]. Acta Metallurgica Sinica, 2000, 36(2): 187-190.
- [9] CHEN Huai-ming, HU Ben-fu, ZHANG Yi-wen, et al. The influence of processing parameters on granularity distribution of superalloy powders during PREP[J]. Journal of Materials Science and Technology, 2003, 19(6): 587-590.
- [10] 国为民, 张凤戈, 冯涤, 等. 不同生产工艺对 FGH95 粉末高温合金组织和性能的影响[J]. 粉末冶金工业, 2001, 11(5): 7-12.
- GUO Wei-min, ZHANG Feng-ge, FENG Di, et al. Effects of producing process on microstructure and properties of FGH95 P/M superalloy[J]. Powder Metallurgy Industry, 2001, 11(5): 7-12.
- [11] 余永宁. 金属学原理[M]. 北京: 冶金工业出版社, 2000. 451-453.
- YU Yong-ning. The Theory of Metallography[M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2000. 451-453.
- [12] Gessinger G H, Bomford M J. Powder metallurgy of superalloys[J]. International Metallurgical Reviews, 1974, 19: 53-73.
- [13] Hu H. Recovery Recrystallization of Metals[M]. New York: Interscience Publishing, 1963. 311-326.
- [14] Bee J V, Jones A R, Howell P R. The development of the necklace structure in a powder-produced nickel-base superalloy[J]. Journal of Materials Science, 1980, 15: 337-344.
- [15] Menzies R G, Daves G J, Edington J W. Microstructural changes during recrystallization of powder-consolidated nickel-base superalloy IN-100[J]. Metal Science, 1981, 5: 217-223.

(编辑 何学锋)