

晶体取向对 DD8 镍基高温合金定向凝固 的界面稳定性的影响^①

刘志义

(石油大学(华东)机械系, 东营 257062)

傅恒志

(西北工业大学材料科学与工程学院, 西安 710072)

摘 要 研究了晶体取向对 DD8 镍基高温合金定向凝固的界面稳定性的影响, 同时考察了抽拉方式对该晶体取向效应的作用。结果表明, $\langle 100 \rangle$ 偏离热流方向的晶粒在平界面区比 $\langle 100 \rangle$ 与热流方向一致的晶粒的界面稳定性大, 而在胞枝转变区则相反; 以平界面速度、胞晶速度和枝晶速度连续抽拉及逆过程的速度递减抽拉对以上结果的影响一致。研究表明, 晶体取向对凝固界面稳定性的影响是由于液相原子在不同晶面的结晶面上沉积时形成的原子键不同, 影响了系统自由能的降低, 影响了液相原子迁移至固相界面上的有效跳动频率和固相原子迁移至液相中的有效跳动频率, 影响了液固相界面前沿的溶质分布和成分过冷所致。

关键词 高温合金 定向凝固 晶体取向 界面

中图法分类号 TG249

一般认为^[5], 枝晶的生长方向由晶体取向决定, 凝固界面前沿的形态由凝固参数, 如: 温度梯度及抽拉速度确定。但 M A D^[6] 对镍基高温合金 IN939 的实验表明, 晶体取向影响凝固界面前沿的形态, 其观察到的两个主要现象是: (1) $\langle 100 \rangle$ 偏离热流方向 45° 的晶粒在平界面区比 $\langle 100 \rangle$ 与热流方向一致的晶粒具有更大的稳定性; (2) 在胞枝转变区, $\langle 100 \rangle$ 偏离热流方向 45° 的稳定性较低, 而 $\langle 100 \rangle$ 与热流一致的晶粒的稳定性较高。虽然 M A D 观察到了这两个重要的现象, 但未能在理论上对这两个现象予以解释。根据成分过冷理论^[7], 作者认为在凝固条件如温度梯度、抽拉速度相同的条件下, 晶体取向对界面稳定性及形态构成的影响不管其通过何种方式, 从本质上说, 是影响了液相界面前沿的溶质分布, 从而影响到界面稳定性及其形态。为了证实这些想法, 作者以镍基高温合金 DD8 为实验材料, 将具有轴向方向 $\langle 100 \rangle$ 和 $\langle 110 \rangle$ 的两个半圆柱籽晶合并成一个

籽晶, 以平界面速度、胞晶速度和枝晶速度连续抽拉一个试样, 每个速度段稳定抽拉 7 mm 以上, 并用另一试样实施逆过程抽拉, 以充分证实作者的设想。

1 实验材料及步骤

实验用 DD8 镍基高温合金的化学成分是: 16% Cr, 8.5% Co, 6.0% W, 3.9% Al, 3.8% Ti, 4.0% Ta, < 0.01C, 余量 Ni。将 DD8 镍基高温合金加工成 $d6.5 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$ 棒, 以做试验母合金。将采用选晶法制备的大块 DD8 单晶经 X 射线衍射仪测定晶体取向后, 用线切割法将其切割成三组不同晶体取向、尺寸为 $d6.9 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$ 的半圆柱体籽晶。三组半圆柱体籽晶的晶体取向如表 1 所示。将第 1 组与第 3 组半圆柱体籽晶合并成一个籽晶与合金棒一起装入 $d7 \text{ mm}$ 的刚玉管中, 在自制的高温梯度 LMC 真空定向凝固装置上加热至 1548°C

① 航空基金资助项目 94G53053

收稿日期: 1996-09-25; 修回日期: 1997-09-22

刘志义, 男, 35 岁, 副教授, 博士

保温 15 min。在 $G = 250 \text{ K/cm}$ 的条件下,以平界面速度($0.9 \mu\text{m/s}$)、胞晶速度($2.22 \mu\text{m/s}$)和枝晶速度($47.6 \mu\text{m/s}$)依次递增连续抽拉,每一速度区间的稳定抽拉距离在 7 mm 以上。在相同条件下,将表 1 中的第 2 组和第 3 组半圆柱体籽晶合并成一个籽晶,以上述抽拉过程的逆过程连续抽拉。用线切割法沿试样的纵向切开,磨制金相试样后,在光学金相显微镜上观察组织形态随抽拉速度的变化,尤其注意观察过渡区间的组织形态变化。

表 1 三组半圆柱体籽晶的晶体取向

Table 1 Crystal Orientation of three groups of semi-column seed			
	1	2	3
Axle	$\langle 100 \rangle$	$\langle 100 \rangle$	$\langle 110 \rangle$
Normal to a rectangular plane	$\langle 110 \rangle$	$\langle 100 \rangle$	$\langle 110 \rangle$

2 实验结果

金相显微观察表明, $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒与 $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒在平界面进入胞晶区时 $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒表现得较为稳定,而 $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒中的胞晶首先在某一处由于扰动

而形成,如图 1 所示的黑色部分是 $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒从平界面生长至胞晶生长的过渡区域。与这一过程相反, $\langle 100 \rangle \times \langle 100 \rangle$ 晶粒与 $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒由胞晶进入平界面的情况如图 2 所示。在由胞晶区进入枝晶区时 $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒较不稳定,先进入枝晶区,如图 3 所示。而与之相逆的过程,即:由枝晶进入胞晶区表现出与图 2 相同的倾向,如图 4 所示。

3 分析与讨论

3.1 平胞转变及其逆过程

$\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒与 $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒的耦合定向凝固实验表明,在 $G = 250 \text{ K/cm}$ 的条件下,抽拉速度从 $0.9 \mu\text{m/s}$ 增大至 $2.2 \mu\text{m/s}$,择优取向 $\langle 100 \rangle$ 与热流方向一致的 $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒已由平界面区进入胞晶区,而择优取向与热流方向呈 45° 角的 $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒仍然处于平界面区,如图 1 的白色部分所示。这一结果与文献[6]的一致。而与此相逆的过程,即:在相同条件下,抽拉速度从 $2.22 \mu\text{m/s}$ 降至 $0.9 \mu\text{m/s}$ 时,择优取向 $\langle 100 \rangle$ 与热流方向一致的 $\langle 100 \rangle \times \langle 100 \rangle$ 晶粒刚从胞晶区进入平界

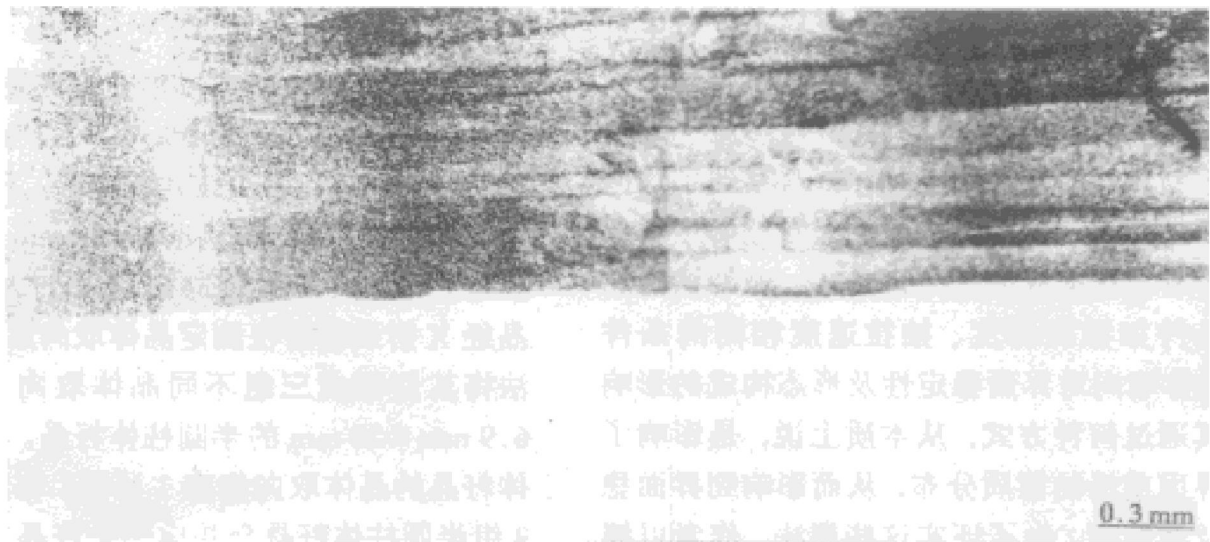


图 1 平界面进入胞晶的组织(黑: $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒;白: $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒)

Fig. 1 Microstructure of transition from planes to cells

(Black region: $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ grain; White region: $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ grain)

面区, 而择优取向与热流方向呈 45° 角的 $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒早已进入平界面区了, 如图 2 的右下角黑色区域所示。

图 1 和图 2 表明了一个一致的结果: 择优取向 $\langle 100 \rangle$ 偏离热流方向 45° 角后, 使晶粒具有更大的平界面稳定性。我们知道, 成分过冷理

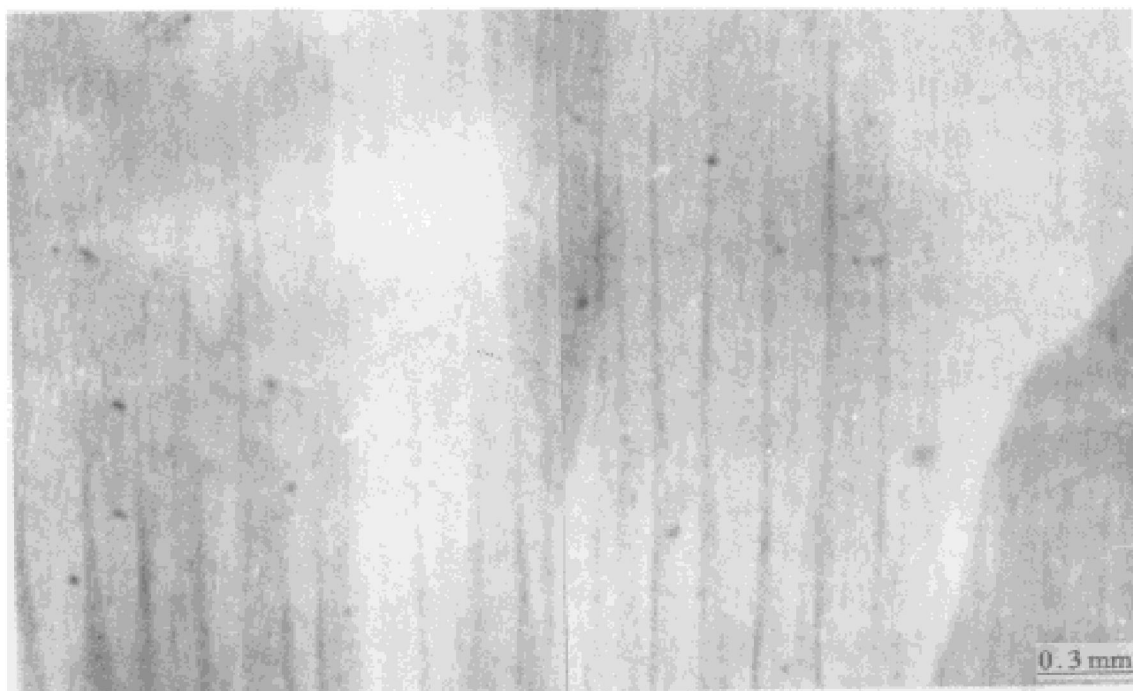


图 2 胞晶进入平界面的组织(左: $\langle 100 \rangle \times \langle 100 \rangle$ 晶粒; 右: $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒)

Fig. 2 Microstructure of transition from cells to planes

(Left region: $\langle 100 \rangle \times \langle 100 \rangle$ grain; Right region: $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ grain)

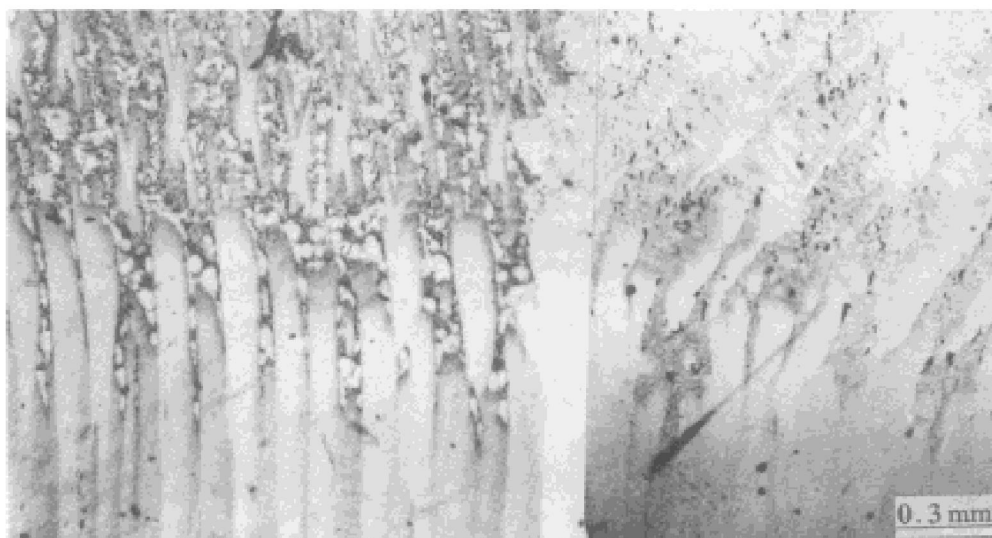


图 3 胞晶进入枝晶的组织(左: $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒; 右: $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒)

Fig. 3 Microstructure of transition from cells to dendrites

(Left region: $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ grain; Right region: $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ grain)

论^[7]阐述了平界面稳定性的一个判据,根据这一理论,平界面是否稳定取决于液固界面前沿的成分过冷,而当择优取向和偏离热流方向不同角度时,与液固界面平行的晶面不同,也就是参与合金结晶的晶面不一样,我们知道,金属凝固时,液固界面处存在两个相逆的过程,一是液相原子迁移至固相界面的凝固过程;二是固相原子迁移至液相熔化过程。这两个过程受很多因素影响,结晶晶面是影响因素之一,结晶面不同,则液固界面处与合金结晶的晶面不一样,而原子在液固界面沉积时可形成的原子键数不同影响原子从液相沉积至固相和从固相回熔至液相的有效跳动频率,从而影响液固界面前沿的溶质分布和成分过冷。在图1中, $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒的结晶面是(100),而 $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒的结晶面是(110)。当结晶面为(100)时,由于抽拉速度低,液固界面过渡层薄,在这里只考虑一个原子层的过渡层,过渡层只有50%的固相原子。液相原子沉积至固相可形成6个原子键,下层4个及同层2个,当结晶面为(110)时可形成6个原子键,下层1个,次下层4个,同层1个。虽然它们形成的

原子键数相同,但前者的液相原子沉积时与下层原子只能形成4个原子键,而后者能形成5个原子键。很显然,同层形成的原子键具有随机性,与下层形成的原子键,具有高的可靠性,这样,后者形成的原子键对从液相沉积下来的原子具有更强的牵制作用,阻止该原子跳回液相,提高了原子从液相沉积至固相的有效频率,改善了液相固相界面前沿的溶质分布,降低了成分过冷,使平界面保持稳定,反之亦然。图2中出现的情形表明,界面稳定性只与抽拉速度的绝对值大小有关,而与抽拉速度由小到大或由大到小的变化无关。

3.2 胞枝转变及其逆过程

在相同的温度梯度下($G = 250 \text{ K/cm}$),抽拉速度从 $2.2 \mu\text{m/s}$ 提高至 $47.6 \mu\text{m/s}$ 时, $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒的组织由胞晶转变为枝晶,而 $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒由平界面转变为枝晶,如图3所示。从图3还可以看出, $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒比 $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒先进入枝晶。与此相逆过程: $G = 250 \text{ K/cm}$,抽拉速度从 $47.6 \mu\text{m/s}$ 降至 $2.22 \mu\text{m/s}$ 时,还是 $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒表现出了较强的枝晶稳定性,如图4所示。

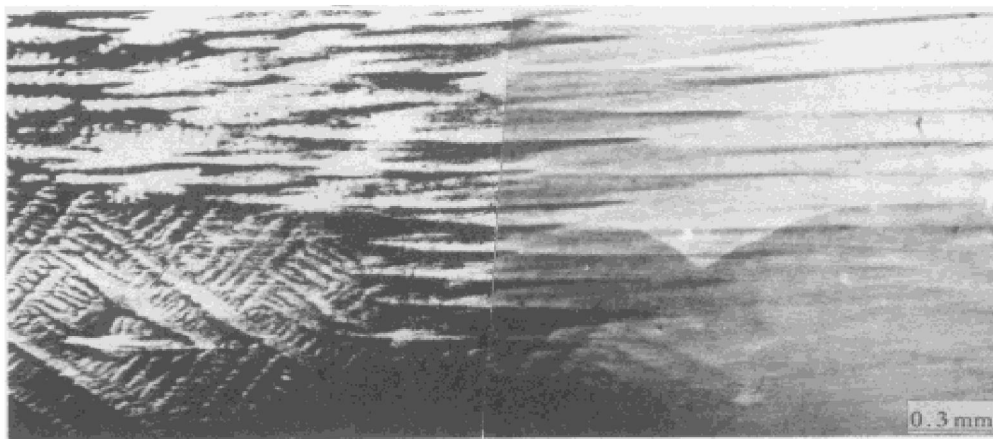


图4 枝晶进入胞晶的组织(上: $\langle 100 \rangle \times \langle 100 \rangle$ 晶粒;下: $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒)

Fig. 4 Microstructure of transition from dendrites to cells

(Upper region: $\langle 100 \rangle \times \langle 100 \rangle$ grain; Bottom region: $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ grain)

众所周知, 只有当液固界面前沿的温度梯度为负值时, 才能生长出枝晶, 但在我们的实验条件下, 外界所给予的温度梯度是确定的, 液固界面要生长出枝晶只有依靠液固界面前沿的成分过冷。而成分过冷的建立是由液固界面前沿中液相的溶质分布决定的, 在其他凝固参数相同的条件下决定溶质分布的因素只有晶体取向, 即: 参与液相结晶的晶面。文献[8, 9]的研究表明, 当凝固速度增加时, 液固界面的过渡层增厚。在这种情形下, (100) 晶面结晶时液相原子沉积能形成 4 个键, 下层 2 个; 同层 2 个, 而(110) 晶面结晶时只能形成 3.5 个键, 下层 0.5 个; 次下层 2 个; 同层 1 个。由于形成的原子键数目不同, 使系统自由能降低的程度不同, 也构成了不同的对沉积原子的牵制作用。(110) 晶面结晶时形成的原子键少, 降低了液相原子迁移至固相界面上的有效跳动频率, 而提高了液固界面前沿溶质原子的堆积程度, 增大成分过冷, 从而导致 $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒先进入枝晶区。而(100) 晶面结晶时能形成较多的原子键, 提高液相原子迁移至固相界面上的有效频率, 降低液固相界面前沿溶质原子的堆积程度和成分过冷, 使 $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒后进入枝晶区。其逆过程也是同样的道理。

从图 3 中还可以看到, $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒在进入枝晶区时的先后次序不一样, 远离两晶粒界面的部分先进入枝晶, 靠近晶粒界面的部分后进入枝晶区, 并且生长出较长的胞晶过渡组织; $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒的情况也是如此, 远离晶粒界面的部分具有较高的胞晶组织稳定性, 而靠近晶粒界面的部分先进入胞晶区时, $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒中靠近晶粒界面的部分先进入胞晶, 这些现象表明, 液固界面前沿液相中横向存在呈梯次变化的溶质分布。在 $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 与 $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒的耦合生长中, $\langle 100 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒中远离晶粒界面一侧的溶质堆积程度最低, 即成分过冷最小, 且越靠近晶粒界面, 成分过冷逐渐增大; 而 $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒中远离晶粒界面一侧的溶质堆积程度最高, 即成分过冷最大, 且越靠近晶粒界面成分

过冷越来越小。造成这种情况的原因在于液固界面前沿液相中溶质原子发生横向扩散, 由高浓度处扩散至低浓度处, 从而导致凝固时合金呈梯次先后进入枝晶区。图 4 的 $\langle 110 \rangle \times \langle 110 \rangle$ 晶粒中靠近晶粒界面处先进入胞晶也是由于堆积的溶质原子扩散至相邻晶粒的液相中而降低该处液固界面前沿的成分过冷所致。在图 1 和图 2 中的由平界面进入胞晶或由胞晶进入平界面的过渡阶段, 由于溶质原子堆积程度低而不能明显地看到这种趋势。

因此, 可以认为, 晶体取向对凝固界面稳定性的影响是由于液相原子在不同晶面的结晶面上沉积时形成的原子键不同, 影响了系统自由能的降低, 影响了液相原子迁移至固相界面上的有效跳动频率和固相原子迁移至液相中的有效跳动频率, 影响了液固界面前沿的溶质分布和成分过冷所致。

4 结论

晶体取向通过影响液相原子沉积所形成原子键数和该过程的系统自由能降低, 而影响液相原子迁移的有效跳动频率, 从而影响液固界面前沿溶质分布和成分过冷, 最后影响界面稳定性, 同时这一过程造成了不同晶体取向的界面前沿溶质堆积程度不同, 而导致界面前沿液相中发生溶质的横向扩散, 这造成了沿界面呈梯次变化的成分过冷, 而使界面前沿各处按梯次先后进入枝晶或由枝晶进入胞晶。

REFERENCES

- 1 Rutter J W and Chalmers B. Can J Phys, 1953, 31: 15.
- 2 Tiller W A, Jackson K A, Rutter J W *et al.* Acta Metall, 1953, 1: 428.
- 3 Flemings M C. In: Solidification Processing. New York: MC Graw Hill, 1974: 175.
- 4 Kurz W and Fisher D J. Fundamentals of Solidification. Trans Tech Publications, 1984: 324.

- 5 Morris L R and Winegard W C. J Crystal Growth, 1969, 6: 61.
- 6 Ma D, Axmann W and Sahm P R. In: Solidification Processing, 1987, London: The Institute of Metals, 1988: 160.
- 7 Wenberg F and Chalmers B. Can J Phys, 1952, 30: 488.
- 8 Eden M. In: Yockey H P ed. Symposium on Information Theory in Biology. New York: Pergamon Press, 1958, 331.
- 9 Krug J and Spon H. In: Godreche C ed. Solids Far from Equilibrium. Cambridge: Cambridge University Press. 1992: 109.

EFFECTS OF CRYSTAL ORIENTATION ON INTERFACIAL STABILITY IN DIRECTIONAL SOLIDIFICATION OF DD8 NICKEL BASED HIGH TEMPERATURE ALLOY

Liu Zhiyi

Mechanical Department,

Petroleum University (East China), Dongying 257062, P. R. China

Fu Hengzhi

School of Materials Science and Engineering, Northwestern Polytechnical University

Xi'an 710072, P. R. China

ABSTRACT The effects of crystal orientation on the interfacial stability in the directional solidification of DD8 nickel based high temperature alloy have been investigated, and meanwhile the effect of withdrawing velocity on the function of crystal orientation in directional solidification has also been studied. Results indicated that in plane-cell transformation region, the interface of the grain whose $\langle 100 \rangle$ crystal orientation is 45° away from heat flow orientation is stabler than that whose $\langle 100 \rangle$ crystal orientation is in according with heat flow, however, in cell-dendrite transformation region, the results turned out contrarily; the effects of continuous withdrawing process from plane region to cell region and dendrite region on the above results are as same as that of the opposite process from dendrite region to cell region and plane region. It was indicated that the effect of crystal orientation on interfacial stability is because of the different atomic bond number formed in the solidification of liquid atoms on different crystal planes, which affects the decrease of system energy, and affects the effective jump frequency of liquid atom migration to solid interface and solid atom migration to liquid, and finally affects the solute distribution in the front of liquid-solid interface and composition undercooling.

Key words high temperature alloy directional solidification crystal orientation interface

(编辑 黄劲松)