

DD6 镍基单晶高温合金激光重熔区杂晶的形成机制研究

王慧君¹, 郭鹏飞^{1*}, 耿建峰¹, 许建军², 林鑫³, 于君³, 兰红波¹, 杨光⁴, 黄卫东³¹青岛理工大学山东增材制造工程技术研究中心, 山东 青岛 266520;²西北工业大学分析测试中心, 陕西 西安 710072;³西北工业大学凝固技术国家重点实验室, 陕西 西安 710072;⁴沈阳航空航天大学机电工程学院, 辽宁 沈阳 110136

摘要 研究了 DD6 镍基单晶高温合金在不同功率下重熔区内部杂晶的形成机制。碳化物的形成导致固液界面塌陷, 进而诱导杂晶的形成; 熔池顶部杂晶的产生主要与温度梯度、固液界面的迁移速率有关。激光功率升高导致温度梯度降低, 进而诱导柱状晶向等轴晶转变 (CET); 转向枝晶交汇处杂晶的产生是由枝晶交汇处的温度梯度比其他地方小以及温度梯度方向改变引起的。热应力数值模拟结果表明: 低激光功率下的热输入可以有效提高温度梯度并有效降低残余应力水平, 有利于抑制单晶修复过程中杂晶的形成。该研究可为单晶修复过程中杂晶的抑制提供理论和实验支撑。

关键词 镍基单晶高温合金; 杂晶; 单晶修复; 激光重熔

中图分类号 TG14 文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL240571

1 引言

激光增材修复技术已被广泛应用于航空零部件的修复、表面改性和制造等, 该技术可实现复杂结构的制造和修复, 并具有热输入可控等优势^[1], 已逐渐成为修复损伤单晶合金零部件的一种高效、经济的方法^[2-4]。DD6 合金是我国自主研发的第二代镍基单晶高温合金, 被广泛用于航空发动机燃烧室单晶涡轮叶片的制造。然而, 在燃烧室高温、高压、高应力等恶劣的服役条件下, 单晶涡轮叶片常常面临顶端边缘磨损、开裂、蚀坑等损伤难题, 当损伤尺寸达到 1% 时就必须实施修复或替换, 不仅降低了其使用寿命, 还增加了使用成本^[5-6]。目前, 单晶涡轮叶片通常采用定向凝固法在螺旋选晶器中制造, 整体工艺复杂, 废品率高。此外, 现有的钎焊、TIG 焊等修复工艺容易引起热变形, 难以修复复杂或精细结构。因此, 单晶涡轮叶片无论是制造还是修复, 都面临着极高的成本。近几十年来发展起来的激光增材修复技术使用微细激光束熔化金属粉末, 逐点逐道逐层堆积成形, 形成的熔池内部具有较高的温度梯度和凝固速率, 可为晶粒的定向生长提供良好的冶金条件, 进而为受损单晶叶片的修复提供了新思路和新方法, 具有重大的工程应用价值^[7]。

近年来, 国内外学者围绕着激光增材修复单晶组织开展了一系列研究并取得了丰硕成果, 他们主要通过工艺试验和数值模拟的方法阐述激光工艺参数和不同基底取向对熔池内杂晶形成的影响。另外, 还有学者研究了熔池内部流动对晶体定向生长偏转的影响。在激光工艺参数方面: Gäumann 等^[8]最先通过试验证实了激光增材修复 CMSX-4 单晶高温合金的可能性, 并建立了熔池内温度梯度和凝固速率等工艺参数与柱状晶向等轴晶转变 (CET) 的判据; Vitek 等^[9]结合温度场分析模型与成分过冷理论研究了激光重熔过程中工艺参数对熔池内部杂晶形成的影响, 结果表明熔池内杂晶的形成与温度梯度、凝固速度有关; Anderson 等^[10-11]利用数值模拟研究了激光工艺参数对 CMSX-4 合金杂晶形成的影响, 结果表明较小的激光功率和较大的扫描速率可以抑制杂晶的形成, 同时他们发现杂晶能够在不同生长方向枝晶的交汇处形成。在不同的基底取向方面: Wang 课题组^[12-13]在 Anderson 等的基础上对国产 DD6 单晶高温合金进行了激光熔凝试验, 结果发现激光修复单晶高温合金 (111) 晶面的最佳取向是绕 [112] 晶体学方向旋转 60°; 荣鹏等^[14]以 DD6 镍基单晶高温合金为研究对象, 提出了一种基体绕 [010] 方向旋转 45°、再沿 [001] 方向旋转不同角度的修复单晶

收稿日期: 2024-02-01; 修回日期: 2024-03-13; 录用日期: 2024-04-02; 网络首发日期: 2024-04-15

基金项目: 山东自然科学基金 (ZR2020ZDD04)、国家自然科学基金 (U22A20189, 52005280)

通信作者: *dr2019guopf@163.com

合金的新方法,并通过该方法获得了可使熔池一侧只存在单一晶区的基体取向;Guo等^[15]发现DD6单晶高温合金的(011)平面对杂晶的抑制效果最好,并发现杂晶更容易在枝晶交汇处形成。在熔池内部流动方面:Yu等^[16]利用双向耦合模型建立了Inconel 718合金的枝晶生长模型,结果表明熔池流动会促进熔池边界枝晶方向发生偏转,同时也会促进杂晶的形成;Wang等^[17]通过激光增材修复在单晶衬底上成功实现了单晶的外延生长,同时他们发现熔池内部流动可使枝晶生长方向发生偏转,并且枝晶偏转角度超过了 20° 。

不难看出,激光增材修复单晶组织的杂晶缺陷形成机制已有广泛研究,但大多数研究聚焦于工艺参数对杂晶的影响,对于熔池底部和熔池边界熔合线处以及转向枝晶交汇处的杂晶,人们仅在改变基体取向这一方面进行了研究。另外,人们对杂晶产生机制的研究大多集中在柱状晶向等轴晶转变上,对镍基单晶高温合金修复过程中碳化物的析出以及转向枝晶交汇处杂晶的形成机制还有待完善,还有待进一步从本质上揭示杂晶在熔池内不同位置的形成机制。因此,笔者选择DD6第二代镍基单晶高温合金作为基底材料,使用1200 W和1500 W激光对基底进行重熔,揭示熔池内熔合线处、熔池顶部以及转向枝晶交汇处杂晶的形成机制,为激光增材修复镍基单晶高温合金提供理论基础和技术支持。

2 试验材料与试验方法

2.1 试验材料

基底材料采用国产第二代镍基单晶高温合金(牌号:DD406),为了表述方便,本文将简称为DD6合金。该合金采用定向凝固工艺制备而成,其名义化学成分如表1所示。整个定向凝固过程在真空中进行,炉

内上区温度为 1490°C ,下区温度为 1550°C 。成形过程中采用 6 mm/min 的恒定抽拉速率,而后采用 $1290^\circ\text{C}\times 1\text{ h}+1300^\circ\text{C}\times 2\text{ h}+1315^\circ\text{C}\times 4\text{ h/AC}+1120^\circ\text{C}\times 4\text{ h/AC}+870^\circ\text{C}\times 32\text{ h/AC}$ 的标准热处理制度(AC:空冷),其成形尺寸为 $40\text{ mm}\times 10\text{ mm}\times 10\text{ mm}$ 。用砂纸逐级打磨材料表面至600目,然后将其置于无水乙醇中超声清洗5 min,直至表面洁净,而后吹干备用。

表1 DD6镍基单晶高温合金的名义化学成分

Table 1 Nominal-chemical composition of DD6 nickel-based single crystal superalloy

Element	Mass fraction / %
Al	5.6
C	0.03
Cr	4.3
Hf	0.05
Co	9.0
W	8.0
Mo	2.0
Ta	7.5
Re	2.0
Nb	0.5
Ni	Bal.

激光熔覆增材设备搭载了2 kW的德国Rofin光纤耦合半导体激光器,如图1(a)所示,其输出波长为 $900\sim 1070\text{ nm}$,电源采用三相 $380\text{ V}(\pm 10\%)$, $50/60\text{ Hz}$,聚焦光斑直径为4 mm。依据表2中的试验参数使用激光熔覆系统在基底(001)晶面上进行单道重熔实验。为了防止试样被氧化,重熔过程中采用氩气作为保护气体,氩气流量为 10 L/min 。激光重熔工作原理如图1(b)所示,实物图如图1(c)所示。

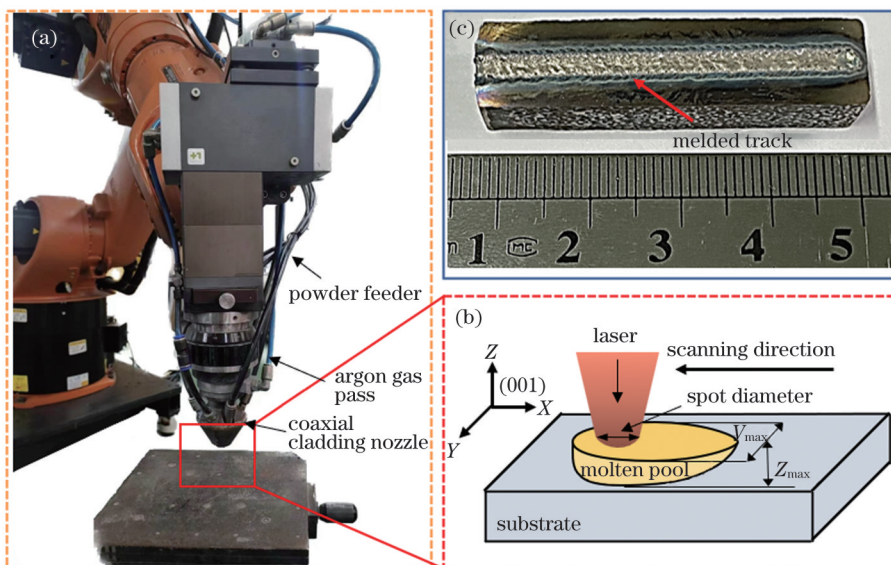


图1 激光重熔试验。(a)激光熔覆设备;(b)熔池示意图;(c)成形单道实物图

Fig. 1 Laser remelting test. (a) Laser cladding equipment; (b) molten pool diagram; (c) map of formed single-track

表 2 激光重熔工艺参数

Table 2 Laser remelting process parameters

Number	Laser power /W	Scanning speed /($\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$)	Focusing spot diameter /mm	Line energy density /($\text{J}\cdot\text{m}^{-1}$)
A	1200	3	4	4×10^5
B	1500	3	4	5×10^5

2.2 分析测试方法

使用电火花线切割机将带单道试样的基底切割成尺寸为 $10\text{ mm}\times 10\text{ mm}\times 10\text{ mm}$ 的方块,接着用砂纸逐级打磨其表面至 2000 目,随后在金相抛光机上将其表面抛光至镜面,最后用腐蚀液 ($1.5\text{ g FeCl}_3+10\text{ mL HCl}$) 腐蚀其表面 $10\sim 15\text{ s}$ 。用 OLYMPUS DSX510 光学显微镜观察基材和重熔区的枝晶形貌,用扫描电镜 (SEM) 和 X 射线能谱仪 (XRD) 分析基材和重熔区的熔池形貌及元素分布。为了便于对试样纵截面进行电子背散射衍射 (EBSD) 晶体学分析,对试样依次进行机械粗磨、机械抛光、氩离子束面抛光等处理,EBSD 测试过程中试样的倾转角度为 70° ,扫描步长为 $3\text{ }\mu\text{m}$,标定相为镍;采用 HKL Channel 5 后处理软件对

试样的织构和取向差进行分析。

3 分析与讨论

3.1 熔池形貌与枝晶形态

DD6 合金基材的微观组织对激光重熔组织的形态具有重要作用。通过光学显微镜分别获得基底水平和垂直截面的显微形貌图,并以三维形式进行展示,如图 2(a) 所示。可以看出,大量柱状晶沿基底垂直方向定向生长。进一步,采用电镜对枝晶干区域进行分析,其组织由 γ 基体相和 γ' 强化相两相组成,并且 γ' 强化相均匀弥散分布在 γ 基体相中,与其他热处理态镍基高温合金的组织相似,如图 2(b) 所示。

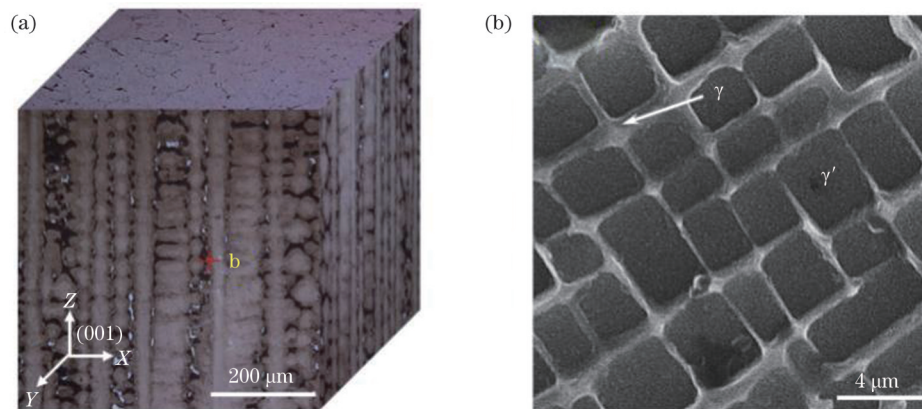


图 2 基底 DD6 镍基单晶高温合金的微观形貌。(a) 基底的光学显微形貌图;(b) 电镜采集的枝晶干的相组成

Fig. 2 Microstructures of DD6 nickel-based single crystal superalloy. (a) Morphology of the substrate collected by optical microscopy; (b) phase composition of dendritic collected by electron microscopy

图 3 是 1200 W 和 1500 W 下激光重熔后的熔池形貌和晶粒形态。根据晶粒的生长方向,熔池可划分为 $[001]$ 、 $[100]$ 、 $[010]$ 和 $[0\bar{1}0]$ 晶区共 4 个区域。当激光功率为 1200 W 时,熔池底部晶粒的生长方向与基底晶粒一致,即沿 $[001]$ 晶向外延生长,如图 3(b) 所示;在熔池两侧分别存在 $[010]$ 和 $[0\bar{1}0]$ 晶区,即晶粒沿水平方向生长。需要指出的是,这两个区域的柱状枝晶并不是严格地沿着水平方向生长,而是沿着激光扫描方向发生了偏移。另外,在 $[001]$ 与 $[0\bar{1}0]$ 界面处出现了明显的杂晶(如图 3(d) 所示),对应的 θ 角(熔合线切线与水平面的夹角)的范围为 $30^\circ\sim 45^\circ$ 。熔池中上部为 $[100]$ 晶区(如图 3(c) 所示),即晶体沿着激光扫描方向生长。图 3(e)~(h) 是 1500 W 下的熔池形貌以及各晶区分布和枝晶形态,其熔池形貌和各晶区分布与 1200 W 下的没有太大区别,但熔池尺寸略有增大,即

熔池宽度和深度分别由 $3970\text{ }\mu\text{m}$ 和 $852\text{ }\mu\text{m}$ 增大到 $4437\text{ }\mu\text{m}$ 和 $1281\text{ }\mu\text{m}$ 。

利用 ImageJ 图像处理软件计算试样的一次枝晶间距,可得 1200 W 激光功率下的一次枝晶间距为 $8.4\text{ }\mu\text{m}\pm 0.3\text{ }\mu\text{m}$,如图 3(b) 所示,1500 W 下的一次枝晶间距为 $9.2\text{ }\mu\text{m}\pm 0.2\text{ }\mu\text{m}$,如图 3(f) 所示。即:随着激光功率增大,一次枝晶间距增大。

为了研究不同激光功率下枝晶干和枝晶间的元素偏析情况,分别使用扫描电镜能谱模式对 1200 W 和 1500 W 激光功率下的枝晶干区域(A 点与 C 点)与枝晶间区域(B 点与 D 点)进行元素含量分析,如图 4 所示。表 3 为各点的组成元素种类及含量。结果显示,在两种激光功率下,Ni、Cr、W、Co、Re 等元素在枝晶干富集,而 C、Ta、Mo、Nb、Al 等元素主要在枝晶间富集。这种偏析行为是由凝固过程中固/液界面前沿合金元素的溶质再分配诱导形成的。

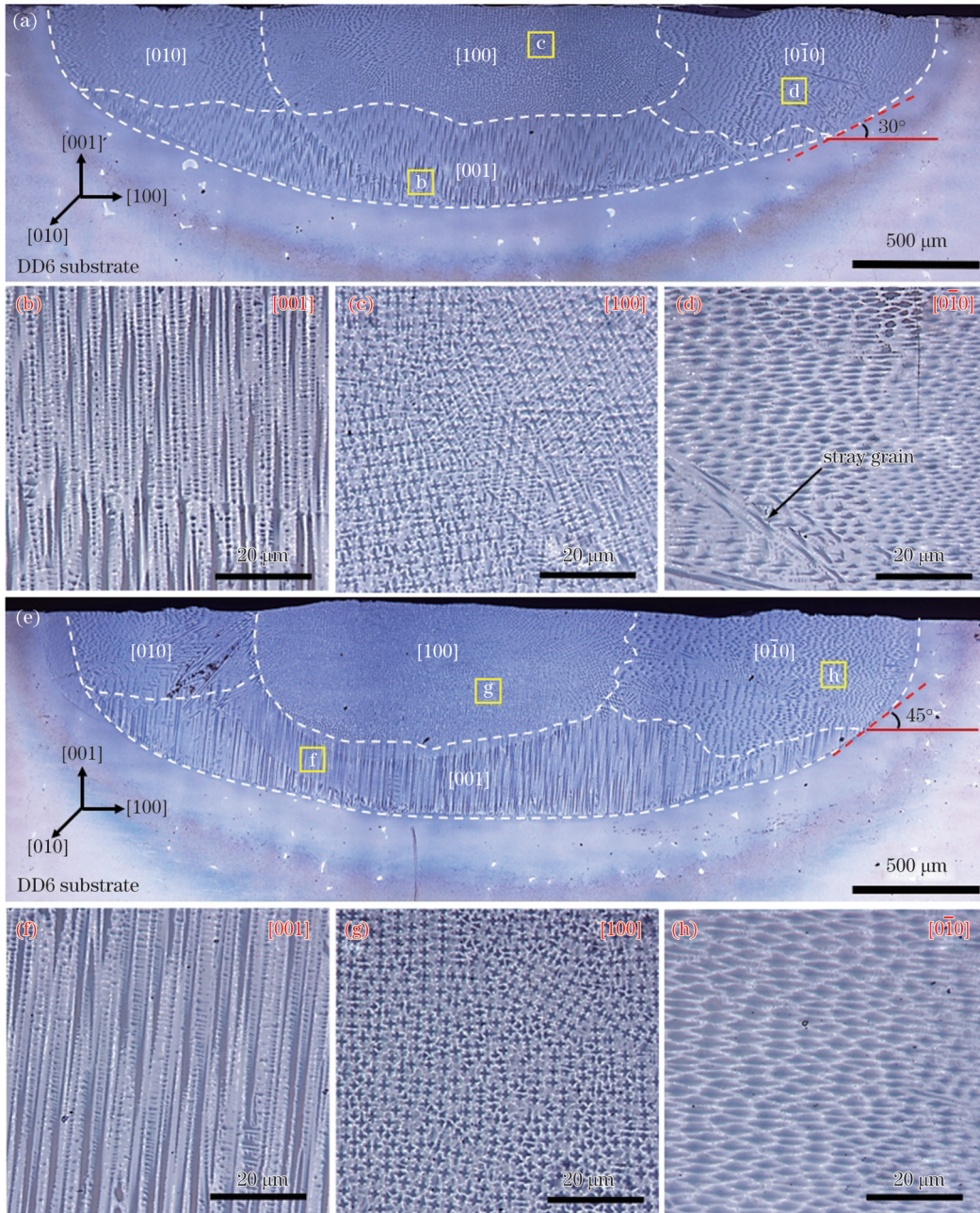


图 3 不同激光功率下熔池形貌及各晶区的微观组织。(a)~(d) 1200 W; (e)~(h) 1500 W

Fig. 3 Molten-pool morphology and microstructures of each crystal region at different laser powers. (a)~(d) 1200 W; (e)~(h) 1500 W

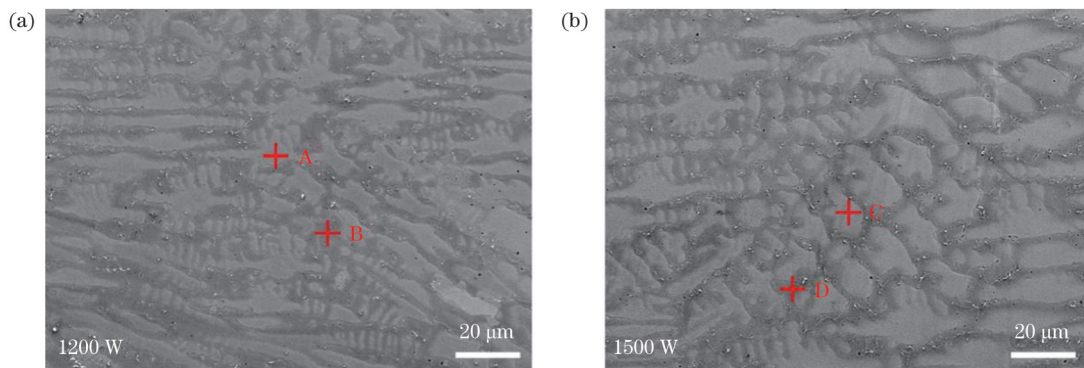


图 4 激光重熔后 [010] 晶区的枝晶形态以及元素含量测试点。(a) 1200 W; (b) 1500 W

Fig. 4 Dendrite morphology and elemental content measurement points in [010] crystal region after laser remelting. (a) 1200 W;

(b) 1500 W

表 3 不同激光功率下枝晶间和枝晶干的化学成分

Table 3 Chemical composition of interdendritic region and dendritic stem at different laser powers

Position	Mass fraction / %									
	Ni	W	C	Ta	Co	Mo	Cr	Re	Nb	Al
Dendritic stem (A)	54.91	10.23	8.53	5.51	8.63	1.40	3.69	2.20	0.31	4.59
Interdendritic region (B)	54.56	7.48	9.22	8.59	7.28	1.72	3.42	1.11	0.88	5.73
Dendritic stem (C)	55.73	10.27	8.27	5.41	8.67	1.41	3.87	1.38	0.39	4.60
Interdendritic region (D)	55.31	6.38	8.94	8.93	7.02	1.75	3.18	1.07	1.38	6.03

3.2 晶体学织构特征

图 5 展示了不同激光功率下单道重熔区纵截面的 EBSD 结果。图 5(a)、(b) 分别是 1200 W 和 1500 W 激光功率下的取向分布图。可以看出,两种功率下的熔池内部均出现了杂晶,并且杂晶主要分布在熔合线、转向枝晶区及熔池顶部等位置。需要指出的是,1200 W 激光功

率下的杂晶数量比 1500 W 激光功率下的少。图 5(c)、(d) 分别是 1200 W 和 1500 W 激光功率下重熔区的 {100} 极图。两个极图均表明重熔区具有极强的取向性:激光功率为 1200 W 时,织构强度(MUD)为 43.43;激光功率为 1500 W 时,织构强度为 38.53。即:低功率激光重熔区的取向性略高于高功率激光重熔区的取向性。

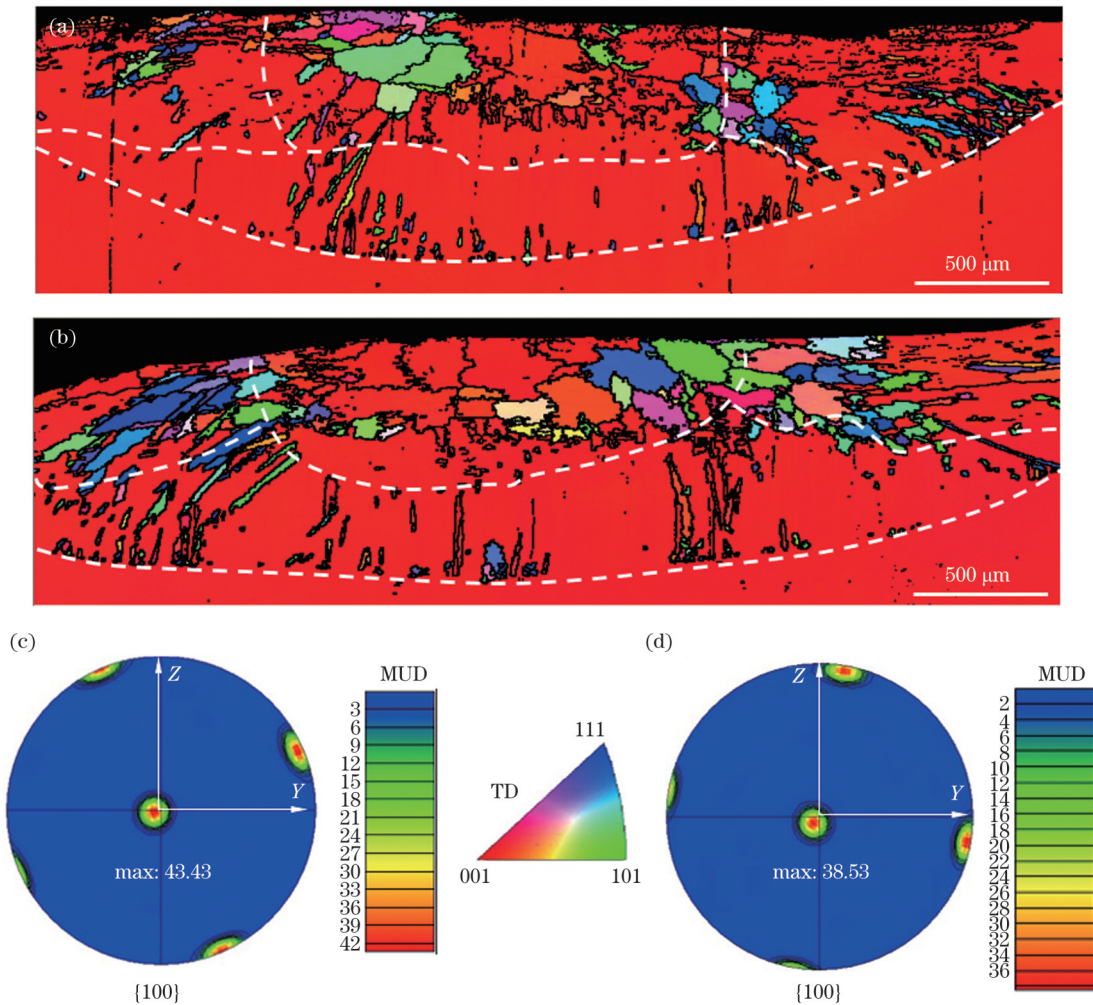


图 5 激光重熔后试样的 EBSD 结果。(a) 1200 W 激光功率下的取向分布图;(b) 1500 W 激光功率下的取向分布图;(c) 1200 W 激光功率下的 {100} 极图;(d) 1500 W 激光功率下的 {100} 极图

Fig. 5 EBSD of the sample after laser melting. (a) Orientation map with the laser power of 1200 W; (b) orientation map with the laser power of 1500 W; (c) {100} pole figure with the laser power of 1200 W; (d) {100} pole figure with the laser power of 1500 W

3.3 熔池不同区域杂晶的形成机制

从上述图 5(a)、(b) 所示的熔池晶体学织构特征不难发现,杂晶主要出现在熔合线处、熔池顶部以及转

向枝晶交汇处。考虑到熔池内部不同区域的温度场(温度梯度和固液界面迁移速率)和应力场存在差异性,推测不同区域杂晶的形成机制有所不同,下面将具

体讨论。

3.3.1 熔合线处

图 6 所示为 1500 W 激光功率下熔池底部熔合线处的枝晶形态。由于 1200 W 和 1500 W 激光功率下熔合线处杂晶的分布以及相组成的差异不大,故此仅对 1500 W 激光功率下的熔池进行分析。对于无杂晶的熔合线处(如图 6(a)所示),其平界面生长区域

表现出平滑、均匀的特征。对于有杂晶形成的熔合线处(如图 6(b)所示),其平界面生长区域不平整且不均匀,部分区域出现了塌陷现象,并且可以观察到杂晶周围存在白亮色颗粒析出物。对图 6(b)中 C 处的白亮色相进行元素点扫描分析,发现其富含 Ta、Nb 和 C 元素(如图 6(c)所示),据此可判断其为碳化物相。

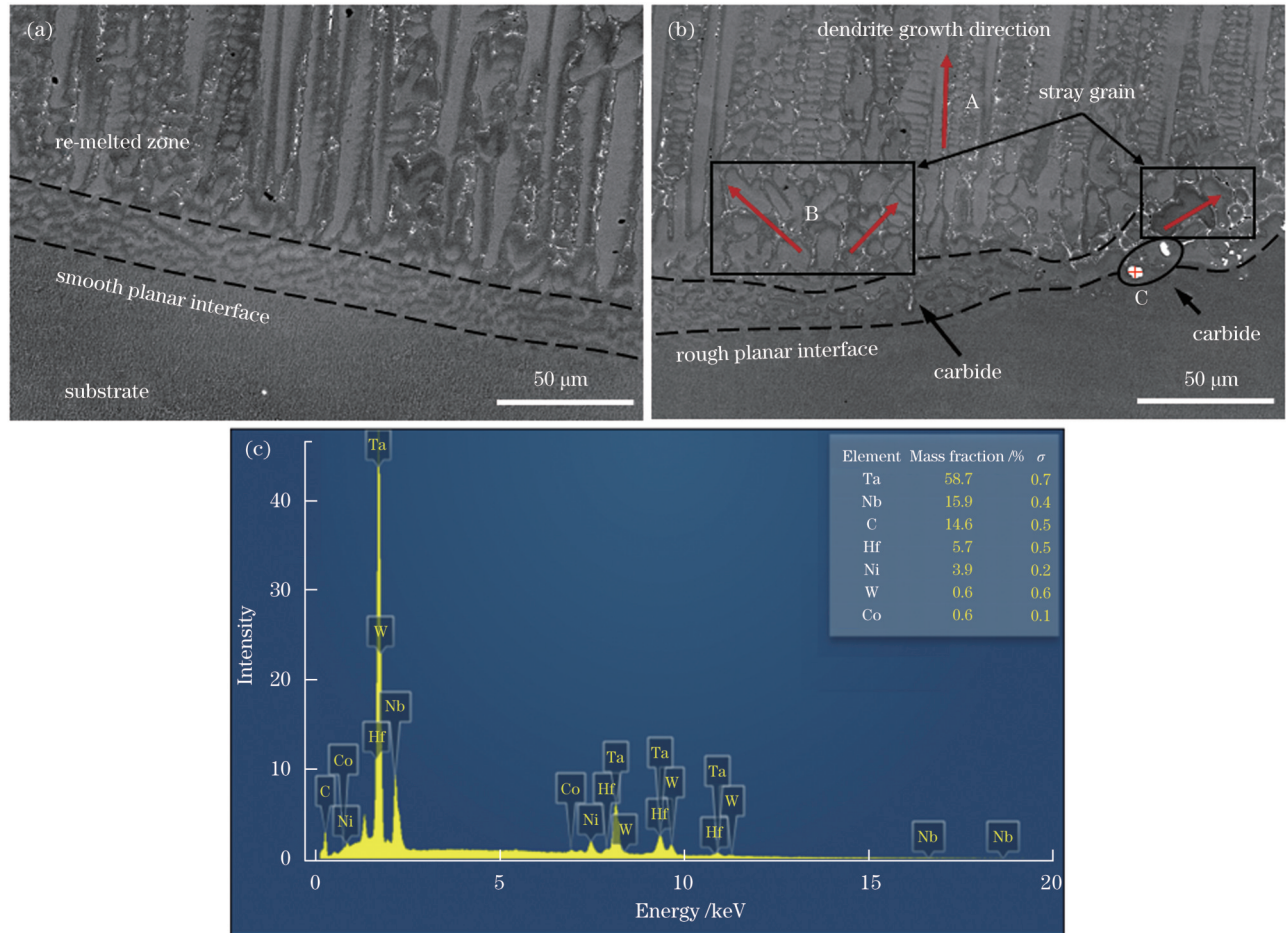


图 6 激光功率为 1500 W 时熔合线的形貌及杂晶分布。(a)平滑的熔合线;(b)不平滑的熔合线;(c)C 处的点扫描元素分析谱图
Fig. 6 Fusion line morphology and stray grain distribution with the laser power of 1500 W. (a) Smooth fusion line; (b) non-smooth fusion line; (c) point-scan elemental analysis spectrum at point C

从图 6(b)中可以观察到,当熔合线基体一侧存在碳化物相时,该区域就会出现塌陷,杂晶在熔合线内侧相应位置形成。图 6(b)中分别标注了主体晶体的生长方向 A 和杂晶的生长方向 B。对比可以发现,主体晶体的生长方向为竖直向上,塌陷处晶体的生长方向为向左或向右倾斜。此外,杂晶内部胞状晶的生长方向与形成塌陷后的熔合线垂直。也就是说,杂晶的形成与碳化物有关。当熔合线处形成碳化物时,该位置就会出现塌陷,其温度梯度的方向就会偏离原来的温度梯度方向^[18-19]。由于胞晶总是平行于温度梯度方向,即沿着垂直于固液界面的方向生长^[20],因此对于塌陷的固液界面而言,其胞晶生长方向会发生偏转,进而形成杂晶。综上所述,粗糙的生长界面一方面促进了

固液凝固界面处的熔体波动,导致局部坍塌,进而导致晶体生长方向发生偏转;另一方面也增大了溶质原子的扩散速率和凝固界面前沿的成分过冷度,并且溶质原子相互结合生成了碳化物,为晶粒形核提供了异质形核位点。上述两方面因素共同作用诱导了杂晶的形成,这与文献[21]报道的 SRR99 镍基单晶高温合金的结果一致。

3.3.2 熔池顶部

熔池顶部的杂晶是由柱状晶向等轴晶转变引起的。在凝固过程中,从熔池底部到顶部,温度梯度逐渐降低,凝固速度逐渐增大;同时,温度梯度的方向由底部的垂直于扫描方向逐渐转变为顶部的接近甚至是平行于扫描方向,故而熔池内部出现转向枝晶甚至是等

轴晶。已有诸多理论对此进行了验证。

Hunt^[22]提出了一个在稳态条件下描述柱状晶向等轴晶转变的解析模型,Gäumann等在此基础上提出了一个修正模型。该修正模型简化后的表达式为

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

式中: G 为温度梯度; R 为凝固速度; α 是与合金成分有关的常数; N_0 为单位体积内的异质形核位数; φ 为等轴晶粒的体积分数; n 是与合金晶体生长方式有关的常数。

Hunt提出:如果等轴晶粒的体积分数 φ 大于49%,则认为是完全等轴生长;如果等轴晶粒的体积分数 φ 小于0.66%,则认为是完全柱状结构^[23]。通过式(1)可知激光重熔后的合金凝固组织特征受到温度梯

度和凝固速度的影响。因此,通常情况下,当固液界面凝固速度给定以后,温度梯度随着激光功率的增大而逐渐减小^[24]。温度梯度和凝固速度的比值(G/R)越大,越有利于形成柱状晶,但当该比值较小时,液相中的成分过冷区域将变大,发生柱状晶向等轴晶转变的概率就会增大,从而生成了等轴晶^[25]。因此,在激光重熔的凝固过程中,熔池底部的温度梯度最大,更易形成柱状晶,而随着固液凝固界面向熔池顶部推进,温度梯度逐渐减小,温度梯度和凝固速度的比值随之降低,因而熔池顶部更易产生杂晶。

3.3.3 转向枝晶交汇处

图7(a)显示了1200 W激光重熔区的晶界特征图,大角度晶界(HAGBs)用红色线表示,小角度晶界(LAGBs)用绿色线表示。在这里,HAGBs定义为两

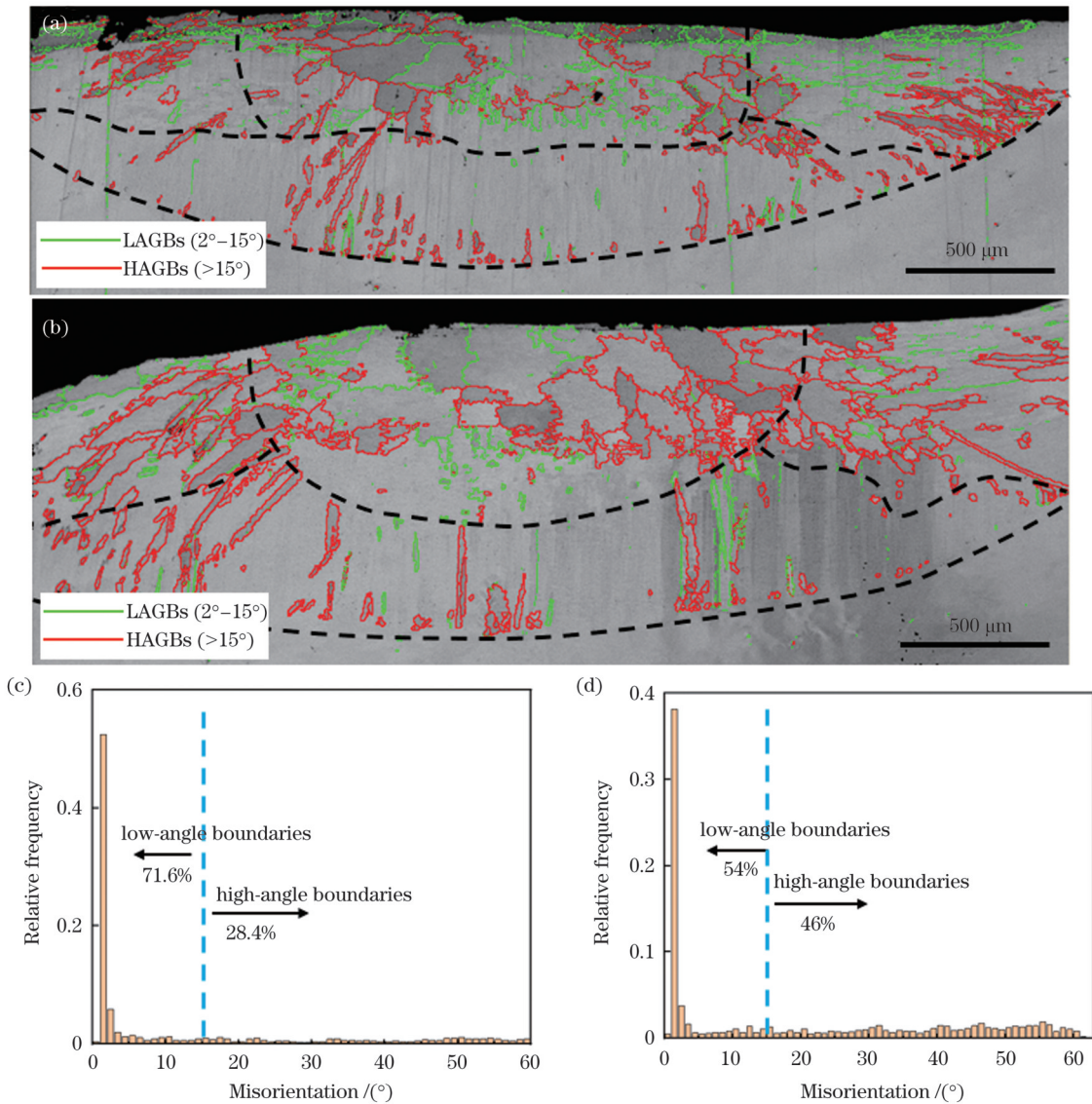


图7 重熔后熔池的EBSD结果。(a) 1200 W激光功率下的晶界角图;(b) 1500 W激光功率下的晶界角图;(c) 1200 W激光功率下的晶界角分布;(d) 1500 W激光功率下的晶界角分布

Fig. 7 EBSD results of molten pool after remelting. (a) Grain boundary angle with the laser power of 1200 W; (b) grain boundary angle with the laser power of 1500 W; (c) misorientation angle distribution with the laser power of 1200 W; (d) misorientation angle distribution with the laser power of 1500 W

晶粒之间的取向差大于 15° 的晶界,LAGBs 定义为两晶粒之间的取向差在 $2^\circ \sim 15^\circ$ 范围内的晶界。各角度晶界的占比如图 7(c) 所示,LAGBs 占比为 71.6%, HAGBs 占比为 28.4%。总体来说,1200 W 激光重熔后的熔池内以 LAGBs 为主,且 LAGBs 大多分布在熔池顶端。图 7(b) 是 1500 W 激光重熔区的晶界特征图。各角度晶界占比如图 7(d) 所示,LAGBs 占 54%, HAGBs 占 46%。与 1200 W 相比,1500 W 熔池内的 HAGBs 占比明显增加,杂晶大多分布在转向枝晶交汇处且呈 HAGBs。

在激光重熔过程中,熔池内部的温度梯度和固液界面迁移速度(凝固速度)是影响晶体生长方式和晶体缺陷形成的两个关键因素。将式(1)进一步变形可得

$$\varphi = 1 - \exp\left[\frac{-4\pi}{3} \cdot N_0 \cdot \left(\frac{R}{G^n} \cdot \frac{a}{n+1}\right)^3\right] \quad (2)$$

由式(2)可知随着温度梯度的降低以及凝固速度的增大, φ 增大,即杂晶的形成能力逐渐增强。另外,温度梯度的幂次为凝固速度的 n 倍,即温度梯度的影响效果远大于凝固速度。因此,判断杂晶形成能力可以简化为判断温度梯度的变化。熔池内部晶体的生长方向和固液界面处温度梯度 G_{sl} 之间的关系如图 8 所示。 G 是沿着 $\langle 100 \rangle$ 三个晶向上的温度梯度,由于枝晶沿着与温度梯度最小的夹角生长,因此 $G^{[26]}$ 可以表示为

$$G = G_{sl} \cdot \cos \psi, \quad (3)$$

$$\psi = \min\{\psi_{[100]}, \psi_{[010]}, \psi_{[001]}\}, \quad (4)$$

式中: $\psi_{[100]}$ 是 G_{sl} 与 $[100]$ 晶向之间的夹角; $\psi_{[010]}$ 是 G_{sl} 与 $[010]$ 晶向之间的夹角; $\psi_{[001]}$ 是 G_{sl} 与 $[001]$ 晶向之间的夹角。由式(3)、(4)可以得出

$$\cos \psi = \max\{\cos \psi_{[100]}, \cos \psi_{[010]}, \cos \psi_{[001]}\} \quad (5)$$

如图 8 所示:在三维熔池的三向枝晶交汇处, $\cos \psi = \sqrt{3}/3$,该值为熔池内的最小值;在两向枝晶交汇处, $\sqrt{3}/3 < \cos \psi \leq \sqrt{2}/2$,该值为仅次于三向枝晶交汇处的第二小的值;其余位置的 $\cos \psi$ 均大于上面的值。因此,熔池内部转向枝晶交汇处温度梯度的值要比其他位置处的小,从而导致转向枝晶交汇处更容易形成杂晶。此外,Anderson 等^[10]已经通过数值模拟证实了 CMSX-4 合金转向枝晶交汇处的温度梯度低于相邻区域的温度梯度,而 CMSX-4 合金与 DD6 合金有着相似的成分和相组成,故此结论适用于本试验。由于枝晶生长方向会发生改变,因而温度梯度的方向也会发生变化。 $[001]$ 枝晶区域内温度梯度的方向竖直向上,两侧枝晶区域温度梯度的方向为水平朝熔池中心方向,两者在转向枝晶交汇处相遇,亦为杂晶的形成提供了条件。

3.4 数值模拟

为进一步分析熔池内部温度场和应力场的分布,

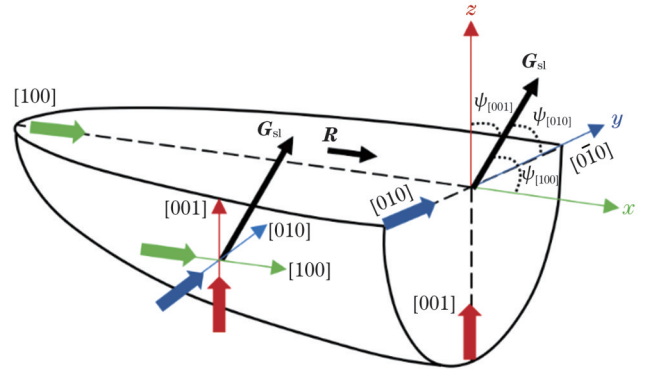


图 8 枝晶生长方向与温度梯度之间的关系

Fig. 8 Relationship between the dendrite growth direction and the temperature gradient

分别对 1200 W 和 1500 W 重熔过程进行数值模拟分析。采用 COMSOL Multiphysics 6.1 仿真模拟软件分别建立三维模型,计算区域的尺寸为 $45 \text{ mm} \times 15 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$,采用自由三角形网格进行网格划分,边界条件以及网格划分如图 9 所示。DD6 合金的热物理参数与温度之间的关系使用 JMatPro 热力学计算软件进行模拟,模拟结果如图 10 所示。其他参数如 2.1 节的表 2 所示。

采用的热源模型为高斯热源,其计算公式为

$$q(r) = \frac{2P}{\pi r_b^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{r_b^2}\right), \quad (6)$$

式中: P 为激光功率; r_b 为光斑直径; r 为光斑到节点的距离。

另外,模型考虑了基板表面与周围环境之间的对流换热以及熔池的辐射散热。综合考虑后,基板表面的边界条件为

$$Q = \frac{2\alpha(1-\beta)P}{\pi r_b^2} \exp\left[-\frac{2(X^2 + Y^2)}{r_b^2}\right] - q_1 - q_2, \quad (7)$$

其中,

$$q_1 = h_c(T - T_0), \quad (8)$$

$$q_2 = \sigma_a \epsilon (T^4 - T_0^4), \quad (9)$$

式中: β 为粉末颗粒对激光的遮蔽率; q_1 、 q_2 分别为基板表面与周围环境之间的对流换热以及熔池的辐射散热; P 为激光功率; r_b 为光斑直径; α 为基板表面对激光的吸收率; X 和 Y 为热源随时间在 x 轴和 y 轴方向的移动方程; h_c 为金属基板与外界的换热系数; T_0 为外界环境温度; σ_a 为玻尔兹曼常数; ϵ 为材料表面的辐射率。

在激光重熔过程中,激光热源是唯一的能量输入来源,激光功率的大小对温度场及熔池形貌能够产生巨大影响^[27]。不同激光功率下的温度场分布以及温度梯度分布如图 11 所示。激光功率为 1200 W 时的温度分布如图 11(a) 所示,熔池中心最高温度达到了约 3568 K;激光功率为 1500 W 时,熔池中心最高温度达到了约 4340 K,如图 11(b) 所示。激光功率的提升使得熔池中心的温度峰值有所升高,高温区域也随之扩

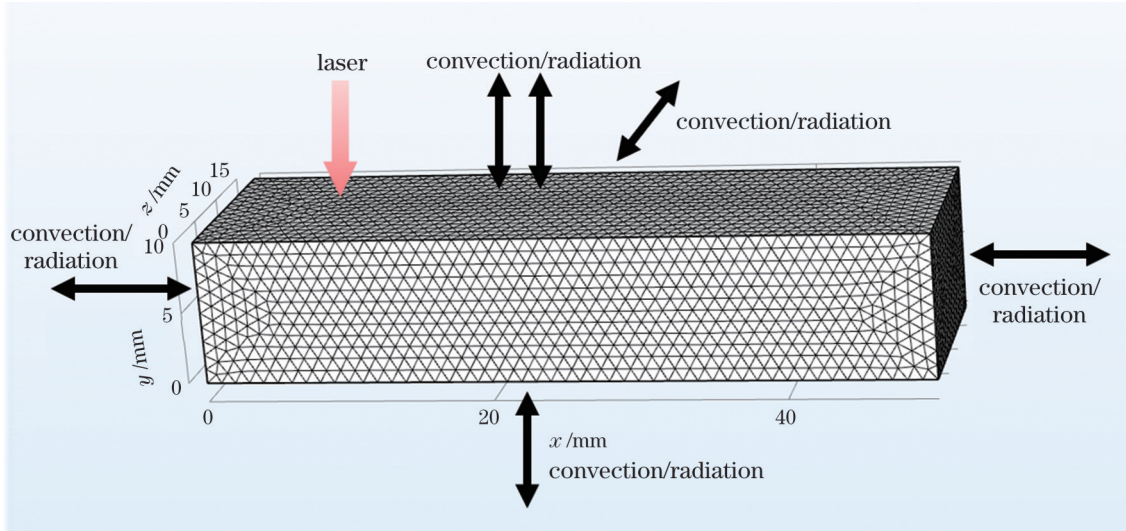


图 9 几何模型边界条件及网格划分

Fig. 9 Geometric model boundary conditions and meshing

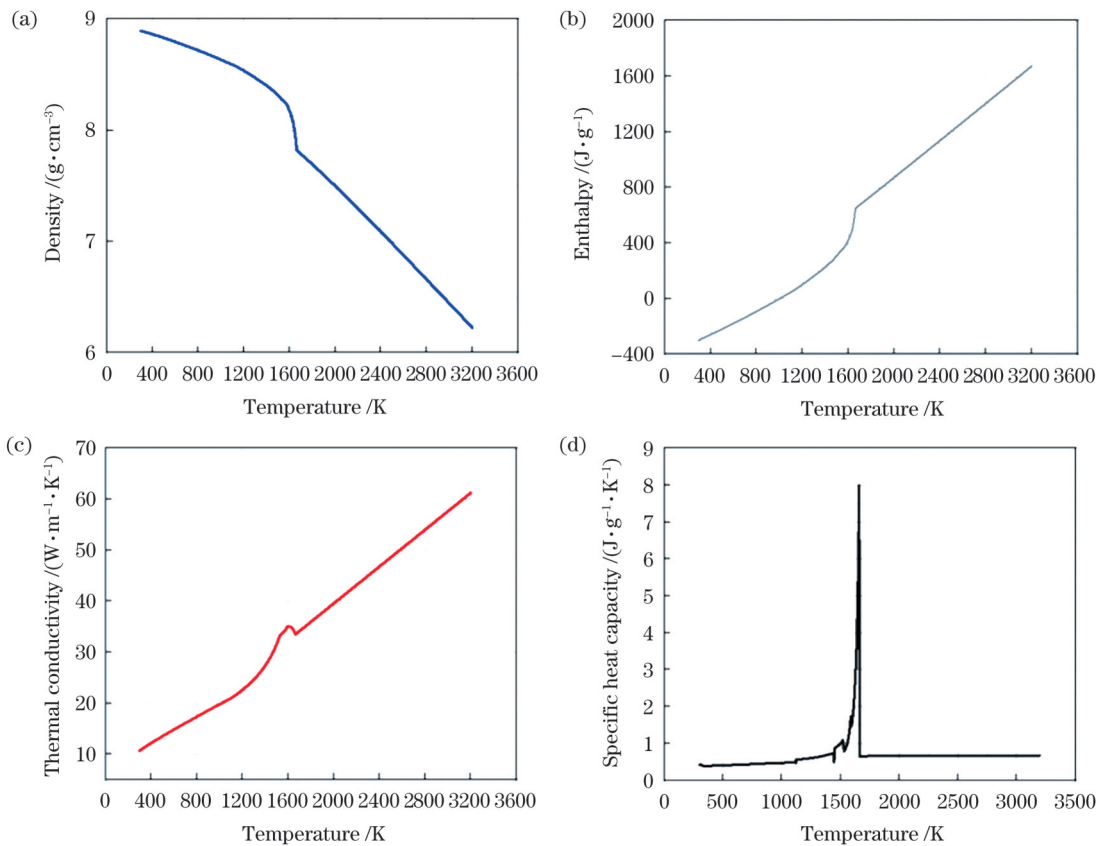


图 10 DD6 合金的热物理参数随温度的变化。(a)密度;(b)焓值;(c)热导率;(d)比热容

Fig. 10 Temperature dependence of thermophysical parameters of DD6 alloy. (a) Density; (b) enthalpy; (c) thermal conductivity; (d) specific heat capacity

大,但温度分布规律并没有太大变化。在温度场内用黑色实线标出了熔合线,可以看出,随着激光功率增大,熔池形貌发生变化,熔池的深度和高度随之增加。分别计算熔池顶部以及底部的温度梯度,结果显示:当激光功率为 1200 W 时,熔池顶部的温度梯度 ∇T_1 为 1.28×10^6 K/m,熔池底部的温度梯度 ∇T_2 为 2.16×10^6 K/m;当激光功率为 1500 W 时,熔池顶部的温度梯

度 ∇T_3 为 1.13×10^6 K/m,熔池底部的温度梯度 ∇T_4 为 2.04×10^6 K/m。通过对比可以发现,随着激光功率增大,熔池顶部及底部的温度梯度均减小,并且熔池顶部的温度梯度小于熔池底部的温度梯度。由前面的式(1)分析可知,高的温度梯度有利于柱状晶的生长,而较低的温度梯度更有利于等轴晶的生长。因此,在激光功率为 1500 W 的条件下熔池顶部更易发生柱状晶

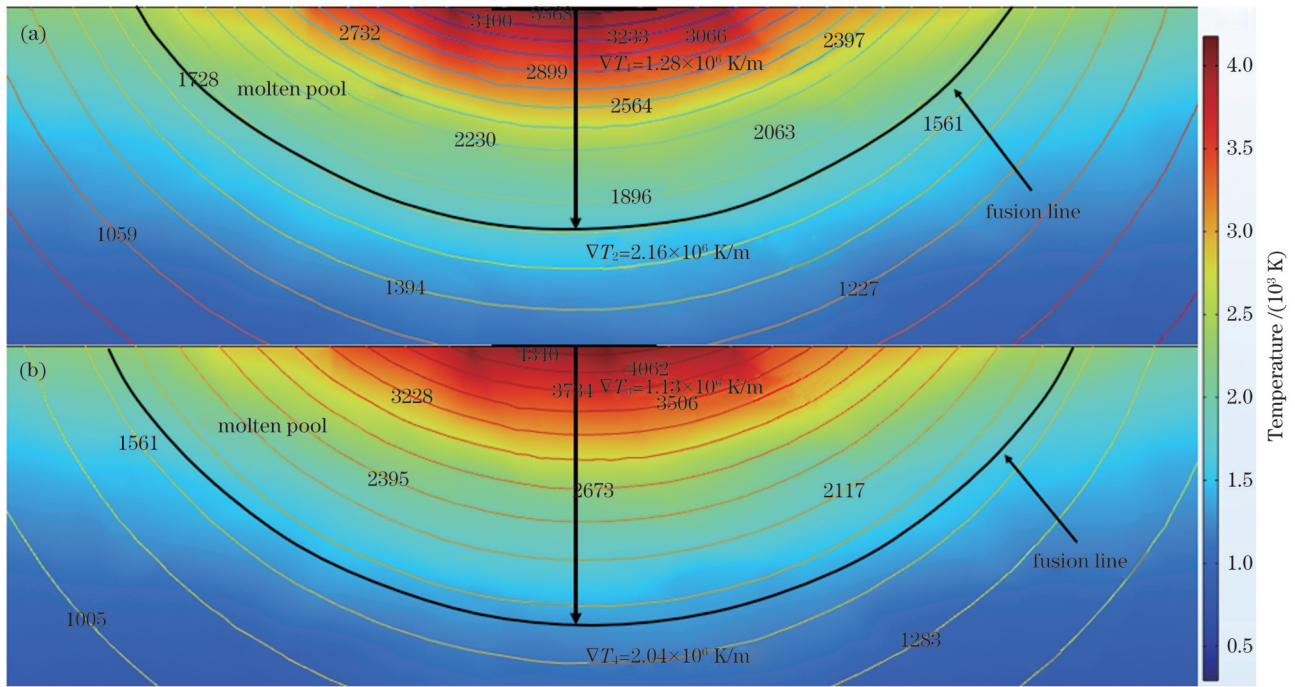


图 11 不同激光功率下熔池的温度场分布。(a) 1200 W; (b) 1500 W

Fig. 11 Temperature field distributions of molten pool at different laser powers. (a) 1200 W; (b) 1500 W

向等轴晶转变,进而诱导杂晶的形成,而较低的激光功率可以提高温度梯度,抑制杂晶的形成。

图 12 为不同功率下熔池截面内部应力场的分布图,可以观察到:当激光功率为 1200 W 时,熔池顶部位置的应力最高,达到了 1.36×10^4 MPa;当激光功率为 1500 W 时,熔池顶部的应力高达 1.7×10^4 MPa。可

见,随着激光功率增加,应力呈现逐渐增大的趋势,而随着熔池深度增加,应力逐渐减小。由图 7(b)可知,在激光功率为 1500 W 的条件下,熔池内转向枝晶交汇处产生的再结晶数量较多,尺寸较大。结合数值模拟可知,较高的激光功率会导致较高的应力,进而诱导杂晶甚至是裂纹的形成。

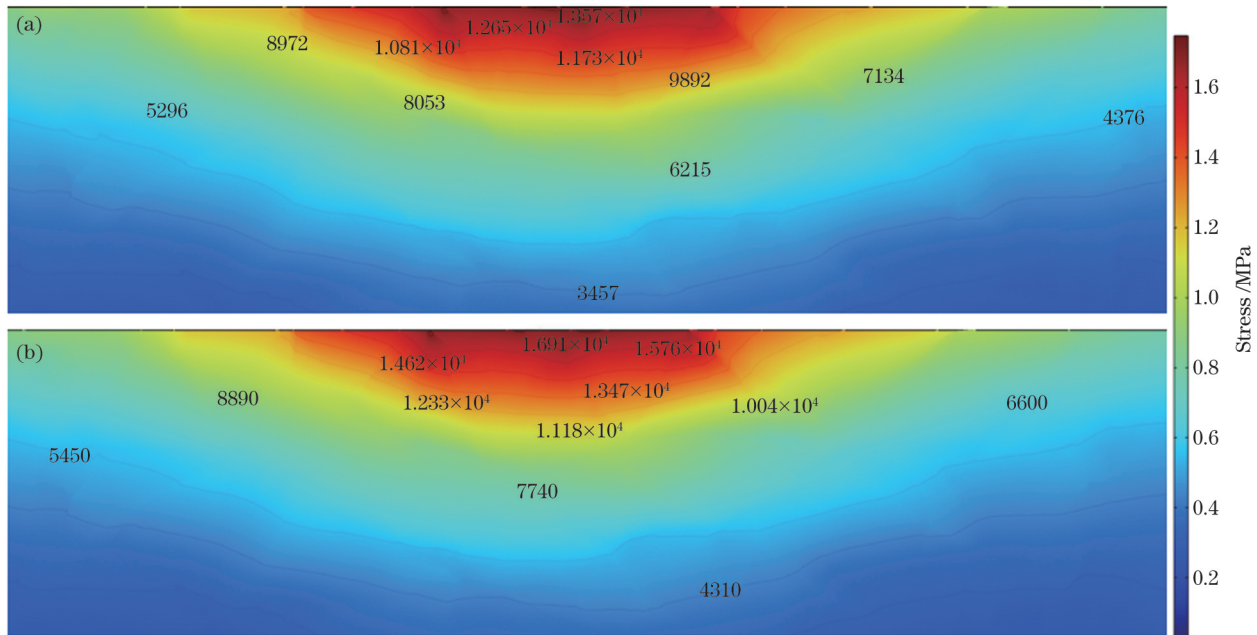


图 12 不同激光功率下熔池中的应力场分布图。(a) 1200 W; (b) 1500 W

Fig. 12 Stress field distribution maps in the molten pool at different laser powers. (a) 1200 W; (b) 1500 W

4 结 论

笔者使用 1200 W 和 1500 W 两种不同的激光功率

对 DD6 镍基单晶高温合金进行单道激光重熔,并结合数值模拟,探讨了单道熔池内部不同区域杂晶的形成机制。得到的主要研究结论如下:

1) 在激光重熔过程中, 杂晶主要出现在熔池的熔合线处、熔池顶部以及转向枝晶交汇处这三个部位。

2) 激光功率 1500 W 下的杂晶数量较多、尺寸较大。熔合线处的平滑界面上无杂晶出现, 非平滑界面处形成的碳化物容易导致固液界面塌陷, 促使枝晶生长方向发生偏转, 诱导杂晶形成。

3) 熔池顶部杂晶的形成与熔池的温度梯度、固液凝固界面的移动速率密切相关。熔池顶部的温度梯度最小, 有利于发生柱状晶向等轴晶转变, 杂晶生成的概率增大。低的激光功率能够提高温度梯度并抑制杂晶的形成。

4) 转向枝晶交汇处杂晶的形成是由枝晶交汇处的温度梯度低于相邻区域的温度梯度以及温度梯度的方向改变后发生碰撞造成的。

参 考 文 献

- [1] Li Y, Liang X Y, Yu Y F, et al. Review on additive manufacturing of single-crystal nickel-based superalloys[J]. Chinese Journal of Mechanical Engineering: Additive Manufacturing Frontiers, 2022, 1(1): 100019.
- [2] 李继康, 张振武, 杨源祺, 等. 激光选区熔化 DD91 镍基单晶高温合金的单道形貌、晶体取向和微观组织[J]. 中国激光, 2022, 49(14): 1402103.
Li J K, Zhang Z W, Yang Y Q, et al. Single-track morphology, crystal orientation and microstructure of DD91 nickel-based single crystal superalloy fabricated by selective laser melting[J]. Chinese Journal of Lasers, 2022, 49(14): 1402103.
- [3] Xu Q D, Li M X, Yang L, et al. Grain refinement and associated strengthening in laser additive repaired uranium[J]. Journal of Nuclear Materials, 2024, 593: 154995.
- [4] 卞宏友, 刘子茗, 刘伟军, 等. 激光沉积修复 GH4169/GH738 合金时效热处理组织与摩擦磨损性能[J]. 中国激光, 2023, 50(12): 1202209.
Bian H Y, Liu Z M, Liu W J, et al. Microstructure and friction and wear properties of laser deposition repair GH4169/GH738 alloy with aging heat treatment[J]. Chinese Journal of Lasers, 2023, 50(12): 1202209.
- [5] Ci S W, Liang J J, Li J G, et al. Optimizing process for pulsed laser additive manufacturing of nickel-based single crystal superalloy[J]. Materials Research Express, 2023, 10(9): 096511.
- [6] 张方, 陈静, 薛蕾, 等. 激光成形修复 Ti60 合金组织与性能研究[J]. 应用激光, 2009, 29(2): 87-91, 95.
Zhang F, Chen J, Xue L, et al. Study on microstructure and mechanical properties of laser solid repaired Ti60 alloy[J]. Applied Laser, 2009, 29(2): 87-91, 95.
- [7] Mostafaei A, Ghiaasiaan R, Ho I T, et al. Additive manufacturing of nickel-based superalloys: a state-of-the-art review on process-structure-defect-property relationship[J]. Progress in Materials Science, 2023, 136: 101108.
- [8] Gäumann M, Henry S, Cléton F, et al. Epitaxial laser metal forming: analysis of microstructure formation[J]. Materials Science and Engineering: A, 1999, 271(1/2): 232-241.
- [9] Vitek J M. The effect of welding conditions on stray grain formation in single crystal welds: theoretical analysis[J]. Acta Materialia, 2005, 53(1): 53-67.
- [10] Anderson T D, DuPont J N, DebRoy T. Origin of stray grain formation in single-crystal superalloy weld pools from heat transfer and fluid flow modeling[J]. Acta Materialia, 2010, 58(4): 1441-1454.
- [11] 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.
- [12] Guo J C, Chen W J, Yang R N, et al. The effect of substrate orientation on stray grain formation in the (111) plane in laser surface remelted single crystal superalloys[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2019, 800: 240-246.
- [13] Chen W J, Han S X, Guo J C, et al. Laser deposited superalloys with rotated substrate orientations: microstructures and single-crystal formation[J]. Acta Materialia, 2023, 244: 118566.
- [14] 荣鹏, 郭嘉琛. 基体取向对激光熔覆修复区域杂晶形成的影响[J]. 中国激光, 2021, 48(6): 0602110.
Rong P, Guo J C. Effect of substrate orientation on formation of heterocrystals in laser cladding zone[J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(6): 0602110.
- [15] Guo J C, Rong P, Wang L, et al. A comparable study on stray grain susceptibilities on different crystallographic planes in single crystal superalloys[J]. Acta Materialia, 2021, 205: 116558.
- [16] Yu Y F, Wang L, Zhou J, et al. Impact of fluid flow on the dendrite growth and the formation of new grains in additive manufacturing[J]. Additive Manufacturing, 2022, 55: 102832.
- [17] Wang G W, Liang J J, Zhou Y Z, et al. Variation of crystal orientation during epitaxial growth of dendrites by laser deposition [J]. Journal of Materials Science & Technology, 2018, 34(4): 732-735.
- [18] Liu G, Du D, Wang K M, et al. Epitaxial growth behavior and stray grains formation mechanism during laser surface re-melting of directionally solidified nickel-based superalloys[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2021, 853: 157325.
- [19] Lei Z L, Lu N N, Yu X F. Epitaxy and new stray grain formation mechanism during epitaxial laser melting deposition of Inconel 718 on directionally solidified nickel-based superalloys[J]. Journal of Manufacturing Processes, 2019, 42: 11-19.
- [20] Kurz W, Fisher D J. Fundamentals of solidification[M]. 4th ed. Switzerland: Trans Tech Publications, 1998.
- [21] Liang Y J, Wang H M. Origin of stray-grain formation and epitaxy loss at substrate during laser surface remelting of single-crystal nickel-base superalloys[J]. Materials & Design, 2016, 102: 297-302.
- [22] Hunt J D. Steady state columnar and equiaxed growth of dendrites and eutectic[J]. Materials Science and Engineering, 1984, 65: 75-83.
- [23] Gäumann M, Trivedi R, Kurz W. Nucleation ahead of the advancing interface in directional solidification[J]. Materials Science and Engineering: A, 1997, 226/227/228: 763-769.
- [24] Zhao Y, Hou L, Li X, et al. On the formation of gradient-distributed dendrites in a single crystal nickel-based superalloy directionally solidified under transverse static magnetic field[J]. Materials Characterization, 2024, 207: 113508.
- [25] Wang G W, Liang J J, Zhou Y Z, et al. Prediction of dendrite orientation and stray grain distribution in laser surface-melted single crystal superalloy[J]. Journal of Materials Science & Technology, 2017, 33(5): 499-506.
- [26] 卢楠楠. CMSX-10 高温合金激光熔化沉积单晶生长控制[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2021.
Lu N N. CMSX-10 single crystal growth controlling of CMSX-10 superalloy via laser melting deposition[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2021.
- [27] Yang G F, Wang A N, Su C W, et al. Numerical simulation and surface morphology of laser cladding of nickel-based C276 alloy coatings on AerMet100 steel surface[J]. Journal of Materials Research and Technology, 2023, 27: 1696-1710.

Formation Mechanism of Stray Grain in Laser Remelting Zone of DD6 Nickel-Based Single Crystal Superalloy

Wang Huijun¹, Guo Pengfei^{*}, Geng Jianfeng¹, Xu Jianjun², Lin Xin³, Yu Jun³, Lan Hongbo¹,
Yang Guang⁴, Huang Weidong³

¹Shandong Engineering Research Center for Additive Manufacturing, Qingdao University of Technology, Qingdao 266520, Shandong, China;

²Analytical & Testing Center, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, Shaanxi, China;

³State Key Laboratory of Solidification Processing, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, Shaanxi, China;

⁴School of Mechatronics Engineering, Shenyang Aerospace University, Shenyang 110136, Liaoning, China

Abstract

Objective Nickel-based single-crystal superalloys are widely used in the manufacture of single-crystal turbine blades in the combustion chambers of aircraft engines owing to their excellent high-temperature mechanical properties. However, these components often suffer from severe damage, such as edge erosion, cracking, and pitting, owing to the harsh operating conditions, including high temperatures and pressures, requiring repairs to extend their service life. Laser additive manufacturing technology has garnered significant attention for repairing nickel-based single-crystal superalloys owing to its unique advantages, including controllable heat input, the ability to fabricate complex structures, and reparability. However, the appearance of grain defects during the repair process may lead to serious failure phenomena, such as crack propagation and component fracture, during component operation, thereby posing potential risks to the safety and reliability of aircraft engines. Therefore, this study selected a DD6 second-generation nickel-based single-crystal superalloy as the substrate material and used lasers with powers of 1200 and 1500 W to re-melt the substrate, revealing the mechanisms of stray grain formation at the fusion line, top of the molten pool, and at the intersection of the dendrites, thereby providing a theoretical basis and technical support for the laser additive repair of nickel-based single-crystal superalloys.

Methods This study employed a DD6 nickel-based single-crystal high-temperature alloy prepared via directional solidification as an experimental substrate material. Subsequently, a laser cladding additive manufacturing device equipped with a 2 kW German Rofin fiber-coupled semiconductor laser was utilized. The process parameters included laser powers of 1200 and 1500 W, a scanning rate of 3 mm/s, and a spot diameter of 4 mm for the single-track remelting experiments on the substrate (001) crystal surface. To prevent sample oxidation during remelting, argon gas was used as a protective gas at a flow rate of 10 L/min. The dendritic morphologies of the substrate and remelted region were observed using an OLYMPUS DSX510 optical microscope. Simultaneously, scanning electron microscopy and X-ray energy-dispersive spectroscopy were employed for detailed analysis of the molten pool morphology and elemental distribution. Electron backscatter diffraction (EBSD) analysis was performed to further investigate the crystallographic properties of the specimens. The sample tilt angle was set to 70°, with a scan step size of 3 μm, using nickel as the calibration phase. HKL Channel 5 post-processing software was employed for texture and orientation deviation analysis of the samples.

Results and Discussions The results show that, after laser remelting, the molten pool could be divided into four regions ([001], [100], [010], and [0 $\bar{1}$ 0]) based on the growth direction of the grains (Fig. 3), and the primary dendrite spacing increased with increasing laser power. From the crystallographic texture characteristics of the molten pool (Fig. 5), it is evident that carbides mainly occurred at the fusion line, top of the molten pool, and intersection of the turning dendrites. Carbides at the fusion line occurred owing to the local collapse of the rough growth interface, causing a deviation in the crystal growth direction. This also increased the diffusion rate of the solute atoms and enhanced the degree of undercooling at the solidification interface, providing heterogeneous nucleation sites for grain nucleation, thereby inducing carbide formation. The carbides at the top of the molten pool were caused by the columnar-to-equiaxed transition, where the numerical simulation showed that the temperature gradient gradually decreased and the solidification rate increased from the bottom to the top of the molten pool (Fig. 11), promoting the columnar-to-equiaxed transition. Carbides at the intersection of turning dendrites occur because of collisions resulting from the lower temperature gradient at this location compared with adjacent areas and changes in the direction of the temperature gradient. The thermal stress numerical simulation results (Fig. 12) indicate that a low laser power input effectively increases the temperature gradient and reduces the residual stress level, which is beneficial for inhibiting carbide formation in single-crystal repairs.

Conclusions This article utilized two distinct laser powers, 1200 and 1500 W, to conduct single-track laser remelting on DD6 nickel-based single-crystal superalloys, in conjunction with numerical simulations, to investigate the mechanisms behind stray grain formation in various regions within the molten pool. The principal findings are as follows:

- 1) Stray grains predominantly emerged in three areas: the fusion line of the molten pool, top of the molten pool, and convergence

point of diverging dendrites.

2) At a laser power of 1500 W, there was an increased quantity and larger size of the stray grains. No stray grains were observed at the smooth interface of the fusion line, whereas carbides formed at rough interfaces could lead to the collapse of the solid-liquid interface, causing a deviation in the dendritic growth direction and inducing stray grain formation.

3) The development of stray grains at the apex of the molten pool was closely related to the temperature gradient of the molten pool and movement rate of the solid-liquid solidification interface. The minimal temperature gradient at the summit of the molten pool enhanced the likelihood of a columnar-to-equiaxed transition, fostering the generation of stray grains. Furthermore, it was discovered that a reduced laser power could increase the temperature gradient and suppress the formation of stray grains.

4) The genesis of stray grains at the confluence of diverging dendrites was attributed to collisions caused by the temperature gradient at the dendrite junction, which was lower than that in the surrounding areas, coupled with a shift in the direction of the temperature gradient.

Key words nickel-based single-crystal superalloy; stray grains; single-crystal repair; laser remelting