

镍基单晶高温合金定向凝固初期温度场演化过程

杨振宇¹, 陈昊², 胡松松³, 杨功¹, 张剑¹, 骆宇时¹

(1.北京航空材料研究院, 先进高温结构材料重点实验室, 北京 100095; 2.空军装备部驻北京地区第六军事代表室, 北京 101300; 3.湘潭大学材料科学与工程学院, 湖南湘潭 411105)

摘要: 镍基单晶高温合金制备过程中凝固缺陷的形成与温度场演化密切相关。采用ProCAST数值模拟的方法研究了籽晶法制备镍基单晶高温合金时定向凝固初期温度场的演化过程。结果表明, 定向凝固初期温度场演化开始前存在一定时间的孕育期, 之后凝固界面迁移速率从0逐渐增加到抽拉速度附近, 孕育期随着抽拉速率的增加而减少。最后, 讨论了定向凝固初期温度场演化对杂晶形核和长大的影响。

关键词: 镍基单晶高温合金; 定向凝固; 籽晶法; 温度场; 抽拉速率

镍基单晶高温合金具有优异的高温综合性能而被广泛用作航空发动机涡轮叶片材料^[1]。单晶涡轮叶片主要采用定向凝固熔模铸造技术, 并结合选晶法或籽晶法制备^[2]。选晶法的本质是通过大量晶粒在特殊的选晶器结构中竞争生长获得具有<001>取向单晶。籽晶法是将与所需制备的单晶具有相同或相近材料的籽晶安放在型壳的最底部, 将过热的熔融金属液浇注在籽晶上面, 保温一定时间后以预设的速度抽拉型壳, 得到与籽晶取向一致的单晶。籽晶法制备单晶具有精确控制晶体取向的优势, 是制备具有特殊取向要求单晶涡轮叶片的主要方法。然而, 定向凝固初期籽晶回熔区常出现杂晶, 导致单晶制备失败^[3-4], 限制了籽晶法的广泛应用。

为了提高籽晶法制备单晶的成功率, 国内外学者开展了大量的研究。Stanford等指出杂晶通常只形成于籽晶表面, 并认为这些杂晶形核只发生于定向凝固初期^[5]。基于实验及元胞自动机模拟结果, Yang和D'Souza提出定向凝固初期凝固界面由凸界面迅速转变为凹界面是籽晶边缘杂晶形成的主要原因^[6-7]。Montakhab等发现籽晶内部也存在一些与基体取向偏离的枝晶^[8], Hallensleben等也在籽晶内部回熔界面附近发现了取向随机的杂晶^[9]。为了抑制籽晶回熔区杂晶的形成, 研究者提出了预埋籽晶于型壳内^[10], 变速抽拉^[11], 型壳籽晶段设置热阻层^[12]等多种方法, 但籽晶回熔区杂晶形成的机制依然存在争议。

定向凝固过程中温度场演化过程与凝固缺陷密切相关, 但目前关于籽晶法制备单晶过程中温度场的演化过程还不清楚。ProCAST铸造工艺仿真软件已在高温合金定向凝固数值模拟中广泛应用, 在研究单晶叶片制备过程中温度场与晶粒组织演化过程中发挥了重要作用^[13]。为揭示籽晶回熔区杂晶形成机制, 本文采用ProCAST数值模拟方法研究了不同抽拉速率下温度场演化过程, 以明确籽晶法制备单晶高温合金时定向凝固初期温度场演化规律。

1 模拟方法

本研究所用合金为DD3, 其名义成分为Ni-9.5Cr-5.0Co-5.2W-3.8Mo-5.9Al-2.1Ti, Jmatpro计算合金液相线温度为1 385 ℃, 固相线温度为1 320 ℃。采用ProCAST铸造工艺仿真软件对籽晶法制备单晶过程中温度场演化过程进行模拟。如图1所示, 与实际制备过程相对应, 将定向凝固设备简化为加热区、隔热区和冷却区, 并将炉体处

作者简介:

杨振宇(1989-), 男, 工程师, 主要从事高温合金材料及工艺研究。E-mail: xuanshangyiyi@163.com

中图分类号: TG132

文献标识码: A

文章编号: 1001-4977(2020)

11-1180-05

收稿日期:

2020-08-28 收到初稿,

2020-10-27 收到修订稿。

理为二维面网格的封闭真空空间 (Enclosure)，以提高计算效率。铸件及型壳采用三维网格划分，铸件与型壳 (图2) 放置于圆形水冷铜板上，水冷铜板底部设置温度为25 °C。

将铸件 (图2a) 分为籽晶段与零件段两部分，籽晶段与零件段界面类型为"EQUIV"，保证传热过程中消除界面的影响。同时为了提高计算，将籽晶段单元尺寸设置为0.5 mm，铸件段单元尺寸设置为2 mm。

为了模拟籽晶法制备单晶高温合金定向凝固初期温度场演化过程，型壳和铸件温度设置为炉体保温温度 (1 550 °C)，先保温60 min使温度场达到稳态，之后将炉体以一定速度竖直向上运动实现模拟定向凝固过程。

由于籽晶法制备单晶过程中难以测定籽晶段内温度的演化过程，采用与模拟过程相同的工艺参数进行定向凝固试验，通过凝固组织分析验证模拟结果的准确性。定向凝固后，将籽晶沿轴线切开，磨抛后采用体积比为1 : 2 : 4的HNO₃、HF和甘油的混合液进行化学腐蚀，并使用DM-4000M型光学显微镜 (OM) 观察显微组织。

2 模拟结果

图3所示为ProCAST模拟的凝固初期籽晶段温度场演化过程。图3a为保温末期 (抽拉时间 $t=0$) 籽晶与型壳温度场特征，籽晶回熔界面位置处，型壳温度高于同位置的籽晶温度，热量从型壳向籽晶方向传递，

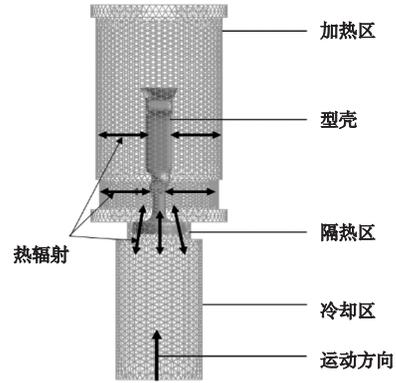


图1 单晶高温合金定向凝固系统网格模型
Fig. 1 Mesh model for directional solidification of single crystal superalloy

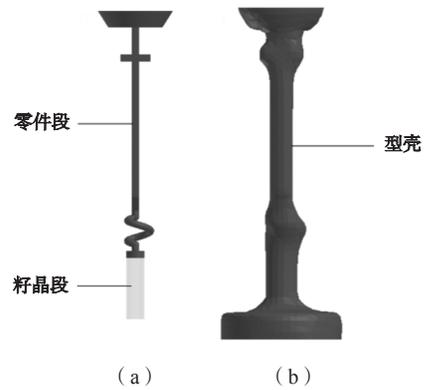
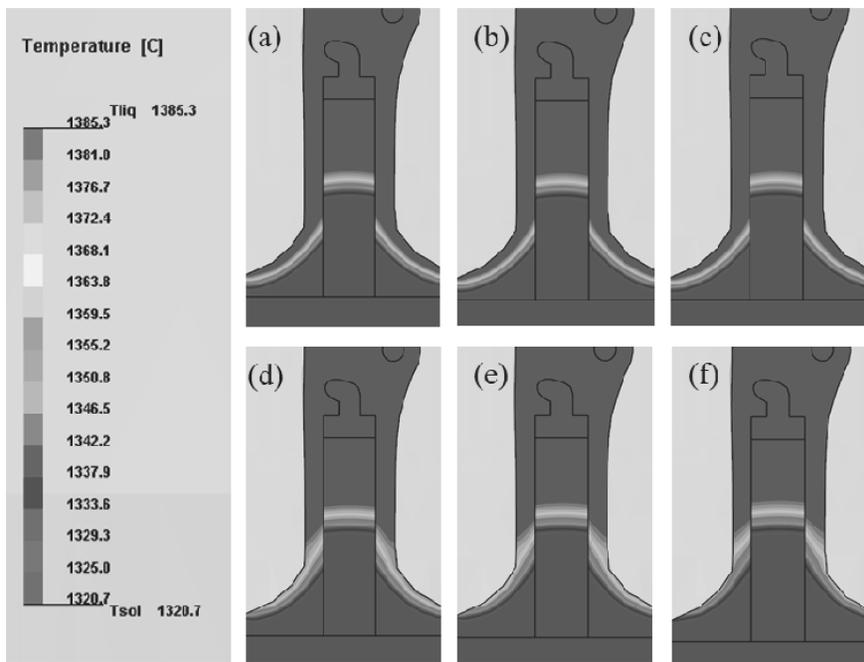


图2 铸件 (a) 和模组 (b) 三维模型
Fig. 2 3D model of casting (a) and mold (b)



(a) $t=0$; (b) $t=15$ s; (c) $t=30$ s; (d) $t=45$ s; (e) $t=60$ s; (f) $t=75$ s

图3 定向凝固初期温度场演化过程 (抽拉速率 $V=75 \mu\text{m/s}$)

Fig. 3 Evolution of temperature field at early stage of directional solidification (withdrawal rate $V=75 \mu\text{m/s}$)

回熔界面为上凸形。以 $75\ \mu\text{m/s}$ 速度抽拉，型壳立刻相对炉体向下做匀速运动，然而在抽拉初期，如图3b所示，型壳与籽晶的温度场基本没有变化，说明定向凝固过程中温度场演化开始时间滞后于抽拉开始的时间，凝固初始阶段，温度场演变需要一定的孕育期。如图3c-3f，籽晶与型壳的温度场逐渐变化，并且在相同的时间间隔内液相线的迁移速率逐渐加快，同时型壳中合金液相线温度点的迁移速率明显高于籽晶内部。抽拉250 s时（图3e）籽晶固液界面处温度与型壳内壁温度接近，固液界面转变为平界面。随后籽晶固液界面处温度高于型壳内壁温度，热量从籽晶向型壳传递，固液界面逐渐下凹。单晶高温合金定向凝固过程中，固液界面从凸界面转变为平界面，继而转变为凹界面与D'Souza等的描述一致^[6]，但固液界面从凸界面转变为凹界面是非常缓慢的过程，且温度场演化开始前存在一定的孕育期。

为了进一步确定温度场演化开始前的孕育期，研究了型壳（内表面）和籽晶（边缘）液相线温度点与籽晶底部的距离随抽拉时间的变化，见图4。可以看出，抽拉初始阶段的15 s内，型壳和籽晶液相线温度点距籽晶顶部的距离没有明显变化，之后型壳表面液相线温度点与籽晶底部的距离缓慢增加，定向凝固过程中温度场演化逐渐开始。籽晶液相线温度点与籽晶底部的距离变化晚于型壳与籽晶底部的距离变化，且初始抽拉阶段固液界面迁移速率（籽晶液相线温度点与籽晶底部的距离随抽拉时间的变化率）也小于型壳液相线温度点与籽晶顶部距离的变化率。随后，温度场演化速率（固液界面迁移速率）逐渐加快。从图4还可以看出，抽拉150 s以后，固液界面迁移速率和型壳液相线温度点与籽晶顶部距离随时间的变化率基本相当，位于抽拉速率附近，但定向凝固过程中温度场演化并未达到完全稳态。

图5所示为抽拉速率对孕育期的影响，随着抽拉速率的提高，温度场演化开始前所需要的孕育期越短。抽拉速率和孕育期呈反比例函数关系，如图中虚线所示。这说明不同抽拉速率下温度场演化开始时液/固界面位于炉体中的位置基本相同，与抽拉速率无关。

3 结果分析与讨论

图6为实验获得的籽晶回熔区组织，图中白色点线分别为回熔界面和初熔界面位置。可以看出，回熔界面和初熔界面都为凸界面，与模拟结果中保温阶段固相线和液相线为凸界面一致。回熔界面与初熔界面相距约5.1 mm，也与模拟得到的固液相线间距基本一致，这进一步验证了数值模拟的结果。

定向凝固过程中温度场演化对凝固组织和缺陷的

形成具有重要影响。李双明等采用高温梯度定向凝固装置研究了不同抽拉速率下CMSX-2单晶高温合金初始过渡区的组织演化特征，发现高抽拉速率下凝固界面经历了平界面-胞状界面-枝晶界面的转变^[14]。凝固界面与温度梯度、液/固界面迁移速率相关，当液/固界面迁移速率大于合金在相应温度梯度下的临界速率时，界面失稳，引起界面形态转变^[15]。定向凝固是采用瞬时启动方式达到预设速度的方式实现抽拉过程的，但初始抽拉阶段，温度场演化存在一定时间的孕育期，如

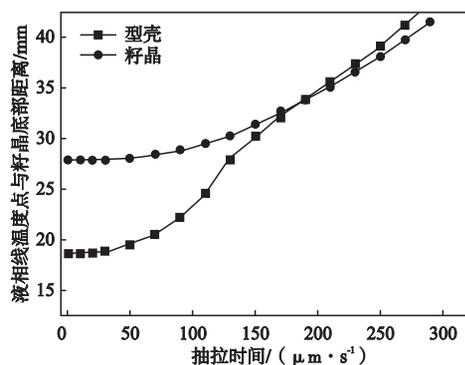


图4 型壳（内表面）和籽晶（边缘）液相线温度点与籽晶底部的距离随抽拉时间的变化（ $V=75\ \mu\text{m/s}$ ）

Fig. 4 Change of the distance between seed bottom and mold shell/seed edge at liquidus temperature with withdrawal time ($V=75\ \mu\text{m/s}$)

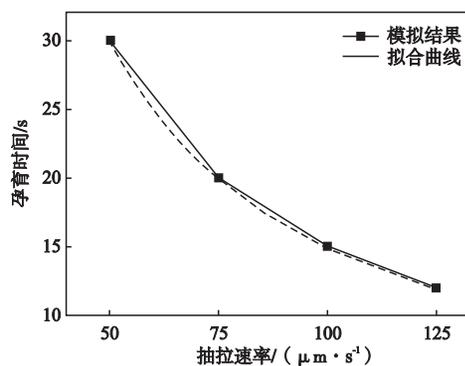


图5 孕育期与抽拉速率之间的关系

Fig. 5 Relationship between incubation time and withdrawal rate

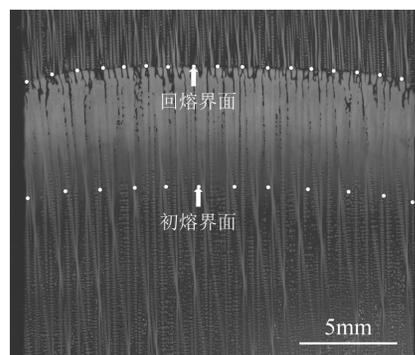


图6 籽晶回熔区纵截面组织

Fig. 6 Structure of seed remelting zone on longitudinal section

图4所示,之后温度场演化速率逐渐加快,因此凝固界面迁移速率从0逐渐增加到抽拉速率(远大于胞/枝转变速率)附近,使初始过渡区组织经历了平-胞-枝的转变,本研究ProCAST模拟结果符合李双明等观察到的实验现象^[14]。

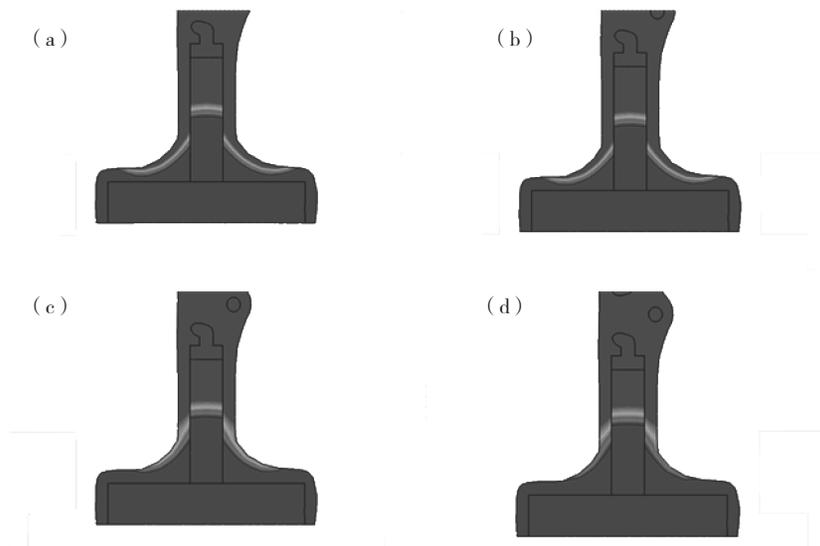
为了进一步明确初始抽拉阶段温度场演化孕育期形成的原因,图7展示了抽拉速率 $V=125\ \mu\text{m/s}$ 时不同抽拉时间下温度场与试样位置的关系。从图7a、7b可以看出,试样进入冷区前,温度场没有明显的变化;之后,试样底部进入冷区,如图7c、7d,温度场的演化速率明显加快,在较短的时间内温度场变化十分显著。这表明抽拉初期温度场演化与试样进入冷区相关。为了简化模拟过程,本文将炉体隔热区的温度设置为定值。试样从隔热区上端向下抽拉进入冷区前,其向周围辐射传热的条件基本保持不变,因此温度场演化并不明显,导致抽拉初期温度场演化孕育期的出现。模拟结果显示(图5),抽拉初期温度场演化前所需的孕育期与抽拉速率之间存在反比例函数关系,说明温度场演化前所需的抽拉距离为定值。结合图5和图7的结果可以进一步明确,试样在隔热区内所需的抽拉时间即为定向凝固初期温度场演化所需的孕育期前。

实际定向凝固炉中隔热区上端到隔热区下端存

在一定的温度梯度,因此试样进入冷区前温度场会发生变化。由于隔热区内温度差异较小,因此试样从隔热区进入冷区前,试样向周围空间辐射的条件变化较小,此阶段温度场变化不明显,抽拉初期存在温度场演化不明显的孕育期。

如图4所示,抽拉初期经过一定时间的孕育期后,温度场演化逐渐开始,籽晶液相线温度点迁移速率(即液/固界面迁移速率)逐渐加快,直到抽拉速率附近。这说明定向凝固初期温度场演化到达近平衡阶段前是一个缓慢变化的过程,与D'Souza等提出的抽拉初期凝固界面会从凸界面迅速转变为凹界面不符,籽晶边缘回熔区杂晶形成是因为固液界面形态突变引起的还值得商榷。

对于定向凝固过程中常用的抽拉速率瞬时启动方式,当定向凝固系统一定时,抽拉速率越大,则孕育期后液/固界面的迁移速率的加速度也越大,凝固过程中的初始过渡区长度则越小,初始凝固阶段籽晶边缘形成杂晶的几率越高;同时,液/固界面由凸界面转变为凹界面所用时间也越短,越有利于籽晶边缘杂晶快速长大,导致单晶制备失败。因此,实际定向凝固过程中采取变速抽拉或在型壳籽晶段设置热阻层的方式改善定向凝固初期温度场演变过程,进而实现降低杂晶形核及长大的几率,提高单晶制备成功率。



(a) $t=8\text{ s}$; (b) $t=12\text{ s}$; (c) $t=14\text{ s}$; (d) $t=16\text{ s}$

图7 不同抽拉时间下籽晶段温度场形态与试样位置的关系 ($V=125\ \mu\text{m/s}$)

Fig. 7 Relationship between temperature field pattern of seed and sample position under varying withdrawal time ($V=125\ \mu\text{m/s}$)

4 结论

(1) 定向凝固初期温度场演化前存在一定时间的孕育期,且孕育期的时间与抽拉速率呈反比例关系。

(2) 初始抽拉阶段,液/固界面迁移速率从0逐渐

增加到抽拉速率附近,温度场逐渐达到近稳态,液/固界面从凸界面逐渐转变为凹界面。

致谢:感谢西北工业大学定向凝固课题组为本文提供Jmatpro计算的合金物性参数数据。

参考文献:

- [1] 胡壮麒, 刘丽荣, 金涛, 等. 镍基单晶高温合金的发展 [J]. 航空发动机, 2005, 31 (3): 1-7.
- [2] REED R C. The superalloys fundamentals and applications [M]. New York: Cambridge University Press, 2006: 135-139.
- [3] 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 (1): 159-163.
- [4] 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.
- [5] STANFORD N, DJAKOVIC A, SHOLLOCK B, et al. Defect grains in the melt-back region of CMSX-4 single crystal seeds[C]// Superalloys 2004, in: K.A. Green, T.M. Pollock, H. Harada, et al. (Eds.) Warrendale PA: TMS, 2004: 719-726.
- [6] 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.
- [7] YANG X L, LEE P D, N. SOUZA D'. Stray grain formation in the seed region of single-crystal turbine blades [J]. JOM, 2005, 57: 40-44.
- [8] MONTAKHAB M, BACAK M, BALIKCI E. Low melt height solidification of superalloys [J]. Metallurgical & Materials Transactions A, 2016, 47: 3031-3039.
- [9] HALLENSLEBEN P, SCHARR H, THOME P, et al. On the evolution of cast microstructure during processing of single crystal Ni-base superalloys using a Bridgman seed technique [J]. Materials Design, 2017, 128: 98-111.
- [10] 韩雅芳, 李树索, 蒋立武, 一种Ni基单晶高温合金采用籽晶制备的方法: 200710179683.1 [P]. 2012-12-7.
- [11] AI C, ZHOU J, ZHANG H, et al. Misorientation induced by withdrawal rate transition and its effect on intermediate temperature stress rupture properties of a Ni3Al based single crystal superalloy [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2015, 637: 77-83.
- [12] XUAN W D, LIU H, LI C J, et al. Effect of a high magnetic field on microstructures of Ni-based single crystal during seed melt-back [J]. Metallurgical & Materials Transactions B, 2016, 47: 828-833.
- [13] 王柠, 刘林, 高斯峰, 等. 镍基单晶高温合金螺旋选晶过程的数值模拟 [J]. 稀有金属材料工程, 2013, 42 (12): 2558-2562.
- [14] 李双明, 杜炜, 张军, 等. CMSX-2单晶合金高梯度定向凝固下过渡区的组织演化特征 [J]. 金属学报, 2002, 38 (11): 1195-1198.
- [15] 傅恒志, 郭景杰, 刘林, 等. 先进材料定向凝固 [M]. 北京: 科学出版社, 2008.

Evolution of Temperature Field of Ni-Based Single Crystal Superalloy at Early Stage of Directional Solidification

YANG Zhen-yu¹, CHEN Hao², HU Song-song³, YANG Gong¹, ZHANG Jian¹, LUO Yu-shi¹

(1. National Key Laboratory of Advanced High Temperature Structural Materials, Beijing Institute of Aeronautical Materials, Beijing 100095, China; 2. No.6 Military Representative Office of Equipment Department of Air Force in Beijing, Beijing 101300, China; 3. School of Materials Science and Engineering, Xiangtan University, Xiangtan 411105, Hunan, China)

Abstract:

The formation of solidification defects in Ni-based single crystal superalloys is closely related to the temperature field. In this paper, the numerical simulation is carried out by using the ProCAST software to study the evolution of the temperature field at the initial withdrawal stage of seed region during the preparation of Ni-based single crystal superalloys. The results show that there is an incubation stage for temperature field at the initial withdrawal stage during directional solidification. Then, the Liquid/Solid (L/S) interface migration speed gradually increases from 0 to near the withdrawal rate. And the incubation time decreases with increasing the withdrawal rate. Finally, the nucleation and growth of stray grains around of seed surface is discussed based on the temperature field evolution at the initial withdrawal stage.

Key words:

Ni-based single crystal superalloys; directional solidification; seed method; temperature field; withdrawal rate