

不同工艺条件对激光熔化多道沉积 DD5 单晶 高温合金杂晶的影响

刘小欣^{1,2}, 程 序^{1,2}, 王华明^{1,2}, 李 佳^{1,2*}

¹北京航空航天大学大型金属构件增材制造国家工程实验室, 北京 100191;

²北京航空航天大学材料科学与工程学院, 北京 100191

摘要 研究了基材热处理态和激光扫描速率对多道沉积 DD5 单晶高温合金沉积道内的杂晶(SGs)形核位置及数量的影响,探讨了不同条件下杂晶的形成机理。结果表明,当激光扫描速由 5 mm/s 增大到 20 mm/s 时,沉积道顶部的柱状晶-等轴晶转变(CET)导致杂晶数目减少;采用固溶方式处理基材时,沉积道底部杂晶的尺寸和数量较铸态基材的明显减小;沉积道之间的相互搭接不会产生新的杂晶;当采用固溶态基材、激光扫描速率为 20 mm/s 时,基本可以得到无杂晶的多沉积道搭接界面。

关键词 激光技术; 激光熔化沉积; 单晶高温合金; 杂晶形成; 多道沉积; 显微组织

中图分类号 TG113; TG132.3

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201744.0602009

Influence of Processing Conditions on Formation of Stray Grains in DD5 Single-Crystal Superalloys by Laser Melting Multi-Traced Deposition

Liu Xiaoxin^{1,2}, Cheng Xu^{1,2}, Wang Huaming^{1,2}, Li Jia^{1,2}

¹National Engineering Laboratory of Additive Manufacturing for Large Metallic Components, Beihang University, Beijing 100191, China;

²School of Materials Science and Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China

Abstract The influences of the substrate as-heat-treated condition and the laser scanning speed on the nucleation position and the number of stray grains (SGs) in multi-traced deposition of DD5 single-crystal superalloys are studied. The formation mechanism of SGs under different conditions is also investigated. The results show that, when the laser scanning speed increases from 5 mm/s to 20 mm/s, the number of SGs decreases as a result of the columnar to equiaxed transition (CET) on the top of deposition traces. As for the solution-treated substrates, the number and the sizes of SGs at the bottom of the deposition traces are obviously smaller than those for the casted substrates. The overlapping among deposition traces does not create new SGs. When the solution-treated substrates are used and the laser scanning speed is 20 mm/s, an overlapping interface without SGs by multi-traced deposition can be achieved.

Key words laser technique; laser melting deposition; single-crystal superalloy; formation of stray grains; multi-traced deposition; microstructure

OCIS codes 140.3390; 160.3900; 350.3390

1 引 言

镍基单晶高温合金因其优异的高温综合性能而被用于制备航空发动机中的涡轮叶片^[1-2]。近年来,为提

收稿日期: 2017-03-10; 收到修改稿日期: 2017-04-06

基金项目: 国家 863 计划(2014AA041701)

作者简介: 刘小欣(1992—),男,硕士研究生,主要从事激光材料加工制造方面的研究。E-mail: liuwx@buaa.edu.cn

导师简介: 王华明(1962—),男,教授,博士生导师,主要从事激光材料加工制造方面的研究。

E-mail: wanghm@buaa.edu.cn

* 通信联系人。E-mail: lijia@buaa.edu.cn

高叶片修复速率,降低维护成本,激光熔化沉积(LMD)技术被用于修复叶片在铸造和服役过程中形成的缺陷^[3]。同时,激光沉积过程中的高温梯度及极快的冷却速率^[4],可使修复部位具有很细的合金组织^[3,5-7]及较低的宏观偏析^[8-9],从而提高修复部位的力学性能。

然而,在采用 LMD 修复单晶叶片过程中,除形成<001>择优取向树枝晶外^[10-13],还易在沉积道内形成异取向杂晶。在热应力作用下,杂晶晶界处易产生热裂纹^[14-16],同时杂晶的存在也会影响合金的耐高温性能^[17-18]。LMD 条件对沉积道内杂晶的形成有显著影响。Mokadem 等^[19]研究了基材中晶粒的晶体学取向对沉积道内杂晶的影响,认为基材中柱状晶的[001]取向与热流的夹角越大,在熔池中形成杂晶的倾向性就越大。Liu 等^[20]研究了激光功率和扫描速率对 Ni₃Al 基单晶高温合金沉积道内凝固组织的影响,认为较低的功率和扫描速率有利于减少沉积道内杂晶数目和凝固裂纹。Gäumann 等^[21]在单晶外延生长-激光金属成型的研究中分析了基材预热温度对沉积道内杂晶的影响,认为基材预热降低了熔池内的温度梯度,有利于杂晶的形成。但是,之前的这些工作主要集中于研究激光工艺参数对单道沉积过程中沉积道内杂晶数目的影响,而关于 LMD 多道沉积道内杂晶的形成原因及其影响因素的研究鲜有报道。

本文通过开展激光 LMD 单晶高温合金试验,探究了激光扫描速率和基材热处理状态对 LMD 多道沉积道内杂晶形成的影响,分析了不同位置的杂晶成因,优化了沉积工艺,为工业上降低沉积道杂晶含量、修复叶片缺陷提供了一定的参考。

2 试验过程

2.1 材料制备

试验以 SRR99 第一代镍基单晶高温合金为基材,其化学成分见表 1,将其切割成尺寸为 60 mm × 12 mm × 5 mm 的合金板条,其中一部分板条进行 1300 °C 保温 4 h 的固溶处理。选用 DD5 镍基高温合金粉末为沉积材料,粉末粒度为 60~200 目(74~250 μm)。采用德国罗芬公司生产的 5 kW Rofin CO₂ 激光器进行沉积试验,气氛为高纯氩气,沉积时沿着基材表面(100)晶面的[001]方向进行激光熔化双道单向沉积,其沉积方向如图 1 所示。激光扫描速率 V_b 分别为 5, 10, 20 mm/s,激光功率为 2500 W,激光束斑直径为 2~4 mm,试验参数见表 2。

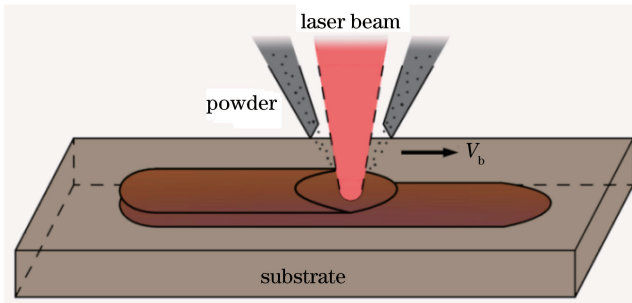


图 1 激光熔化多道沉积 DD5 镍基高温合金简图

Fig. 1 Schematic diagram of DD5 Ni-based superalloys by laser melting multi-traced deposition

表 1 SRR99 合金和 DD5 合金的化学成分(质量分数,%)

Table 1 Chemical compositions of SRR99 and DD5 alloys (mass fraction, %)

Alloy	C	Cr	Co	Mo	W	Ta	Al	Ti	Re	Hf	Ni
SRR99	0.03	8.39	5.01	—	9.47	2.92	5.47	2.14	—	—	Bal.
DD5	0.05	7.0	7.5	1.5	5.0	6.5	6.2	—	2.6	0.15	Bal.

2.2 材料表征

选取与基材(001)晶面平行的单道和双道搭接截面进行线切割,经砂纸打磨后进行机械抛光、腐蚀(腐蚀剂配方为 5 g 硫酸铜,50 mL 去离子水及 50 mL 盐酸),腐蚀后的表面在德国莱卡公司生产的 Lacia4000 金相显微镜下进行显微组织观察,每组试验 4 个。选取其中的试样 C2、S2、C3 和 S3 进行取向成像显微镜(OIM)分析,对沉积道内的杂晶比例进行统计。

表 2 DD5 高温合金 LMD 试验的工艺参数

Table 2 Process parameters in LMD of DD5 superalloy experiment

Sample	Substrate	Scanning speed /(mm/s)	Power /kW	Overlap ratio
C1	Cast	5	2.5	0.7 ± 0.05
S1	Solution treatment	5	2.5	0.7 ± 0.05
C2	Cast	10	2.5	0.7 ± 0.05
S2	Solution treatment	10	2.5	0.7 ± 0.05
C3	Cast	20	2.5	0.7 ± 0.08
S3	Solution treatment	20	2.5	0.7 ± 0.08

3 试验结果

3.1 单次沉积

不同条件下单沉积道的金相照片如图 2 所示,可以发现,LMD 镍基单晶高温合金单沉积道内的凝固组织为具有类似定向凝固组织的超细胞状树枝晶(二次枝晶臂不发达)。LMD 过程在熔池中形成了非常高的正向温度梯度,导致沉积道内形成了具有定向凝固组织特征的树枝晶^[11-12]。此外,因为合金的一次枝晶间距与其冷却速率成反比,且 LMD 过程中的冷却速率非常快,所以沉积道内形成的胞状树枝晶尺寸较铸态基材的细小^[17]。在沉积道的顶部和底部观察到了杂晶,且顶部杂晶一般为等轴状,而底部杂晶为柱状。根据图 3 所示的单沉积道内显微组织的 OIM 图可知,沉积道内的杂晶晶体学取向与基材[001]取向夹角各不相同,最大可达 58.2° ;在凝固过程中,低熔点共晶液相在杂晶晶界处富集,形成液膜,这些液膜容易在凝固后期被沉积过程产生的热应力拉开,产生凝固裂纹^[15]。杂晶面积占沉积道截面面积的比例如图 4 所示。从图 4(a)可以看出,随着激光扫描速率的增加,沉积道顶部杂晶的面积比例降低,以铸态基材为例,顶部杂晶的面积比例从激光扫描速率为 5 mm/s 时的 13.2%降低至 20 mm/s 时的 1.3%;当采用固溶处理的基材时,如图 4(b)所示,沉积道底部杂晶的面积比例和数量较采用铸态基材的明显减小,但沉积道顶部杂晶的数目、形态及数目几乎无变化。当采用固溶处理、激光扫描速率为 20 mm/s 时,沉积道中杂晶数目最少。

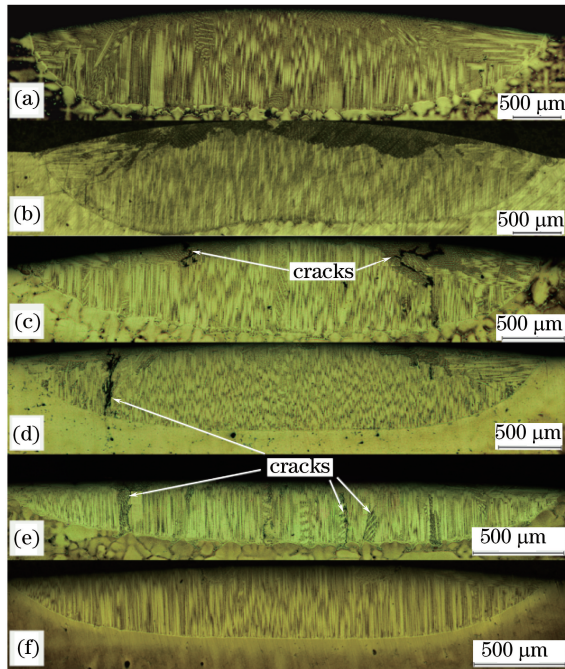


图 2 不同条件下单沉积道金相照片。(a)扫描速率 5 mm/s,试样 C1;(b)扫描速率 5 mm/s,试样 S1;(c)扫描速率 10 mm/s,试样 C2;(d)扫描速率 10 mm/s,试样 S2;(e)扫描速率 20 mm/s,试样 C3;(f)扫描速率 20 mm/s,试样 S3

Fig. 2 Metallographs of single-traced deposition under different conditions. (a) Scanning speed of 5 mm/s, sample C1; (b) scanning speed of 5 mm/s, sample S1; (c) scanning speed of 10 mm/s, sample C2; (d) scanning speed of 10 mm/s, sample S2; (e) scanning speed of 20 mm/s, sample C3; (f) scanning speed of 20 mm/s, sample S3

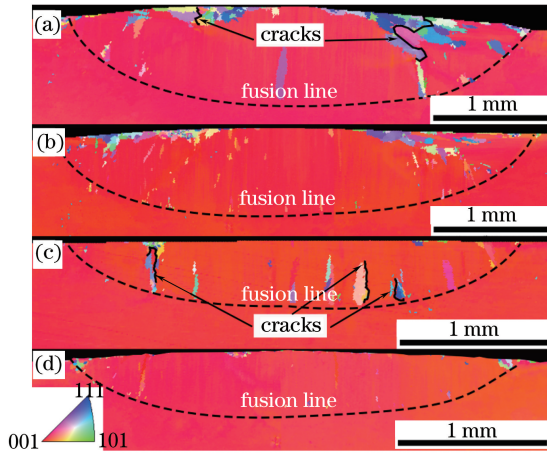


图 3 单沉积道内显微组织的 OIM 图。(a)扫描速率 10 mm/s,试样 C2;(b)扫描速率 10 mm/s,试样 S2;(c)扫描速率 20 mm/s,试样 C3;(d)扫描速率 20 mm/s,试样 S3

Fig. 3 OIM images of microstructures in single-traced deposition. (a) Scanning speed of 10 mm/s, sample C2; (b) scanning speed of 10 mm/s, sample S2; (c) scanning speed of 20 mm/s, sample C3; (d) scanning speed of 20 mm/s, sample S3

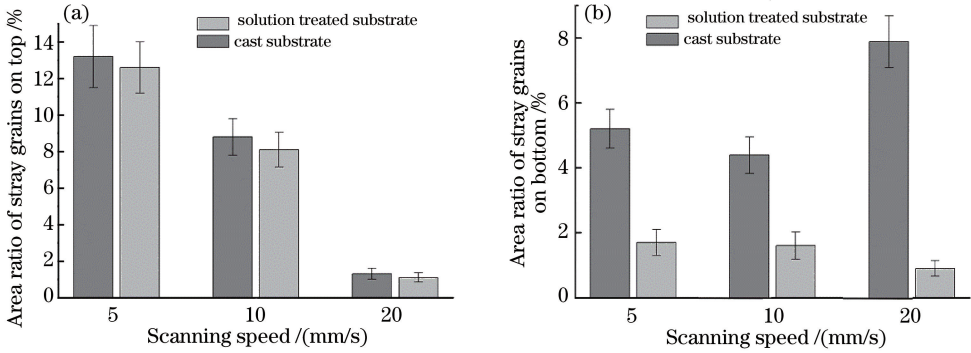


图 4 (a)顶部和(b)底部的杂晶面积比

Fig. 4 Area ratio of stray grains on (a) top and (b) bottom

3.2 多道次沉积

图 5 所示是多道次沉积不同条件下的沉积道内显微组织,其中每幅图中红色方框内的 OIM 图放在相应图片的右侧,SGs 代表杂晶。可以看出,多道次沉积时,沉积道内杂晶出现的位置与单道沉积时的相似,主要存在于沉积道底部和顶部。当增大扫描速率度时,搭接沉积道顶部的杂晶面积比例减小。对比图 5(a)~(c)的 OIM 图,发现不同沉积道内与搭接界面接触的杂晶晶体学取向相同,第二道中的杂晶是第一道沉积道未被完全重熔的杂晶通过搭接界面外延生长形成的。

4 讨 论

扫描速度对沉积道顶部杂晶的影响如图 2 和图 4(a)所示,当基材为铸态和固溶处理态时,沉积道顶部杂晶的面积比例随着激光扫描速率的增大而逐渐减小。根据 Gäumann 等^[22]的研究,沉积道顶部的杂晶主要源于柱状晶-等轴晶转变(CET),即固液界面前沿的过冷度达到临界形核过冷度时发生的等轴晶形核:

$$\frac{G^n}{V} = b \cdot \left[\frac{3 \sqrt{-4\pi N_0}}{\sqrt{3 \ln(1-\varphi)}} \cdot \frac{1}{n+1} \right]^n, \quad (1)$$

式中 φ 为杂晶体积分数, a 、 b 为与材料相关的常数, N_0 为形核率, G 为温度梯度, V 为固液界面凝固速率,材料有关常数 n 取 3.4。化简得

$$\varphi = 1 - a \cdot \exp \left[(-N_0) \left(\frac{V}{G^{3.4}} \right)^{3/3.4} \right]. \quad (2)$$

在激光沉积过程中,沉积道顶部的温度梯度 G 最小而生长速度 V 最大,易发生 CET^[3,21]。随着扫描速

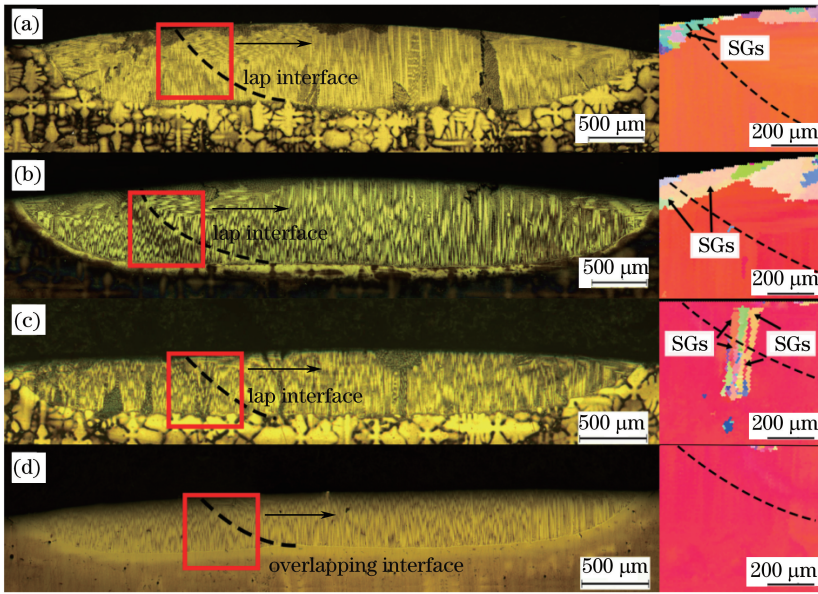


图 5 不同条件下多道沉积道内显微组织。(a)扫描速率 10 mm/s,试样 C2;(b)扫描速率 10 mm/s,试样 S2;
(c)扫描速率 20 mm/s,试样 C3;(d)扫描速率 20 mm/s,试样 S3

Fig. 5 Microstructures in multi-traced deposition under different conditions. (a) Scanning speed of 10 mm/s, sample C2;
(b) scanning speed of 10 mm/s, sample S2; (c) scanning speed of 20 mm/s, sample C3;
(d) scanning speed of 20 mm/s, sample S3

率的增大,激光与材料作用时间变短,熔池变浅,影响杂晶形成的主要因素即温度梯度 G 增大,由(2)式可知,杂晶的体积分数减小^[15,22-23]。因此,当激光扫描速率由 5 mm/s 增大到 20 mm/s 时,沉积道顶部的杂晶面积比例降到 1.3% 以下。

基材状态对沉积道底部杂晶的影响如图 3、图 4(b)及图 5 所示,采用固溶处理的基材,其沉积道底部杂晶含量明显减小。图 6(a)所示为沉积道底部部分杂晶的局部放大图,通过对沉积道底部的显微组织观察可以发现,在铸态沉积道底部杂晶处存在具有和重熔界面相同的平面状凝固组织区域。经图 6(b)所示的 OIM 分析可知,此区域的晶体学取向与周围部分杂晶的相同,因此推测该区域为基材碎片。铸态单晶基材沉积道底部的杂晶形成过程如图 7 所示。铸态单晶基材枝晶干和枝晶间存在的成分差异,导致枝晶干具有较高的初熔温度,而枝晶间的共晶组织具有较低的初熔温度^[17]。可推测在 LMD 过程中,部分枝晶间区域会首先熔化,导致枝晶臂脱离,这些脱离的枝晶臂具有与基材不同的晶粒取向,在合金凝固时作为形核核心,形成异取向杂晶,导致铸态基材沉积道底部的杂晶数目明显大于经过均匀化处理的固溶态基材的。

沉积道搭接对杂晶的影响如图 5 所示。可以发现,在不同沉积条件下,沉积道搭接界面的杂晶均来自上一沉积道内杂晶的外延生长,即多道沉积试验中沉积道搭接处没有观察到新杂晶的产生,这是由于激光沉积的组织具有很低的成分偏析^[24],故树枝晶碎片脱离基材困难,不易形成杂晶。因此,通过改变激光扫描速率和采用固溶处理基材来消除沉积道顶部和底部杂晶,才是得到无杂晶沉积道搭接界面的关键。

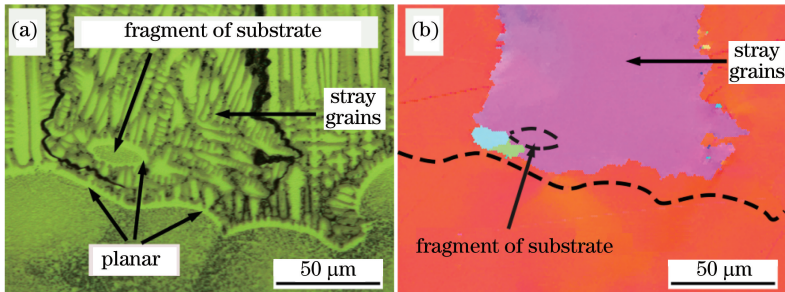


图 6 铸态单晶基材沉积道底部的杂晶 (a)金相照片和(b) OIM 图

Fig. 6 (a) Metallograph and (b) OIM image of stray grains on bottom of deposition traces in casted single-crystal substrates

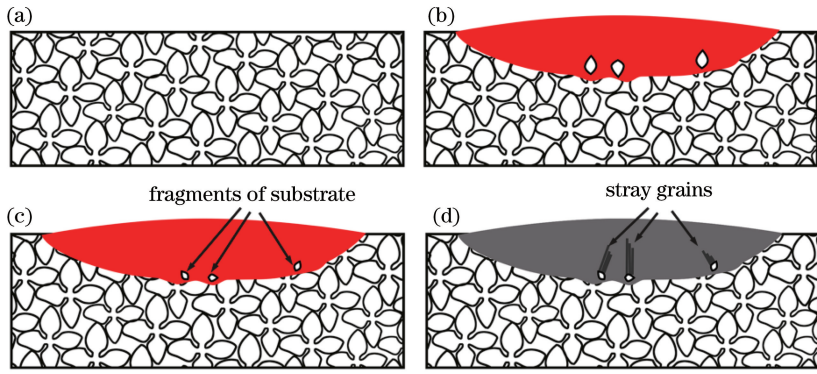


图 7 脱离基材的枝晶碎片形成杂晶的过程简图。(a)铸态基材的显微组织简图；(b)基材的碎片脱离基材；(c)基材碎片继续熔化并随熔体移动；(d)基材的枝晶碎片作为形核核心形成杂晶

Fig. 7 Schematic diagram of stray grains formation by dendritic fragments detached from casted substrates. (a) Sketch of microstructure of casted substrates; (b) dendritic fragments detached from substrates; (c) dendritic fragments continued to melt and moved with melt flowing; (d) dendritic fragments of substrates acting as nucleus to form stray grains

5 结 论

研究了基材热处理状态和激光扫描速率对多道沉积 DD5 单晶高温合金沉积道内的杂晶形成位置及数量的影响规律,探讨了不同条件下杂晶形成机理,得到以下结论。

- 1) 沉积道顶部的杂晶是由 CET 造成的,且随着激光扫描速率的增大,熔池顶部的杂晶减少,当激光扫描速率为 20 mm/s 时,顶部杂晶面积比例小于 1.3%。
- 2) 在铸态基材中,杂晶主要来源于脱离基材的树枝晶碎片,未熔枝晶臂作为熔池底部的形核核心产生杂晶。采用 1300 °C, 4 h 固溶处理后的单晶基材,沉积道底部的杂晶尺寸和面积比例都减小。
- 3) 沉积道搭接具有明显的外延生长特征,在沉积道搭接界面不会产生新的杂晶。当采用固溶态基材和 20 mm/s 的激光扫描速率时,可以得到无杂晶的搭接界面,使得单晶特征由单沉积道扩展至多沉积道内。

参 考 文 献

- [1] Gel M, Duhl D N, Giamei A F. The development of single crystal superalloy turbine blades[J]. *Superalloys*, 1980, 41: 205-214.
- [2] Liu L, Huang T W, Zhang J, *et al.* Microstructure and stress rupture properties of single crystal superalloy CMSX-2 under high thermal gradient directional solidification[J]. *Materials Letters*, 2007, 61(1): 227-230.
- [3] Gäumann M, Henry S, Cleton F, *et al.* Epitaxial laser metal forming: Analysis of microstructure formation[J]. *Materials Science and Engineering: A*, 1999, 271(1): 232-241.
- [4] Li Liqun, Wang Jiandong, Wu Chaochao, *et al.* Temperature field of molten pool and microstructure analysis of laser melting deposition[J]. *Chinese J Lasers*, 2017, 44(3): 0302009.
李俐群, 王建东, 吴潮潮, 等. Ti6Al4V 激光熔化沉积熔池温度场与微观组织分析[J]. *中国激光*, 2017, 44(3): 0302009.
- [5] Li J, Wang H M. Microstructure and mechanical properties of rapid directionally solidified Ni-base superalloy Rene'41 by laser melting deposition manufacturing[J]. *Materials Science and Engineering: A*, 2010, 527(18): 4823-4829.
- [6] Wang Zhihui, Wang Huaming, Liu Dong. Microstructure and mechanical properties of AF1410 ultra-high strength steel using laser additive manufacture technology[J]. *Chinese J Lasers*, 2016, 43(4): 0403001.
王志会, 王华明, 刘 栋. 激光增材制造 AF1410 超高强度钢组织与力学性能研究[J]. *中国激光*, 2016, 43(4): 0403001.
- [7] Chen Yongcheng, Zhang Shuquan, Tian Xiangjun, *et al.* Microstructure and microhardness of 4045 aluminum alloy fabricated by laser melting deposition[J]. *Chinese J Lasers*, 2015, 42(3): 0303008.
陈永城, 张述泉, 田象军, 等. 激光熔化沉积 4045 铝合金显微组织及显微硬度[J]. *中国激光*, 2015, 42(3): 0303008.
- [8] Lin Xin, Yang Haiou, Chen Jing, *et al.* Microstructure evolution of 316L stainless steel during laser rapid forming[J].

- Acta Metallurgica Sinica, 2006, 42(4): 361-368.
- 林 鑫, 杨海欧, 陈 静, 等. 激光快速成形过程中 316L 不锈钢显微组织的演变[J]. 金属学报, 2006, 42(4): 361-368.
- [9] Zhang K, Liu W, Shang X. Research on the processing experiments of laser metal deposition shaping[J]. Optics & Laser Technology, 2007, 39(3): 549-557.
- [10] Rappaz M, David S A, Vitek J M, *et al.* Development of microstructures in Fe-15Ni-15Cr single crystal electron beam welds[J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 1989, 20(6): 1125-1138.
- [11] Yang S, Huang W, Liu W, *et al.* Development of microstructures in laser surface remelting of DD2 single crystal[J]. Acta Materialia, 2002, 50(2): 315-325.
- [12] Liu W, DuPont J N. Effects of melt-pool geometry on crystal growth and microstructure development in laser surface-melted superalloy single crystals: Mathematical modeling of single-crystal growth in a melt pool (part I) [J]. Acta Materialia, 2004, 52(16): 4833-4847.
- [13] Liu Z, Qi H. Effects of substrate crystallographic orientations on crystal growth and microstructure formation in laser powder deposition of nickel-based superalloy[J]. Acta Materialia, 2015, 87(1): 248-258.
- [14] Zhang C S, Li L, Deceuster A. Thermomechanical analysis of multi-bead pulsed laser powder deposition of a nickel-based superalloy[J]. Journal of Materials Processing Technology, 2011, 211(9): 1478-1487.
- [15] Wang N, Mokadem S, Rappaz M, *et al.* Solidification cracking of superalloy single- and bi-crystals[J]. Acta Materialia, 2004, 52(11): 3173-3182.
- [16] Dupont J N, Anderson T D. Stray grain formation and solidification cracking susceptibility of single crystal Ni-base superalloy CMSX-4[J]. Welding Journal, 2011, 90(2): 429-439.
- [17] Reed R C. The superalloys: Fundamentals and applications[M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2008.
- [18] 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 and Materials Transactions B, 2005, 36(5): 657-666.
- [19] Mokadem S, Bezençon C, Hauert A, *et al.* Laser repair of superalloy single crystals with varying substrate orientations [J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 2007, 38(7): 1500-1510.
- [20] Liu W, Dupont J N. Direct laser deposition of a single-crystal Ni₃Al-based IC221W alloy[J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 2005, 36(12): 3397-3406.
- [21] Gäumann M, Bezençon C, Canalis P, *et al.* Single-crystal laser deposition of superalloys: Processing microstructure maps[J]. Acta Materialia, 2001, 49(6): 1051-1062.
- [22] Hunt J D. Steady state columnar anequiaxed growth of dendrites and eutectic[J]. Materials Science and Engineering, 1984, 65(1): 75-83.
- [23] Anderson T D, Dupont J N, Debroy T. Stray grain formation in welds of single-crystal Ni-base superalloy CMSX-4[J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 2010, 41(1): 181-193.
- [24] Huang Taiwen, Liu Lin, Zhang Weiguo, *et al.* Influence of withdrawing rate transition on the primary dendrite arm spacing and micro-segregation of directionally solidified single crystal superalloy DD3[J]. Acta Metallurgica Sinica, 2009, 45(10): 1225-1231.
- 黄太文, 刘 林, 张卫国, 等. 抽拉速率跃迁对定向凝固单晶高温合金 DD3 一次枝晶间距和微观偏析的影响[J]. 金属学报, 2009, 45(10): 1225-1231.