

退火预处理对高温合金单晶铸件再结晶的影响

赵运兴^{1, 2}, 马德新^{1, 2}, 徐福泽^{1, 2}, 徐维台¹, 李重行¹

(1. 深圳市万泽中南研究院有限公司, 广东深圳 518045; 2. 中南大学, 湖南长沙 410083)

摘要: 为研究退火工艺对单晶高温合金再结晶缺陷的影响, 采用静压加载的方式对DD5合金的单晶铸件进行局部变形, 经过不同退火工艺预处理后, 再进行固溶热处理。结果表明, 随着加载压力的提高, 固溶热处理中再结晶深度明显增加; 当压力载荷较小时, 在固溶前进行低温和高温退火预处理对再结晶基本无影响; 当压力载荷较大时, 低温退火使得铸件中残余应力和最终再结晶程度有所减小, 而高温退火反而会增大再结晶倾向, 其原因可能是退火温度过高导致铸件在预处理时就已发生再结晶。对样品微观组织的观察分析表明, 再结晶组织的产生和生长为亚晶聚合机制, 退火预处理对此没有影响。

关键词: 高温合金; 单晶铸件, 冷变形; 退火; 再结晶

作者简介:

赵运兴(1988-), 男, 硕士, 工程师, 主要从事铸造高温合金的研究。电话: 15673119949, E-mail: zyxcusu@163.com

通讯作者:

马德新, 男, 博士, 教授。电话: 15011165241, E-mail: madexin@csu.edu.cn

中图分类号: TG146

文献标识码: A

文章编号: 1001-4977(2021)

12-1423-07

基金项目:

深圳市发展和改革委员会项目(SZDRC 20181000); 广东省重点领域研发计划项目(2019B010935001)。

收稿日期:

2020-10-29 收到初稿,

2020-12-03 收到修订稿。

高温合金由于其出色的高温抗氧化性能及蠕变性能, 被广泛应用于航空发动机涡轮叶片铸件的生产。单晶高温合金由于消除了晶界这一高温下的弱化因素, 明显提升了高温力学性能。单晶叶片制造的最大问题是保证单晶的完整性, 避免杂晶、雀斑、条纹晶等凝固缺陷的产生^[1-5]。但在叶片凝固之后的冷却过程中, 由于受到陶瓷型壳的阻碍, 难免会产生铸造残余应力。而在铸件后续的机械处理(喷砂、喷丸、研磨等)过程中也会引入残余应力。这就造成固溶热处理过程中, 在叶片铸件应力集中的部位会发生再结晶现象^[6-11]。再结晶作为高温合金单晶铸件中一种常见的典型晶粒缺陷也会破坏铸件的单晶完整性, 造成铸件性能的急剧下降^[12-13]。因此, 再结晶成了高温合金单晶铸件直接报废的主要缺陷之一, 需要采取有效措施进行严格控制。

为减少单晶铸件中再结晶缺陷的产生, 最根本的方法是防止铸造过程中残余应力的产生, 但由于铸件形状因素和铸造条件的限制很难实现。目前公开的控制单晶合金再结晶的方法主要分为两类, 一类是对铸件进行表面处理, 如电化学腐蚀^[14]和表面涂覆涂层^[15]; 另一类是在固溶热处理之前进行预回复也就是退火预处理, 减轻铸件中的残余应力。退火预处理一直被认为是抑制再结晶的有效手段^[8, 16], 并广泛应用于生产中。但有的研究结果发现, 退火预处理虽然可以显著降低固溶处理后的再结晶厚度, 但是难于完全抑制再结晶^[8]。有的则认为退火处理对控制再结晶没有效果^[17-18]。

目前, 对单晶高温合金再结晶形核和长大机制的研究还很不充分。初步研究发现, 基体中 γ '相的溶解可能是再结晶形成的重要条件^[9, 12, 13, 18], 而基体组织中第二相的存在对于再结晶的长大起着重要作用^[8, 10, 12, 13, 18]。也有研究表明, 再结晶是以亚晶聚合机制形成并长大^[19-23]。

我们在用高温合金DD5铸造某型号单晶叶片时, 固溶热处理后产生的再结晶缺陷严重影响了产品的成品率。出现再结晶缺陷的部位集中在叶身与缘板的转接处(图1a)以及封严齿根部(图1b), 因为这些部位均为铸造残余应力的集中处。为了解决这个问题, 我们首先选择在固溶热处理前进行退火预处理的方法。本文的目的就是考察和验证退火预处理对抑制再结晶的有效性, 同时对再结晶的微观组织进

行观察分析,研究单晶高温合金中再结晶的机制。

1 试验方法

在同期进行的一个研发项目中,利用第二代单晶高温合金DD5浇注了数百件某型号航空发动机的单晶转子叶片。所用DD5合金的化学成分列于表1。在浇注和定向凝固过程完成后,对得到的铸件进行表面清理和宏观腐蚀,检查铸件的单晶完整性。将检查合格的铸件送入下道工序,在15.0VPT-4022/24HVIQ型热处理炉中进行固溶热处理,标准固溶热处理制度为1 300 °C/2 h。结果发现不少铸件在叶身与缘板的转接处以及封严齿根部出现再结晶缺陷(图1),这些部位都是铸件形状发生突变的位置,也是残余应力和应变集中的位置。实际上铸件的残余应力和变形不仅会在铸造过程中产生,在后处理过程中也会出现,如在铸件的脱壳、切割及流转过程中受到摩擦和碰撞,为达到铸件表面形状、尺寸和光洁度的要求而进行的抛磨和吹砂处理。虽然铸件具有多种变形方式,但残余应力对铸件再结晶的影响机制是一致的。本试验采用了

表1 DD5合金的化学成分
Table 1 Nominal composition of DD5 alloy $w_B/\%$

Cr	Co	W	Mo	Al	Ti	Ta	Hf	Re	Ni
7.0	7.5	5.0	1.5	6.2	-	6.5	0.15	3.0	余量

对铸件进行局部压痕这一常用的方式,来检验局部变形程度对铸件再结晶的影响。

为了减少铸件中的再结晶缺陷,准备采用在标准固溶前进行退火预处理的措施,为检验它的有效性,首先进行了相应的预试验。试验所用的样品为叶片铸件榫头部位的延长段,它是凝固过程中螺旋选晶器与叶片之间的过渡段(图2a),铸造后会被切割掉。挑选单晶完整性较好的样品(晶向偏离度小、无小角度晶界等),采用HRD150型硬度计对样品进行不同程度的局部变形处理,硬度计压头为直径0.5 mm的钢球。本试验共使用3个样品(A、B和C),在每个样品表面的5个检测点位置(图2b)分别施加不同的载荷 P ,保压时间为10 s。各检测点的载荷 P 值见表2,表中样品上的检测点号码由1个字母(代表样品编号即退火制度

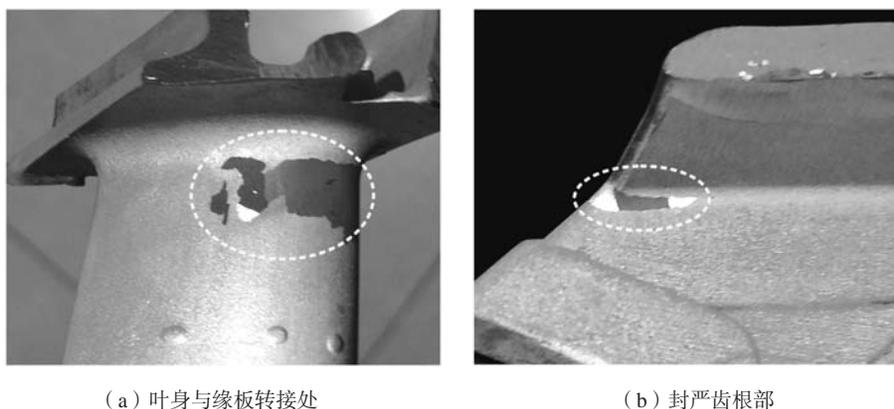


图1 叶片铸件中叶身与缘板转接处和封严齿根部的再结晶缺陷

Fig. 1 Recrystallization at the junction between airfoil and platform and at the sealing gear root of blade castings

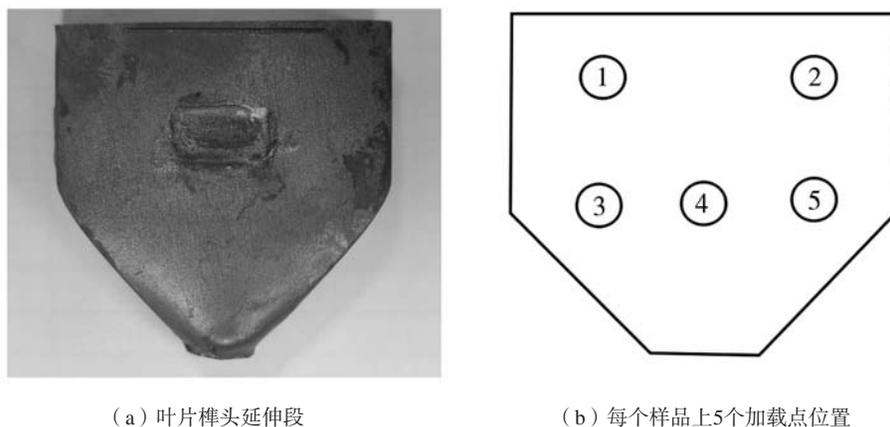


图2 叶片榫头延伸段照片及每个样品上5个加载点位置示意图

Fig. 2 Photo of blade tenon extension section and sketch of 5 loading points on each sample

号)和1个数字(代表检测点号)组成,如A1代表样品A(不退火样品)中的第1号检测点,具体位置见图1b。

在进行了压痕变形后,将样品A作为对照,在标准固溶处理(1 300 °C/2 h)前不进行退火预处理。而样品B和C分别按照表3给出的制度进行了相应的退火预处理。退火制度B的温度仅为980 °C,简称低温退火。退火制度C简称高温退火,在1 100 °C到1 250 °C之间分多个阶段进行,最终已接近1 300 °C的固溶温度。需要指出的是,退火制度B和C已分别被行业内不同单位长期应用于同类单晶高温合金铸件的生产,目的是减轻后续固溶热处理中的再结晶缺陷。特别是高温退火制度C设计得非常复杂,需经历多次“升温-降温”的循环,其主要目的是在防止铸件在高温时间过长引起初熔的前提下,尽量使用较高的温度来有效释放铸件中的残余应力。一般情况下,影响铸件再结晶程度的因素为铸件内残余应力的大小和热处理温度及时间,升降温的速度对再结晶的程度没有明显影响。

本试验将验证这两种退火制度(B和C)的有效性,以决定是否应用于本单位相应产品的生产。

在对样品B和C分别进行低温和高温退火预处理后,连同未进行退火的对照样品A放在同一真空炉中进行同样的标准固溶热处理(1 300 °C/2 h)。热处理完成后对样品进行宏观腐蚀,观察冷变形部位表面再结晶缺陷的宏观形貌特征。再将样品沿各个加载位置中心位置剖开,将剖面进行打磨、抛光和腐蚀。用NIKON MM-400光学显微镜(OM)进行金相组织观察并测量再结晶的最大深度,用FEI Quanta 650扫描电镜观察再结晶部位的微观形貌。

2 结果与分析

2.1 再结晶程度对比分析

表4列出了各个压痕变形样品(A、B和C)中各个加载点经过退火和标准固溶热处理后的纵截面金相组织。从表中可以看到,所有样品进行过压痕变形的部位均出现了再结晶的现象。为对再结晶的程度进行量化,用金相显微镜测量了样品各检测点纵截面上再结晶的深度 H ,并标在表4的各个相应图片上。从中可以发现,随着加载压力 P 的增大,加载点压痕越来越深,特别是表中最后一行的检测点5施加了最大载荷150 kgf,图中显示出了特别明显的凹形断面。样品各个检测点的再结晶深度 H 远大于压痕深度,且随着载荷 P 的增加而明显增加。样品承受载荷发生塑性变形,积累了大量储存能。随着载荷的增加,样品压痕深度增加,表明塑性变形量和积累的储存能越多。储存能是发生再结晶的动力,故载荷大小与再结晶程度存在必然的联系。

表5汇总了各个压痕变形样品中各个检测点的再结晶深度 H 。表中的图号对应于表4中各检测点的照片编号,以便于与表4中的金相组织进行对照。

采用表5中的数据绘制了再结晶深度 H 随加载压力 P 大小变化的曲线(图3)。总体来说,各个样品的 H 值随着 P 值的增加而明显增加,但在不同的阶段又呈现不同的变化特征。

(1)在加载压力较小时($P \leq 60$ kgf),三个样品发生再结晶的程度都很小,互相之间没有明显区别。这说明在压力较小时,再结晶程度主要取决于压力大小即变形程度,退火预处理没有明显作用。

(2)加载压力较大时($P \geq 100$ kgf),样品B的 H

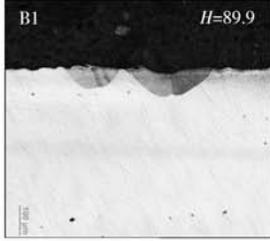
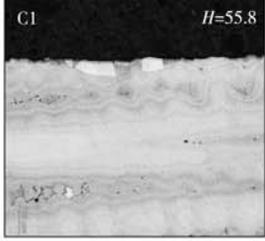
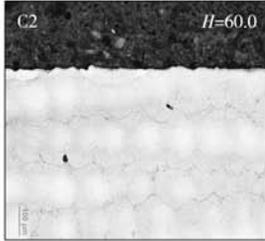
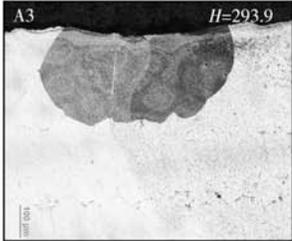
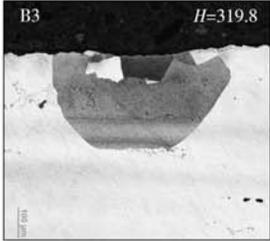
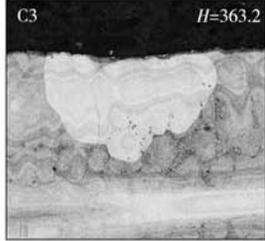
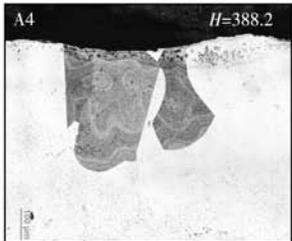
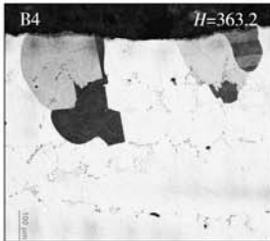
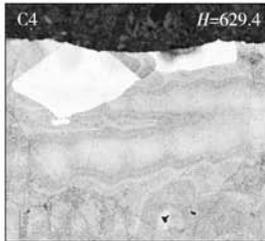
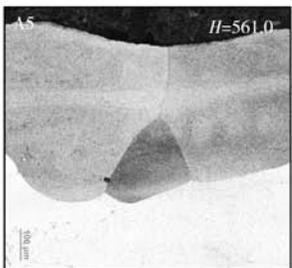
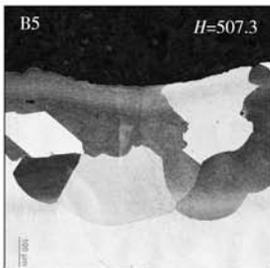
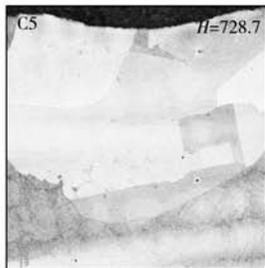
表2 样品中各检测点的加卸载荷 P
Table 2 Loading pressures on deformed points

项目	样品A	样品B	样品C	检测点(图1b)	载荷 P /kgf
各样品上的 检测点编号	A1	B1	C1	1	5
	A2	B2	C2	2	10
	A3	B3	C3	3	60
	A4	B4	C4	4	100
	A5	B5	C5	5	150
相应退火制度	A: 无退火	B: 低温退火	C: 高温退火		

表3 固溶前的退火制度
Table 3 Annealing process before solution heat treatment

A(对照)	B(低温退火)	C(高温退火)
无退火	980 °C/20 h	1 100 °C/1 h+1 200 °C/1 h+1 150 °C/0.5 h+1 250 °C/0.5 h+1 200 °C/0.5 h+1 250 °C/0.5 h+1 200 °C/0.5 h+1 250 °C/0.5 h

表4 压痕变形样品各加载点热处理后的金相组织及再结晶深度 H (μm)Table 4 Microstructure and recrystallization depth H (μm) at the loading points after annealing and solution heat treatment

加载点	载荷 P/kgf	样品编号 (固溶前的退火制度)		
		A (无退火)	B (低温退火)	C (高温退火)
1	5			
				
3	60			
				
5	150			

值比对照样品A的有所减小,但幅度不大。这说明低温退火使得残余应力有所减小,导致在后续固溶处理时再结晶程度有所减轻。而样品C与对照样品A相比, H 值不但没有减小,反而明显增大。如在 $P=100\text{ kgf}$ 时,样品C与A的 H 值分别为 $629\ \mu\text{m}$ 与 $388\ \mu\text{m}$,样品C高出约62%。在 $P=150\text{ kgf}$ 时,样品C与A的 H 值分别为

$728\ \mu\text{m}$ 与 $561\ \mu\text{m}$,样品C高出约30%。究其原因可能是退火制度C的温度较高(最高 $1\ 250\ ^\circ\text{C}$),已接近DD5合金的固溶温度($1\ 300\ ^\circ\text{C}$)。那些加载压力较大即变形较大的检测点由于再结晶的动力太大,在高温下进行退火预处理时,就已经发生再结晶。在随后的固溶处理过程中,再结晶晶粒继续长大,再结晶层深

表5 样品各检测点的再结晶深度 H
Table 5 Recrystallization depth H measured at loading points

加载点	P/kgf	样品号 (固溶前退火制度)					
		A (无退火)		B (低温退火)		C (高温退火)	
		图号	$H/\mu\text{m}$	图号	$H/\mu\text{m}$	图号	$H/\mu\text{m}$
1	5	A1	44.3	B1	89.9	C1	55.8
2	10	A2	64.1	B2	117.9	C2	60.0
3	60	A3	293.9	B3	319.8	C3	363.2
4	100	A4	388.2	B4	363.2	C4	629.4
5	150	A5	561.0	B5	507.3	C5	728.7

度继续增加, 导致产生比无退火预处理的对照样品A更为严重的再结晶。

总之, 对压痕变形的样品, 当压力载荷较小时 ($P \leq 60 \text{ kgf}$), 在固溶前进行低温和高温退火预处理对再结晶都基本无影响。当载荷较大时 ($P \geq 100 \text{ kgf}$), 低温退火能起到一些减轻再结晶的作用, 而高温退火反而会增大样品再结晶的程度。这说明, 退火热处理制度需要综合考虑。若退火温度太低, 不能起到明显减轻残余应力和再结晶的作用。而太高的退火温度则会促使过早发生再结晶, 反而加重了最终再结晶的程度。

2.2 局部再结晶组织的微观观察

为进一步观察不同退火热处理制度对样品再结晶的影响, 利用扫描电镜观察了样品加载压力最大处即压痕变形最大的检测点A5、B5和C5处 (压力值 $P=150 \text{ kgf}$) 的微观形貌 (图4)。其中未进行任何预退火处理只进行标准固溶的检测点A5处再结晶微观形貌如图4a, 4b和4c所示。从图4a和4b可以看到再结晶晶粒与基体之间存在明显的晶界。图4a中黑色方框区域经放大后如图4b所示, 从图中可以看到两个再结晶晶粒内部微观组织均匀, 形成位相和大小一致的 γ' 相粒子。而在靠近再结晶晶界的基体中则存在大量的扭曲状细线条, 这些扭曲状细线条为典型的亚晶界。4b中黑色方框区域经放大后如图4c所示, 从图中可以发现亚晶界是由不规则形状的 γ' 相组成。这是因为在由高密度位错组成的亚晶界处, 由于位错的作用, γ' 相会以不规则的形状析出, 这种不规则的 γ' 相连续在亚晶界上析出, 便形成了这些扭曲线条状的亚晶界形貌。合金经冷变形后, 会在初始晶粒内产生较高密度的位错, 在热处理开始阶段, 随着加热的进行, 变形基体中会形成许多亚晶, 相邻亚晶边界上位错能够通过滑移和攀移进行转移, 使得相邻亚晶发生合并。亚晶合并后尺寸增大、位错密度增加, 从而位相差增

大, 随着亚晶合并的不断进行, 亚晶逐渐转变为大角度晶界。大角度晶界向变形基体快速迁移, 其迁移路径上的亚晶不断被合并, 形成没有畸变的新晶粒, 而在大角度晶界未扫过的基体中仍存在较多的亚晶界, 如图4b和4c所示。这与先前的一些关于高温合金中再结晶的形成与长大机制的研究结果^[14-18]相似。

在经低温退火预处理后再进行标准固溶的B5检测点的微观形貌如图4d, 4e和4f所示。从图中可以看到, 变形基体表面也出现了具有均匀微观组织的再结晶晶粒, 再结晶晶粒与基体之间存在明显的晶界, 晶界后方的基体中观察到了扭曲细线条状的亚晶界。这和未进行任何预退火处理的对照检测点A5的再结晶组织基本相同。

同样, 经高温退火预处理后再进行标准固溶的C5检测点的微观形貌 (图4g, 4h和4i) 和上述两种情况也基本一致, 在变形基体表面产生了再结晶, 再结晶晶粒与基体之间存在明显的晶界, 晶界后方的基体中均观察到了明显的亚晶界。

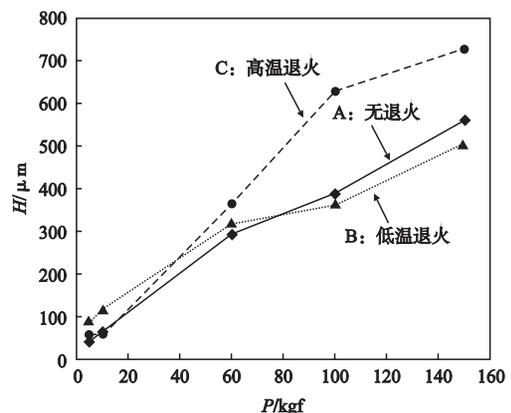


图3 不同退火制度处理后的样品中再结晶深度 H 随加载压力 P 的变化

Fig. 3 Relationship between recrystallization depth H and loading pressure P in differently annealed samples

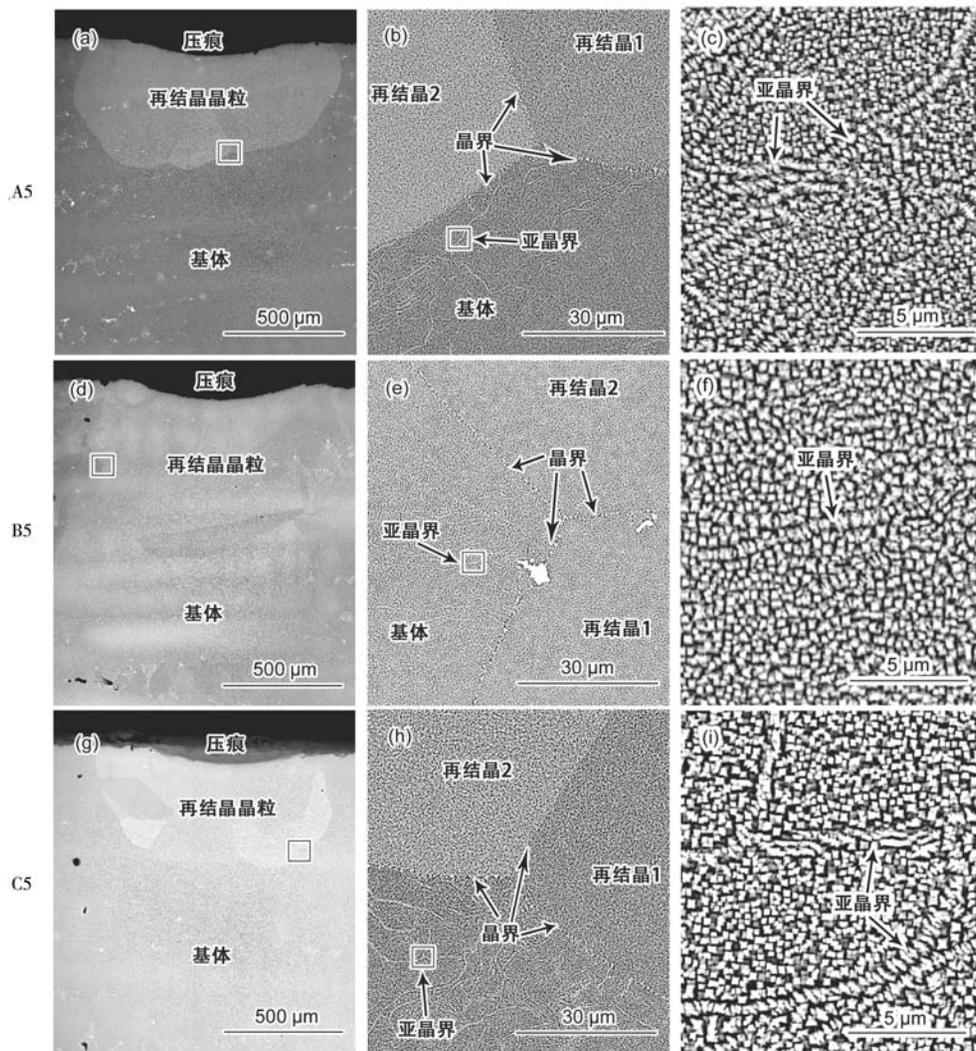


图4 不同热处理制度处理后再结晶微观形貌

Fig. 4 Recrystallization microstructure of differently annealed samples

可见，与不进行任何退火预处理的检测点A5一样，采用不同方式进行退火预处理的B5和C5均以相同的机理发生了再结晶，即再结晶均是以亚晶聚合机制形成并长大。

3 结论

(1) 对DD5单晶高温合金铸件进行了压痕变形，随着加载压力的增大，固溶热处理中再结晶深度明显增加。

(2) 当压力载荷较小时，在固溶前进行低温和高温退火预处理对再结晶基本无影响。

(3) 当压力载荷较大时，低温退火使得铸件中残余应力和最终再结晶程度有所减小。而高温退火反而会增大再结晶倾向，其原因可能是变形较大部位在退火时就已经发生再结晶。

(4) 对微观组织的观察分析表明，再结晶组织的产生和生长为亚晶聚合机制，退火预处理对此没有影响。

参考文献:

- [1] 马德新, 张琼元, 王海洋, 等. 高温合金单晶铸造中凝固条件的时空变化及对杂质缺陷的影响 [J]. 铸造, 2019, 68 (2): 103-109.
- [2] 马德新, 王富, 孙洪元, 等. 高温合金单晶铸件中杂质缺陷的实验研究 [J]. 铸造, 2019, 68 (6): 558-566.
- [3] 马德新, 王富, 孙洪元, 等. 高温合金单晶铸件中条纹晶缺陷的实验观察 [J]. 铸造, 2019, 68 (6): 567-573.
- [4] MA D, DONG Z, WANG F, et al. A phenomenological analysis of freckling in directional solidification of Ni-base superalloys: the role of edge and curvature in casting components [J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 2020, 51A (1): 88-92.
- [5] 马德新, 王富, 徐维台, 等. 高温合金单晶铸件中条纹晶形成机制的研究 [J]. 金属学报, 2020, 56 (3): 301-310.

- [6] PORTER A J, RALPH B. The recrystallization of nickel-base superalloys [J]. *Journal of Materials Science*, 1981, 16 (3): 707-713.
- [7] PORTER A J, RALPH B. Recrystallization of a nickel-base superalloy: Kinetics and microstructural development [J]. *Materials Science & Engineering*, 1983, 59 (1): 69-78.
- [8] BOND S D, MARTIN J W. Surface recrystallization in a single crystal nickel-based superalloy [J]. *Journal of Materials Science*, 1984 (19): 3867-3872.
- [9] 卫平, 李嘉荣, 钟振纲. 一种镍基单晶高温合金的表面再结晶研究 [J]. *材料工程*, 2001 (10): 5-8.
- [10] COX D C, ROEBUCK B, RAE C M F, et al. Recrystallisation of single crystal superalloy CMSX-4 [J]. *Metal Science Journal*, 2013, 19 (4): 440-446.
- [11] 陶春虎, 张卫方, 施惠基, 等. 定向凝固高温合金的再结晶 [M]. 北京: 国防工业出版社, 2007, 187.
- [12] 郑运荣, 阮中慈, 王顺才. DZ22合金的表层再结晶及其对持久性能的影响 [J]. *金属学报*, 1995 (31增刊): 325-330.
- [13] JO C Y, CHO H Y, KIM H M. Effect of recrystallization on microstructural evolution and mechanical properties of single crystal nickel based superalloy CMSX-2 Part 1-Microstructural evolution during recrystallization of single crystal [J]. *Materials Science & Technology*, 2003 (19), 1665-1670.
- [14] SALKELD R W. Preparation of single crystal superalloy for postcasting heat treatment: U. S. , 5413648 [P]. 1995-5-9.
- [15] 梁兴华, 周克蕊, 刘敏, 等. NiCoCrAlYTa涂层/镍基单晶高温合金界面再结晶 [J]. *稀有金属材料与工程*, 2009, 38 (3): 545-548.
- [16] 陶杰, 姚正军, 薛烽. 材料科学基础 [M]. 北京: 化学工业出版社, 2006, 235.
- [17] 张兵. 单晶高温合金的再结晶及其损伤行为研究 [D]. 北京: 中国航空研究院, 2009.
- [18] BÜRGEL R, PORTELLA P D, PREUHS J. Recrystallization in single crystals of nickel base superalloys [C]//*Superalloys 2000*. Warrendale: TMS, 2000: 229-238.
- [19] 刘丽荣. 一种镍基单晶高温合金的微观组织及蠕变性能的研究 [D]. 沈阳: 中科院金属研究所, 2004.
- [20] 刘丽荣, 彭志江, 林佳新, 等. DD6单晶高温合金再结晶形核位置和机制研究 [J]. *铸造*, 2014, 63 (11): 1142-1145.
- [21] CAHN R W. *Physical Metallurgy* [M]. New York: Elsevier Science BV, 1996: 2410-2416.
- [22] 胡震祥, 蔡珣, 戎咏华. 材料科学基础 [M]. 上海: 上海交通大学出版社, 2000: 193.
- [23] 刘丽荣, 祖国庆, 金涛, 等. 单晶高温合金再结晶形核条件及长大机制 [J]. *材料热处理学报*, 2013 (34): 38-41.

Effect of Annealing Pretreatment on Recrystallization Behavior of Single Crystal Superalloy Castings

ZHAO Yun-xing¹, MA De-xin^{1,2}, XU Fu-ze^{1,2}, XU Wei-tai¹, LI Zhong-xing¹

(1. Wedge Central South Research Institute, Shenzhen 518045, Guangdong, China; 2. Central South University, Changsha 410083, Hunan, China)

Abstract:

In order to investigate the effect of annealing process on the recrystallization behavior, the as-cast samples of single crystal superalloy DD5 were locally deformed by applying different loading pressures. Before solution heat treatment, the deformed samples were pretreated with two different annealing processes, called as LTA (lower temperature annealing) and HTA (higher temperature annealing) respectively. It was found that the recrystallization layer formed during solution treatment became thicker significantly with an increase in the loading pressure. For the samples deformed under smaller loads, both annealing processes had little influence on the recrystallization layer thickness. For the samples with larger loads, the recrystallization depth in the LTA samples was slightly reduced due to the correspondent release of the residual stress. In the HTA samples, however, the recrystallization became even serious. The reason may be that the temperature in HTA process is high enough to promote the recrystallization even during the annealing pretreatment. The observation on the recrystallization microstructure confirmed that the formation mechanism of recrystallization is the sub-crystalline polymerization, without influence of the annealing process before solution treatment.

Key words:

superalloy; single crystal casting; annealing heat treatment; recrystallization