

籽晶法制备单晶高温合金杂晶缺陷控制技术研究进展

高雪峰¹, 王亮¹, 白炜琛¹, 林子博², 赵遇成²,
张朝威¹, 杨彦红¹, 孟杰¹, 周亦甯¹

(1. 中国科学院金属研究所, 辽宁沈阳 1100161; 2. 中国航发动力股份有限公司, 陕西西安 710021)

摘要: 籽晶法制备单晶高温合金技术的提出, 解决了单晶合金晶体定向生长过程中取向偏离的关键问题, 能够利用籽晶取向精确控制所需零件的任意晶体取向, 因此受到了大量国内外研究学者的关注, 对籽晶法制备单晶高温合金的杂晶缺陷形成机理及控制、制备工艺优化等开展了大量研究。本文基于国内外研究现状, 梳理了近年来籽晶法制备单晶高温合金数值模拟与试验方面的研究情况。根据定向凝固特征, 综述了籽晶外延生长过程杂晶缺陷形成机理, 同时进一步从材料特性及凝固工艺等方面实现对缺陷的控制, 并展望了未来籽晶法制备单晶高温合金的发展趋势。

关键词: 籽晶制备技术; 单晶高温合金; 杂晶缺陷; 凝固工艺; 数值模拟

作者简介:

高雪峰(1994-), 女, 助理研究员, 博士, 研究方向为单晶高温合金组织调控及缺陷控制技术。电话: 18240355836, E-mail: gaoxuefenghit@163.com

通信作者:

杨彦红, 男, 博士, 副研究员。电话: 020-39322209, E-mail: yhyang@imr.ac.cn

中图分类号: TG132.3+2

文献标识码: A

文章编号: 1001-4977(2025)07-0895-10

基金项目:

国家资助博士后研究人员计划项目(GZC20232739); 国家重点研发计划(2019YFA0705300); 国家科技重大专项(Y2019-VII-011-0151)。

收稿日期:

2024-06-07 收到初稿,
2024-08-23 收到修订稿。

单晶高温合金的发展水平代表着国家尖端制造业发展水平。从20世纪80年代起单晶高温合金便进入蓬勃发展的阶段, 随着其优异的高温综合性能被不断探索, 应用越来越广。单晶高温合金消除了服役过程中易产生裂纹的晶界, 保证了晶体的完整性, 大幅度提高了合金的高温性能和使用寿命。单晶高温合金目前被广泛用于航空发动机、火箭发动机和工业燃气轮机的核心热端部件-涡轮叶片的制造。涡轮叶片起着将燃气的燃烧能转化为机械能的关键作用, 其承温能力是提升发动机性能、效率、可靠性的关键技术指标^[1]。为保证涡轮叶片能够在极端恶劣环境下长期稳定工作, 需采用高效的冷却技术以降低单晶涡轮叶片承受的实际温度, 要求叶片结构越来越复杂, 单晶涡轮叶片结构发展趋势如图1所示^[2]。因此, 近些年, 各校企科研人员大力投入研究单晶高温合金材料设计和工艺制备方法, 改善单晶叶片的服役性能及成产率, 为国防科技及航空航天事业提供理论基础和应用价值。

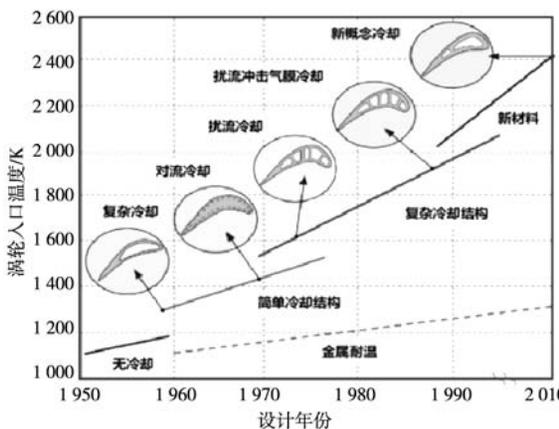


图1 核心热端部件服役环境及冷却结构

Fig. 1 Service environment and cooling structure of core hot end components

目前,工业上广泛采用的单晶高温合金制备技术主要是定向凝固熔模铸造技术,根据单晶取向控制原理的差异又可分为选晶法和籽晶法两种,其制备方法如图2所示^[3-4]。选晶法是利用特定的几何通道将择优生长获得的接近[001]取向的柱状晶组织筛选出其中一个晶粒^[5-6],该晶粒随着凝固的进行长大成单晶铸件。选晶法工艺较为简单,操作方便,但其制备的单晶铸件取向偏离难以精确控制,一次取向通常控制在偏离轴向15°以内,完全不能控制二次取向。然而,高温合金的力学性能具有各向异性,随着晶体取向偏离角的增加,单晶涡轮叶片寿命分散性变大,西北工业大学岳珠峰团队^[7]建立了蠕变损伤模型,提出叶片的晶体取向轴向偏角越大,蠕变寿命分散性变大,15°的偏角,寿命偏差6倍。因此,精确控制晶体取向是进一步提高先进单晶涡轮叶片服役寿命的关键技术。籽晶法^[8-10]是选取一个特定取向的单晶材料作为籽晶,放置于型腔底部,待浇注后使其部分熔化形成回熔区,随着定向抽拉,通过外延方法使母合金熔体原子以回熔区枝晶为基底生长,晶体取向完全受籽晶取向的控制,能够利用籽晶取向精确制备铸件的任意晶体取向。因此,籽晶法在工业制备单晶涡轮叶片中占据重要地位。

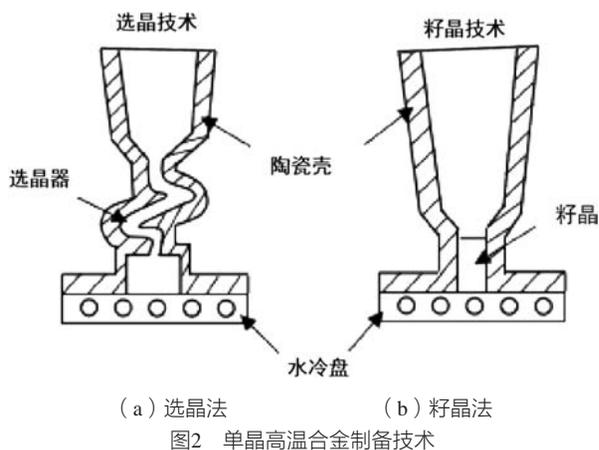


图2 单晶高温合金制备技术
Fig. 2 Preparation technology of single crystal superalloys

籽晶法虽然能够精确控制晶体的三维取向,但制备过程中回熔转变区是极易出现缺陷的特殊区域,包括一些杂晶等冶金缺陷,破坏了单晶组织的完整性,导致单晶叶片的合格率降低,限制了籽晶法的广泛应用^[11-14]。抑制杂晶的形成及长大,消除晶体取向偏差是单晶叶片制备过程中亟待解决的问题。针对这些问题,国内外已经开展了大量籽晶法制备单晶高温合金的缺陷控制技术探索,包括材料的特性、凝固过程的工艺参数对单晶完整性的影响^[15-18]。根据目前国内外对籽晶法制备单晶高温合金的研究现状,本文综述了籽晶法制备单晶高温合金缺陷形成及控制技术,分析了

凝固制备技术及数值模拟技术在籽晶法制备过程中的应用,并对存在的问题和后续发展进行了陈述和展望。

1 籽晶法制备单晶高温合金的杂晶形成机理及控制

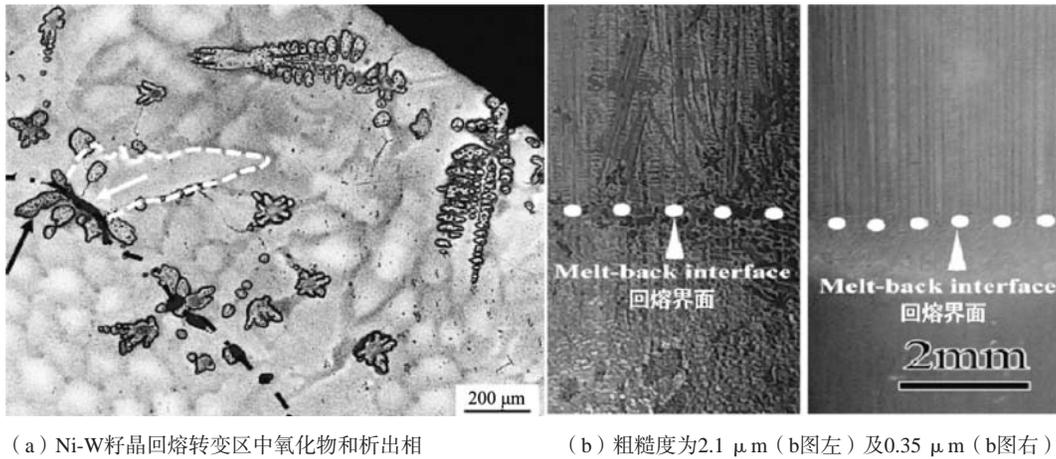
通过籽晶法控制叶片初始取向,往往会产生杂晶的形核和生长,抑制初始晶粒的择优生长,导致单晶生长失败。回熔区的杂晶一直是限制籽晶法制备单晶高温合金广泛应用的关键因素。因此,1978年,Terkelsen^[19]首次提出籽晶的方法以来,人们一直致力于研究籽晶回熔区杂晶的形成机制,对其形核及生长进行控制,提高单晶成品率。然而,Stanford等人^[16, 20]研究表明,大量杂晶在籽晶表面形核,其特征包括:①在抽拉的初始阶段,杂晶在小于3 mm的凝固距离之内发生形核,在该距离之后,没有观察到进一步的形核;②杂晶往往在金属接触型壳的铸件周边形核。根据定向凝固过程中杂晶形成机理,主要有三种可能,一种是异质形核,在冷却下枝晶尖端凝固前沿晶粒的非均匀成核,杂质、氮化物颗粒在凝固前沿导致较小的过冷度下形核,通常出现在凝固的开始阶段、试样的边缘和高拉速的试样中;第二种存在溶质过冷的枝晶尖端前晶粒的非均匀形核,在籽晶回熔区由于对流对糊状区中的二次枝晶的挤压作用将枝晶臂的熔断,这些碎片被运输到枝晶尖端前沿,以使冷却下受到溶质影响的液相中的杂晶成核;第三种为当在型壳内的籽晶顶部引入合金熔体时,熔体在型壳表面形核,将熔融合金浇注到较冷的型壳中导致过冷晶粒在型壳上快速成核。在定向凝固的早期阶段,其中一些晶粒可以在一定时间内外延生长,进入铸件中,产生杂晶,增加废品率。

1.1 杂晶异质形核机制及其控制技术

Guo等人^[21]对多种异质籽晶回熔区杂晶形成机制进行研究,在高温合金籽晶中发现Al元素会在其表面形成氧化物,在母合金浇注过程中发生破碎,当凝固至回熔区初始界面附近,部分氧化膜阻挡枝晶外延生长,导致凝固界面失稳,产生疏松和裂纹,裂纹贯穿籽晶,导致其脱落,由于氧化膜非均匀形核以及裂纹扩展诱发杂晶产生。而对于一些低偏析异质籽晶,如Ni-W二元合金等,回熔区的氧化膜主要是由石墨蒸气与型壳材料的反应沉积至籽晶表面的 Al_2O_3 和 SiO_2 组成,这些夹杂物、氧化物及一些含W相的析出导致杂晶非均匀形核。针对形成原因,研究表明,可通过改良浇注系统消除型壳夹杂物;增加籽晶高度导致回熔区增加,加强溶质对流,分散氧化膜。国外Aveson团队^[22]研究籽晶外延生长单晶叶片过程中,认为条纹晶

缺陷的起源与回熔界面位置无关，而是与枝晶变形有关。Hu等人^[23]发现型壳的粗糙度影响杂晶的形成，如图3所示，由于 γ '相的形成元素偏聚至边缘后在粗糙的型壳表面异质形核，诱导边缘杂晶的形成，适当降低型壳粗糙度有利于抑制杂晶的形成。金属所孟杰团队^[24]通过研究粉料粒度优化的陶瓷型壳料浆性能制备了某型号DD5单晶导向叶片，发现型壳表面粗糙度越

大，型壳表面粘砂情况越严重，降低铸件表面质量。北京航空材料研究院刘世忠团队^[25]制备了SRR99单晶高温合金叶片，在其表面发现了一种亮白“枝晶”状缺陷，进一步研究表明叶片定向凝固过程中发生了型壳反应，导致Si进入表层合金液中，因此，控制型壳的表面质量对抑制缺陷产生尤为重要。



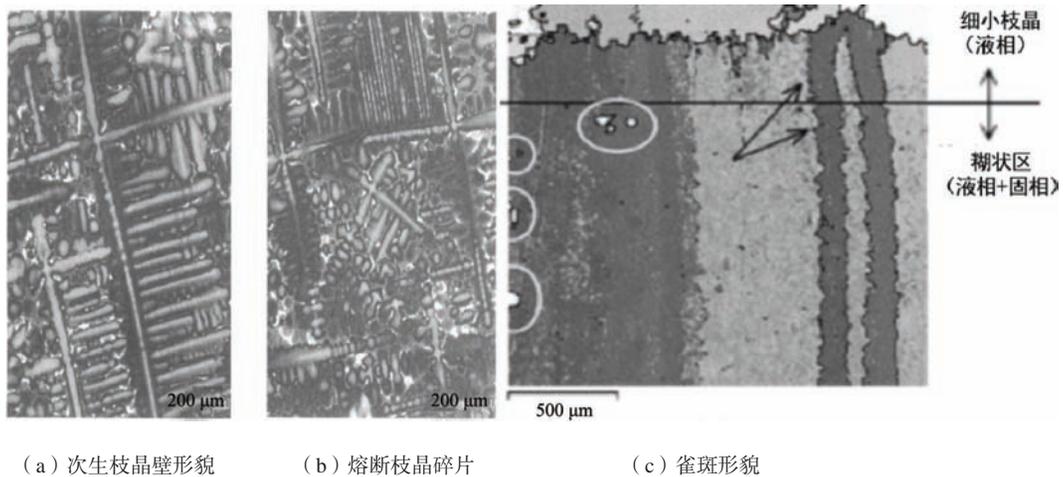
(a) Ni-W籽晶回熔转变区中氧化物和析出相 (b) 粗糙度为2.1 μm (b图左)及0.35 μm (b图右)
图3 异质形核诱导杂晶形成机制的型壳表面附近籽晶回熔区杂晶形貌

Fig. 3 The stray grain morphology of remelting zone of seed near the mold shell surface under heterogeneous nucleation induced stray grain formation mechanism

1.2 枝晶熔断诱导杂晶形核机制及其控制技术

Stanford等人^[16]详细调查了CMSX-4合金部分重熔籽晶中组织演变，以评估枝晶碎裂在单晶形成过程中的影响，研究表明，CMSX-4中的已凝固的枝晶比枝晶间液体密度高，因此任何破碎的晶体碎片都更有可能在熔体中下沉而不是上浮，如图4所示，这些晶粒的垂直团簇，是由于许多碎片穿过枝晶间液体掉落所致。Pollock等人^[26]研究高温合金在不同凝固工艺下的单晶制备过程中的缺陷形成，结果发现，杂晶的形成

对局部热和溶质环境非常敏感，随着频率的增加，形成了相同成分的孤立的、高度取向差的柱状晶粒，阻挡单晶凝固前沿的生长，一定条件下，熔断枝晶碎片并被传输到固液界面以上导致杂晶或雀斑等凝固缺陷出现。当枝晶碎片处于中等尺寸，且位于回熔界面对流通道口附近时，枝晶可能长大，进而阻碍籽晶的生长，因此，在初始抽拉阶段形成的局部溶质富集是回熔区杂晶形成的关键因素^[27]。



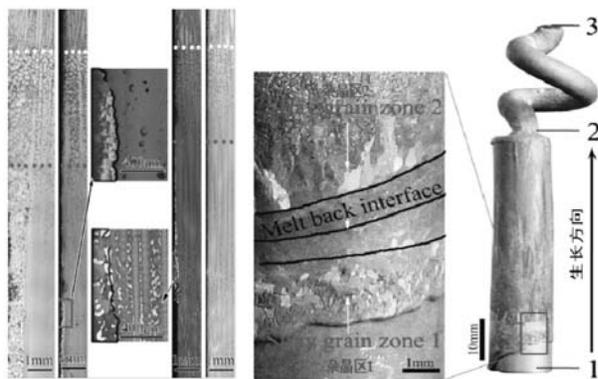
(a) 次生枝晶壁形貌 (b) 熔断枝晶碎片 (c) 雀斑形貌

图4 枝晶壁形貌与杂晶/雀斑的形核

Fig. 4 Dendritic arm morphology and nucleation of stray grains/freckles

1.3 激冷诱导杂晶形核机制及其控制技术

李等人^[28]发现在籽晶回熔区附近杂晶更易在两个区域形成,如图5(a)所示,杂晶在回熔区界面下方方形核,并且在籽晶和型壳壁之间的间隙处具有一束等轴晶粒的特征。这是因为型壳温度低,在加热过程中为籽晶区重熔液相提供了形核位置,这些新形成的晶粒由于受到籽晶的枝晶阻碍,没有进一步生长到回熔区;在回熔区上方的几毫米处杂晶形成,这是由于凝固开始时,熔体靠近型壳产生激冷作用,其凝固前沿温度场快速变化,在籽晶熔化期间,液相等温线首先凸起,而由于型壳的热辐射冷却,随后变成凹形,这使得回熔区边缘成为过冷区域,如果实现了形核过冷,就会在该区域形成杂晶,这些新形成的杂晶会通过与原始籽晶竞争空间和成分而向上生长。由于型壳激冷诱导杂晶的形核及长大,因此型壳与籽晶的距离是控制杂晶的关键因素^[23],如图5(b)所示,型壳与籽晶间的过冷间隙导致熔体在籽晶边缘回熔界面处杂晶形核,间隙为0.896 mm,在未熔化的籽晶表面的回熔区界面下方形成了大量的杂晶,当间隙减小到0.186 mm时,在籽晶的固相等温线以下观察到一定量的杂晶,进一步将间隙减小到接近0,在回熔区界面下方的籽晶周围杂晶的形核被完全抑制。因此,适当降低籽晶和型壳内表面之间间隙可控制激冷诱导杂晶的形成。



(a) 回熔区附近杂晶形核位置 (b) 籽晶边缘的纵向微观结构

图5 籽晶生长过程中杂晶形成微观组织

Fig. 5 Microstructures formed by stray grains during seed crystal growth process

2 籽晶法制备单晶高温合金的凝固技术

籽晶外延生长过程中杂晶等缺陷的形成与控制技术是一个复杂的凝固过程,涉及籽晶回熔区晶粒形核、外延生长过程的晶粒生长、凝固界面的组织演变等繁多因素,如图6所示^[29]。因此,凝固技术的提高是控制籽晶回熔区杂晶形核及择优晶粒与非择优晶粒竞

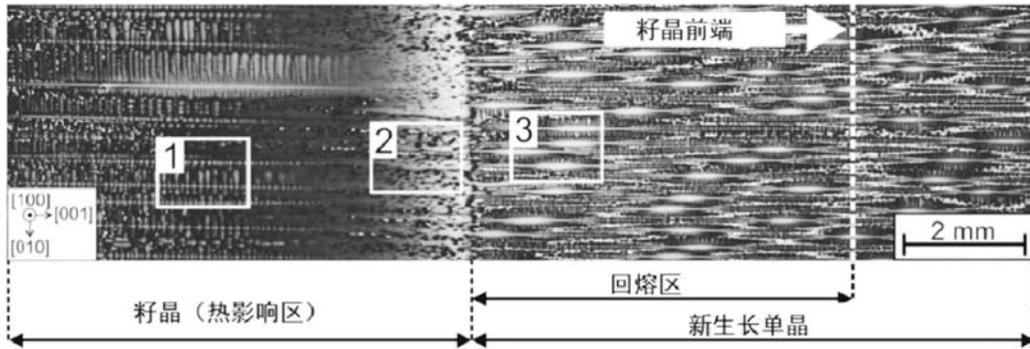
争生长的关键。研究发现,优化凝固工艺对单晶铸件的成品率具有显著影响,籽晶的晶体取向与杂晶的竞争生长、籽晶与母合金的成分特性、凝固工艺参数等都会影响界面处的凝固组织和单晶铸件的质量。

2.1 晶体取向

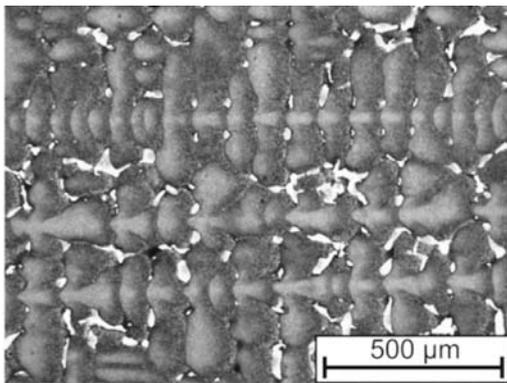
籽晶回熔界面周围往往会出现大量随机形核的杂晶,杂晶在凝固过程中是否能竞争生长淘汰,与籽晶的枝晶取向密切相关。国内外学者研究了取向不同的籽晶与杂晶的竞争关系,控制形核杂晶被淘汰,获得完整的单晶铸件。Zhao等人^[30]研究了籽晶取向与杂晶形成的关系,结果发现,当籽晶取向为轴向时,杂晶形成于籽晶边缘,为取向随机的柱状晶;当籽晶为非轴向时,相对于型壳汇聚生长时,杂晶为等轴晶,较难形核且极易在竞争生长中被淘汰;当籽晶为非轴向时,相对于型壳发散生长时,杂晶为柱状晶,易形核且难以在竞争生长中被淘汰。张等人^[31]利用双籽晶实验研究了晶粒取向对晶粒竞争生长的影响,结果表明只有在一次取向不同的相邻晶粒间发生晶粒的竞争生长,相邻晶粒的二次取向不影响晶粒的竞争生长。为了进一步研究籽晶取向对单晶生长过程中杂晶的淘汰作用,玄等人^[32]选择了DZ417G为籽晶,研究不同取向的籽晶与杂晶的竞争生长关系,结果表明,杂晶的形核与籽晶中初始枝晶取向相关,若初始枝晶生长方向与轴向夹角较大时,就会有利于杂晶的形核,反之,会获得良好的单晶组织;在杂晶生长过程中,其取向与轴向方向的夹角大于初始晶粒同轴向方向的夹角时,杂晶就会在竞争生长过程中被淘汰,如图7所示。

2.2 籽晶与母合金成分

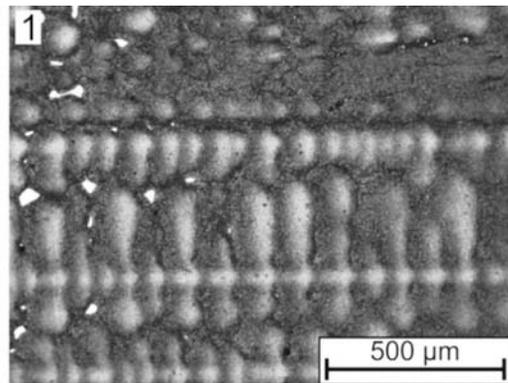
籽晶法制备单晶高温合金本质是利用籽晶的单晶取向向外延生长,因此,籽晶和母合金结构保证一致,合金成分可以不同。目前,常用的籽晶与母合金的成分主要有两类:一种是与单晶高温合金成分一致的同质籽晶,另一种是成分不同的异质籽晶,表1总结了国内外对籽晶成分研究。合理地选择籽晶成分对定向凝固界面演变、缺陷控制等均有影响,提高单晶铸件的成品率。马等人^[33]研究了同质籽晶材料制备单晶高温合金的组织演变及缺陷形成。结果表明,同质籽晶材料在制备单晶高温合金时,可得到稳定的回熔界面和良好的单晶生长取向。然而,有的牌号成分中,含有更多的易氧化的元素,如Ti、Al等元素,籽晶在型壳预热和保温过程中不可避免地形成氧化膜阻碍籽晶的回熔和外延生长,为了解决籽晶高温时氧化问题,国内外开发了抗氧化合金籽晶,异质籽晶制备方法受到大量研究者的关注^[11, 34-35]。研究结果表明,抗



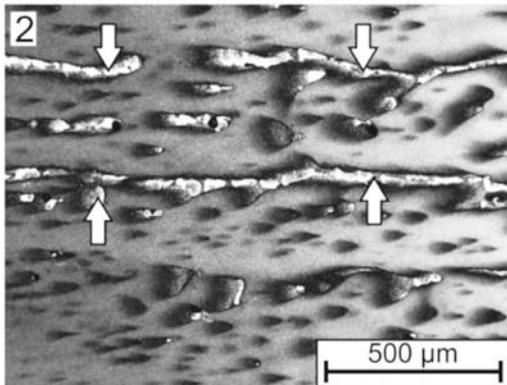
(a) 整体生长过程 (生长方向: 从左到右)



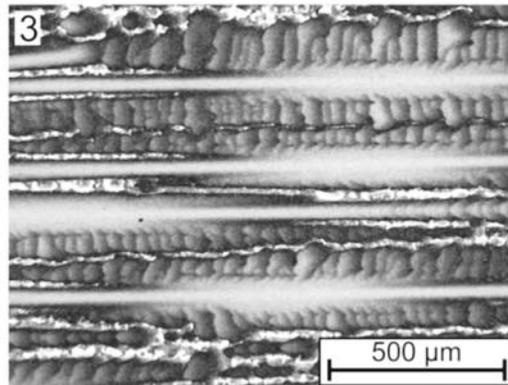
(b) 熔化前籽晶的初始微观结构



(c) 籽晶热影响区



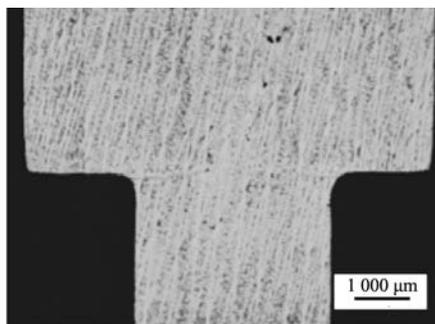
(d) 籽晶的重熔区, 箭头为初始枝晶间区域



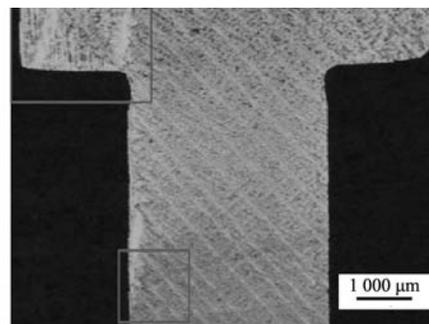
(e) 新生长的高温合金单晶树枝状组织

图6 籽晶法制备单晶过程中微观结构的演变

Fig. 6 Evolution of microstructure during single crystal preparation process by using of seeding method



(a) 初始晶粒与轴向夹角较小



(b) 初始晶粒与轴向夹角较大

图7 DZ417G高温合金定向凝固纵截面组织

Fig. 7 Longitudinal section microstructures of DZ417G superalloys obtained by directional solidification process

氧化性能的高低对于籽晶材料的选取并不重要，重要的是籽晶材料和铸造合金的密度差别。只有籽晶的材料密度不小于单晶高温合金的密度，才能保证籽晶的稳定重熔和单晶的顺利外延。孙等人^[36]设计了两种不同成分和密度的籽晶和母合金，研究其制备过程组织演变，结果表明，当熔体的密度小于籽晶的密度时，籽晶回熔区内不产生杂晶；当熔体的密度大于籽晶的密度时，回熔区内产生大量杂晶。对流引起的局部成分过冷是导致杂晶形核的主要原因，采用高密度、高熔点的合金做籽晶，能够提高籽晶法生长单晶的成功率。Toloraiya^[8]和Azhazha^[37]等人开发了低偏析异质籽晶，该方法制备过程中会使凝固界面失稳，由平面状-胞状-树枝状失稳转变。郭等人^[38]研究发现低偏析异质籽晶回熔区杂晶形成机制主要是籽晶-型壳间隙

激冷形核（纯Ni）和非均匀形核（Ni-35wt.%W，Ni-38wt.%W），当籽晶材料中W含量控制在35wt.%以下，降低杂晶形核能力，高熔点的Ni-W籽晶，除了上述特点以外，还具有可重复使用的优点。

2.3 保温时间、抽拉速率和温度梯度

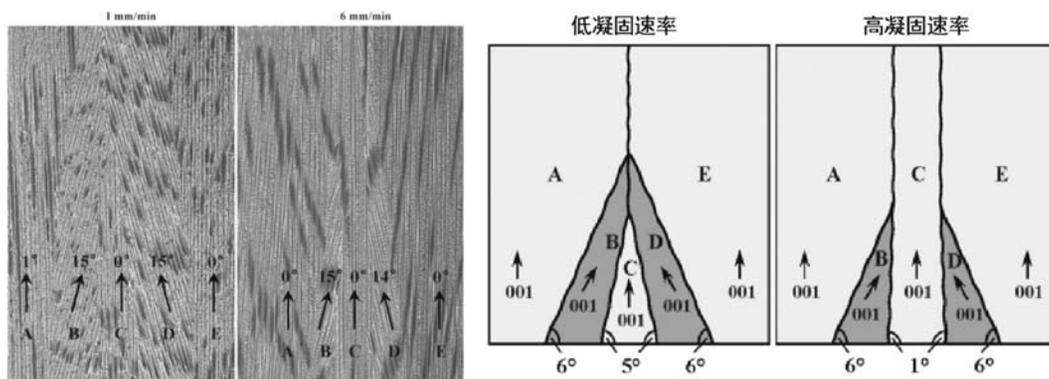
籽晶回熔区的组织特征对制备单晶高温合金的完整性具有重要影响。胡等人^[40]研究了不同保温时间10 min和30 min条件下，回熔区的组织演变。结果表明，10 min保温后的回熔界面以下存在大量未完全熔化的破碎枝晶，取向发生偏离，定向凝固后，母合金中沿生长方向形成大量杂晶。而保温30 min后，获得细小均匀的凝固组织，取向与籽晶取向一致，继续延长保温时间，对其回熔区的组织不会产生影响。在定向凝固制备过程中，籽晶主要通过与其直接接触的水冷铜板或型壳散热，温度梯度存在变化范围，研究表明，在低温度梯度下，制备的单晶高温合金一次枝晶间距随着籽晶的原始一次枝晶间距增大而增大，而在高温梯度下，新制备的单晶高温合金一次枝晶间距不受籽晶的影响，由凝固参数（温度梯度和凝固速率）决定。抽拉速率在定向凝固中是唯一能够大范围调整的工艺参数，其对凝固组织有显著的影响，通过研究不同抽拉速率下的杂晶与籽晶竞争生长关系，发现在高的抽拉速率下，只有汇聚型竞争生长中籽晶初始枝晶生长方向能够淘汰杂晶的生长，在低抽拉速率下，择优晶粒更容易被非择优晶粒淘汰，如图8所示^[41-42]。

表1 籽晶成分研究现状
Tab. 1 Current research status on seed crystal composition

特性	籽晶成分	母合金成分	参考文献
同质籽晶	DD5	DD5	[33,38]
	WZ30	WZ30	[33]
	DD483	DD483	[34]
异质枝晶	DD5	WZ30	[33]
	WZ30	DD5	
	DD5	SRR99	[36]
	DD90M	SRR99	
	SRR99	DD90M	[38]
	纯Ni	SRR99	
	Ni-28wt.%W	SRR99	
	Ni-35wt.%W	SRR99	
	Ni-38wt.%W	SRR99	[39]
	Ni-20wt.%W	DD3	
纯Ni	DD483	[34]	
Ni-12% Cr	DD483		

3 籽晶法制备单晶高温合金数值模拟技术

籽晶法制备单晶高温合金是一个复杂的凝固过程，难以测定籽晶段内温度的演化过程，完全通过试验方法原位观察研究成本高、周期长、工序繁琐。



(a) 籽晶晶粒生长方向组织 (b) 籽晶晶粒生长方向示意图

图8 籽晶晶粒生长方向显微组织及示意图

Fig. 8 Microscopic structures and schematic diagrams at seed crystal growth directions

籽晶法制备单晶铸件过程中往往采用数值模拟技术，该技术作为一种低能耗、高效率、短周期的研究方法，能够对凝固过程提供直接观测。目前常用的是ProCAST仿真软件，国内外研究学者运用该软件对单晶合金凝固过程进行数值模拟，将凝固过程的流场、温度场、溶质场等进行耦合求解，可预测籽晶法制备复杂铸件的凝固过程和缺陷形成过程，优化凝固工艺、控制铸件质量^[43-45]。

Yang和Souza提出籽晶法制备过程中边缘缺陷形成的主要原因为定向凝固初期凝固界面由凸界面迅速转变为凹界面，导致籽晶回熔区界面区域产生过冷形核而形成杂晶^[46-47]。Li等人^[28]通过ProCAST数值模拟研究了籽晶回熔区杂晶形成机理和控制方法，数值模拟结果表明，在初始凝固阶段凸型固液界面向凹界面转换非常缓慢，过冷度略受界面曲率的影响，说明初期回熔界面的形态改变不足以引起过冷度突变诱导杂晶形核。沈阳黎明尚伟团队^[48]利用数值模拟与试验相结

合方法，研究了铸造凝固工艺对单晶导向叶片缺陷形成的影响，通过对某型高导叶凝固过程的温度场、流场及组织计算，提出叶片定向凝固过程中的晶粒竞争生长机制和晶粒取向控制方法。杨等人^[49]选取了DD3合金，利用数值模拟技术研究了不同抽拉速率下籽晶法制备凝固初期温度场演化规律，如图9所示，结果表明，定向凝固初期温度场演化在近平衡阶段前是一个缓慢变化的过程：初始抽拉阶段经过一定孕育期后，温度场演化开始，并且速率（固液界面迁移速率）逐渐加快，达到近稳态，液/固界面从凸界面逐渐转变为凹界面。Li等人^[50]利用数值模拟方法研究了凝固工艺对单晶动叶中杂晶缺陷形成的影响，结果表明，抽拉速率会显著影响单晶叶片杂晶的形成。

Yang等人^[51]利用有限差分法模拟研究了CMSX4单晶合金籽晶回熔区杂晶形成的影响因素。结果表明，回熔区液相最大溶质过冷度对抽拉速率和晶体取向高度敏感；而热梯度对过冷度影响不大，如图10所示。

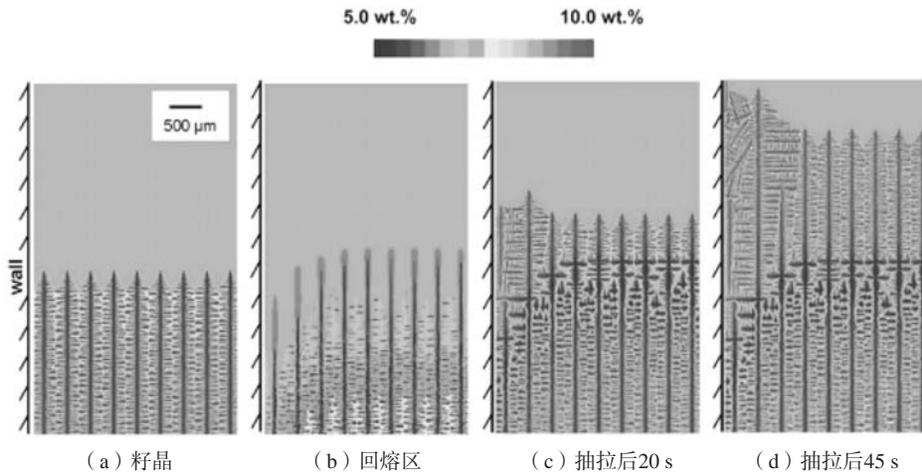


图9 弯曲等温线和非均匀成核的籽晶回熔过程中模拟组织

Fig. 9 Simulated microstructures during the remelting process of seed crystal with curved isotherms and non-uniform nucleation

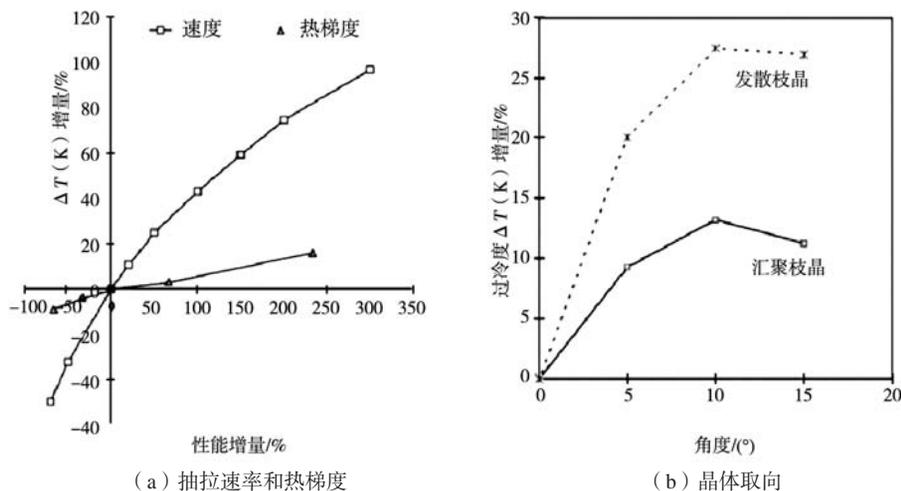


图10 不同铸造参数对液相区最大溶质过冷度的影响

Fig. 10 The effect of different casting parameters on the maximum solution undercooling in the liquid phase zone

随着抽拉速率及晶体取向偏离度的增加,回熔区形成杂晶的倾向性增加。郭等人^[38]采用ProCAST软件探究了籽晶法制备单晶高温合金过程凝固初始阶段及中间阶段型壳及铸件温度梯度变化规律,结果表明,随着定向凝固的进行,固液界面前沿温度场发生倾斜,温度梯度减小,而籽晶回熔转变区的温度梯度较大且未倾斜,进一步说明,温度梯度不是籽晶回熔区转变的关键因素。Gu等人^[52]通过数值模拟方法对高温合金的枝晶碎片的运动和重熔进行了建模,研究回熔区的溶质对流对凝固缺陷的影响,结果发现,杂晶形成位置和机制有三种类型:第一种,形成位置为熔化籽晶和型壳之间的间隙,由熔体回流引起;第二种,形成位置为回熔区上方籽晶的表面,由成分过冷引起;第三种,为回熔区籽晶内部,由枝晶变形引起,这一研究与试验过程杂晶形成机理相吻合。

4 总结与展望

对于籽晶法制备高温合金单晶技术来说,目前控制籽晶外延生长过程回熔区杂晶实施的措施包括两方面,一是控制杂晶形核,二是控制非择优晶粒的长大;基于杂晶形成机理及影响因素的研究现状,主要控制技术有以下几种方式。

型壳的表面质量控制。型壳内表面与铸件直接接触,金属液浇注后,随着金属液流动、气孔毛细作用等因素,金属液不可避免地侵入到陶瓷型壳表面,形成一些凸起,如若型壳表面质量低,粗糙度大,就会导致异质形核质点增加,因此,降低型壳内表面的粗糙度有效控制杂晶的形核,缺点是会增加型壳制造工艺的复杂性和提高制造成本。

籽晶材料特性的控制。籽晶是铸件外延生长的起始段,高温合金籽晶中往往含有易氧化Al、Ti等元素,在型壳预热和保温过程中不可避免地形成氧化膜阻碍

籽晶的回熔和外延生长,因此,合理选择低偏析高熔点的异质Ni-W籽晶有效降低杂晶的形核,除此之外,还具有可重复使用的优点,缺点是会在回熔区附近析出含W的第二相。

凝固工艺的控制。籽晶回熔外延生长的特性对凝固工艺提出了更高的要求,浇注温度、保温时间和抽拉速率对籽晶回熔段的影响作用直接决定外延生长晶粒的形核和长大,因此,针对不同特性的籽晶选择合理的浇注温度、保温时间和抽拉速率能够有效降低杂晶的形核并且控制择优晶粒的竞争生长,缺点是需要对不同籽晶特性制定对应的凝固工艺,优化最佳的凝固参数。

为了推进籽晶法制备单晶高温合金技术的发展,提高籽晶外延生长过程单晶涡轮叶片高性能、高成率,未来控制杂晶的技术发展方向和趋势重点为以下几方面:

(1) 深入探究籽晶特性对凝固缺陷的影响规律。已报导的同质籽晶与异质籽晶目前仍各有优缺点,因此,在已有基础上,优化籽晶特性,设计并开发更多的籽晶材料,控制籽晶的质量及完整性,抑制籽晶回熔区杂晶缺陷形核和长大。

(2) 深化籽晶回熔区杂晶形核和竞争生长机制。探究籽晶固液界面前沿温度场、溶质场分布规律,进一步分析不同凝固参数下温度梯度及晶体生长速度对固液界面形态特征影响机理,优化新工艺,耦合控制杂晶的形核及生长。

(3) 完善数值模拟技术中模型、材料物性参数。目前研究表明精密熔模铸造数值模拟技术仍面临模型简单化、材料物性参数不健全、边界条件难以获取等问题,未来,数值模拟技术应更加准确地描述充型、凝固过程,扩展数值模拟技术在籽晶制备技术中的应用,为试验提供更加精确的指导。

参考文献:

- [1] PEREPEZKO J H. The hotter the engine, the better [J]. Science, 2009, 326 (5956): 1068-1069.
- [2] 马意文, 苗辉. 涡轮温度场仿真技术发展方向研究 [J]. 仿真, 2021 (1): 48-51.
- [3] DAS N. Advance in nickel-based cast superalloys [J]. Transactions of the Indian Institute of Metals, 2010, 63: 265-274.
- [4] WERNER F, SCHOLZ F, GIT P, et al. Effects of single crystal growth techniques on dendritic microstructures and small angle orientation defects in Ni-based superalloys [R]. Bamberg, Bavaria: DGM, 2022.
- [5] XU M, ZHANG X L, GENG X Q, et al. Microstructure characterization and competitive crystal growth of directional solidified nickel-based single crystal superalloy during spiral grain selector [J]. Chinese Mechanical Engineering Society Journal Platform, 2021, 41 (7): 831-836.
- [6] MENG X B, LI J G, JIN T, et al. Evolution of grain selection in spiral selector during directional solidification of nickel-base superalloys [J]. Journal of Materials Science & Technology, 2011, 27: 118-126.
- [7] 岳珠峰, 吕震宙, 杨治国, 等. 晶体取向的偏差和随机性对镍基单晶叶片强度与蠕变寿命的影响 [J]. 航空动力学报, 2003, 18 (4): 477-480.
- [8] TOLONORAIYA N, OREKHOV N G, KABLOV E N. Advanced method for single crystal casting of turbine blades for gas turbine engines

- and plants [J]. *Metal Science and Heat Treatment*, 2002, 44 (7): 279–283.
- [9] WAGNER A, SHOLLOCK B A, MCLEAN M. Grain structure development in directional solidification of nickel-base superalloys [J]. *Materials Science and Engineering A*, 2004, 374 (1): 270–279.
- [10] CHEN G S, AIMONE P R, GAO M, et al. Growth of nickel-base superalloy bicrystals by the seeding technique with a modified Bridgman method [J]. *Journal of Crystal Growth*, 1997, 179 (3): 635–646.
- [11] 赵乃仁, 李金国, 刘金来, 等. 籽晶法生长高温合金单晶凝固界面研究 [J]. *材料工程*, 2007 (11): 24–27.
- [12] 杨帅, 郑素杰, 陈昊. 镍基单晶高温合金籽晶氧化对凝固过程的影响 [J]. *铸造*, 2021, 70 (7): 819–822.
- [13] XIAO J H, JIANG W G, HAN D Y, et al. Evolution mechanism of crystallographic orientation in grain continuator bars of a Ni-based single-crystal superalloy prepared by Bridgman technology during directional solidification [J]. *China Foundry*, 2022, 19 (1): 35–45.
- [14] YANG W C, HU S S, HUO M, et al. Orientation controlling of Ni-based single-crystal superalloy by a novel method: grain selection assisted by un-melted reused seed [J]. *Journal of Materials Research and Technology*, 2019 (8): 1347–1352.
- [15] 刘晓功, 饶洋, 刘培元, 等. 温度梯度对籽晶法制备镍基单晶高温合金DD6凝固组织的影响 [J]. *铸造*, 2022, 71 (4): 415–419.
- [16] STANFORD N, DJAKOVIC A, SHOLLOCK B A, et al. Seeding of single crystal superalloys-role of seed melt-back on casting defects [J]. *Scripta Materialia*, 2004, 50: 159–163.
- [17] 潘继勇, 刘孝福, 何立明, 等. 硅基陶瓷型芯的研究进展 [J]. *铸造*, 2012, 61 (2): 174–178.
- [18] XUAN W D, LAN J, LIU H, et al. A method of stray grain suppression for single-crystal superalloy during seed melt-back [J]. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 2016, 47 (12): 5691–5697.
- [19] HU S S, YANG W C, LI Z R, et al. Formation mechanisms and control method for stray grains at melt-back region of Ni-based single crystal seed [J]. *Progress in Natural Science: Materials International*, 2021, 31 (4): 624–632.
- [20] STANFORD N, DJAKOVIC A, SHOLLOCK B, et al. Defect grains in the melt-back region of cmsx-4 single crystal seeds [C]// *Proceedings of the 10th International Symposium on Superalloys*. Warrendale, PA: TMS, 2004: 719–726.
- [21] 郭静, 李金国, 刘纪德, 等. 低偏析异质籽晶制备单晶高温合金的籽晶熔合区形成机制研究 [J]. *金属学报*, 2018, 54 (3): 419–427.
- [22] AVESON J W, TENNANT P A, FOSS B J, et al. On the origin of sliver defects in single crystal investment casting [J]. *Acta Materials*, 2013, 61: 5162–5171.
- [23] HU S S, LIU L, YANG W C, et al. Inhibition of stray grains at melt-back region for re-using seed to prepare Ni-based single crystal superalloys [J]. *Progress in Natural Science: Materials International*, 2019, 29 (5): 582–586.
- [24] 王树森, 张玲, 孟杰. 粉料粒度对陶瓷型壳料浆性能及单晶叶片粘砂的影响 [J]. *铸造*, 2023, 72 (4): 415–419.
- [25] 刘世忠, 史振学, 王效光. 一种单晶高温合金叶片表面缺陷的形成机制 [J]. *铸造*, 2017, 66 (2): 118–121.
- [26] POLLOCK T M, MURPHY W H. The breakdown of single-crystal solidification in high refractory nickel-base alloys [J]. *Metallurgical & Materials Transactions A*, 1996, 27: 1081–1094.
- [27] D'SOUZA N, JENNINGS P A, YANG X L, et al. Seeding of single-crystal superalloys-role of constitutional undercooling and primary dendrite orientation on stray-grain nucleation and growth [J]. *Metallurgical & Materials Transactions B*, 2005, 36 (5): 657–666.
- [28] 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]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2016, 657: 341–347.
- [29] HALLENSLEBEN P, SCHAAR H, THOME P, et al. On the evolution of cast microstructures during processing of single crystal Ni-base superalloys using a Bridgman seed technique [J]. *Materials & Design*, 2017, 128: 98–111.
- [30] ZHAO X B, LIU L, ZHANG W G, et al. Analysis of competitive growth mechanism of stray grains of single crystal superalloys during directional solidification process [J]. *Rare Metal Materials and Engineering*, 2011, 40 (1): 9–13.
- [31] 张小丽. 单晶高温合金定向凝固制备的基础研究 [D]. 沈阳: 中国科学院金属研究所, 2013.
- [32] 玄伟东, 任忠鸣, 任维丽, 等. 籽晶取向对镍基高温合金定向凝固过程中杂晶的影响 [J]. *钢铁研究学报*, 2011, 23 (S2): 369–372.
- [33] 马德新, 赵运兴, 徐维台, 等. 高温合金籽晶材料对单晶外延生长的影响 [J]. *中国有色金属学报*, 2023, 33 (2): 445–454.
- [34] 谢信亮, 余建波, 玄伟东, 等. 籽晶成分对单晶高温合金定向凝固起始界面形态和取向的影响 [J]. *上海金属*, 2016, 38 (6): 49–53.
- [35] 霍苗, 赵惠. 籽晶法制备高温合金单晶叶片的研究进展 [J]. *材料导报*, 2023, 37 (17): 223–228.
- [36] 孙国才. Ru对含Re单晶高温合金组织和凝固特性的影响 [D]. 沈阳: 中国科学院金属研究所, 2012.
- [37] AZHAZHA V, GORBENKO Y V, KOVTUN G, et al. The growth of single crystals of Ni-W alloy under conditions of high temperature gradient [J]. *Crystallography Reports*, 2004, 49 (2): 307–311.
- [38] 郭静. 籽晶法制备单晶高温合金的回熔转变区组织研究 [D]. 沈阳: 中国科学院金属研究所, 2017.
- [39] QIN J R, YANG W C, QU P F, et al. Microstructure on remelting interface of Ni-W heterogeneous seed in preparing Ni-based single crystal superalloys [J]. *Journal of Materials Research and Technology*, 2021, 12: 264–270.

- [40] 胡松松. 第三代镍基单晶高温合金晶体取向及杂晶控制研究 [D]. 西安: 西北工业大学, 2019.
- [41] ZHANG X L, ZHOU Y Z, JIN T, et al. Effect of solidification rate on grain structure evolution during directional solidification of a Ni-based superalloy [J]. *Journal of Materials Science & Technology*, 2013, 29 (9): 879–883.
- [42] ZHOU Y Z, SUN X F. Effect of solidification rate on competitive grain growth in directional solidification of a nickel-base superalloy [J]. *Science China Technological Sciences*, 2012, 55 (5): 1327–1334.
- [43] HUO M, LIU L, YANG W C, et al. Dendrite growth and defects formation with increasing withdrawal rates in the rejoined platforms of Ni-based single crystal superalloys [J]. *Vacuum*, 2019, 161: 29–36.
- [44] HAN D Y, JIANG W G, XIAO J H, et al. Investigation on freckle formation and evolution of single-crystal nickel-based superalloy specimens with different thicknesses and abrupt cross-section changes [J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2019, 805: 218–228.
- [45] BELLOMO N P, ÖZTÜRK I, GÜNZEL M, et al. Identifying critical defect sizes from pore clusters in nickel-based superalloys using automated analysis and casting simulation [J]. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 2023, 54: 1699–1709.
- [46] SOUZA N D, JENNINGS P A, YANG X L, et al. Seeding of single-crystal superalloys-role of constitutional undercooling and primary dendrite orientation on stray-grain nucleation and growth [J]. *Metallurgical & Materials Transactions B*, 2005, 36 (5): 657–666.
- [47] 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.
- [48] 尚伟, 孙长波, 刘艳, 等. 单晶导向叶片凝固过程组织模拟 [J]. *铸造*, 2013, 62 (5): 415–419.
- [49] 杨振宇, 陈昊, 胡松松, 等. 镍基单晶高温合金定向凝固初期温度场演化过程 [J]. *铸造*, 2020, 69 (11): 1180–1184.
- [50] LI Y F, LIU L, HUANG T W, et al. Simulation of stray grain formation in Ni-base single crystal turbine blades fabricated by HRS and LMC techniques [J]. *China Foundry*, 2017, 14 (2): 75–79.
- [51] YANG X L, NESS D, LEE P D, et al. Simulation of stray grain formation during single crystal seed melt-back and initial withdrawal in the Ni-base superalloy CMSX4 [J]. *Materials Science and Engineering A*, 2005, 413: 571–577.
- [52] GU J P, BECKERMANN C, GIAMEI A F. Motion and remelting of dendrite fragments during directional solidification of a nickel-base superalloy [J]. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 1997, 28: 1533–1542.

Research Progress of Stray Grain Defect Control Technology on Single Crystal Superalloys Prepared by Seeding Method

GAO Xue-feng¹, WANG Liang¹, BAI Wei-chen¹, LIN Zi-bo², ZHAO Yu-cheng², ZHANG Chao-wei¹, YANG Yan-hong¹, MENG Jie¹, ZHOU Yi-zhou¹

(1. Institute of Metal Research Chinese Academy of Sciences, Shenyang 110016, Liaoning, China; 2. AECC Aviation Power Co., Ltd., Xi'an 710021, Shaanxi China)

Abstract:

The proposed seeding method for preparing single crystal superalloys solves the key problem of orientation deviation during the crystal directional growth process in single crystal alloys. By using the seed orientation, it enables accurate control of crystal orientation for the desired parts, which has attracted the attention of numerous scholars, and extensive researches have been conducted on the formation mechanisms and controls of stray grain defects, as well as the preparation process optimization, etc. for the single crystal superalloys prepared using the seeding method. Based on the current research situations at home and abroad, this paper summarizes the research progresses in numerical simulation and experiments of seeding method for preparing single crystal superalloys in recent years. Based on the directional solidification characteristics, the mechanisms of stray grain defect formations during seed epitaxial growth processes have been reviewed. At the same time, the defect control technologies are achieved from the aspects of material properties and solidification processes, and so on. Finally, it offers insights into the future development trends of the seeding method for preparing single crystal superalloys.

Key words:

seeding method; single crystal superalloys; stray grain defects; solidification process; numerical simulation