

选区激光熔化镍基单晶高温合金的熔池显微组织

潘爱琼^{1,2}, 张辉¹, 王泽敏²

¹ 郑州科技学院机械工程学院, 河南 郑州 450064;

² 华中科技大学武汉光电国家实验室, 湖北 武汉 430074

摘要 根据柱状晶向等轴晶转变(CET)图,建立了激光熔池横截面的几何关系,得出了选区激光熔化(SLM)镍基单晶高温合金的凝固条件与显微组织的关系,并在SRR99单晶基板的(100)晶面上沿[001]方向进行了SLM实验。结果表明,当激光功率为160 W、铺粉层厚为20 μm 、扫描速率 $V_b \leq 30 \text{ m} \cdot \text{min}^{-1}$ 时,凝固速度与激光扫描速度的夹角最小值为 46.4° (大于 45°)。可以预测激光熔池组织仅由熔池底部向顶部生长的[001]枝晶和熔池两侧的[010]枝晶组成,实验结果与理论分析结果相吻合,且层间形成了良好的冶金结合,基层的结晶取向得到延续。

关键词 激光技术; 选区激光熔化; 熔池显微组织; 镍基单晶高温合金

中图分类号 TG146.1 **文献标识码** A

doi: 10.3788/LOP54.071402

Molten Pool Microstructure of Ni-Based Single Crystal Superalloys Fabricated by Selective Laser Melting

Pan Aiqiong^{1,2}, Zhang Hui¹, Wang Zemin²

¹ School of Mechanical Engineering, Zhengzhou University of Science and Technology, Zhengzhou, Henan 450064, China;

² Wuhan National Laboratory for Optoelectronics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan, Hubei 430074, China

Abstract Based on the columnar to equiaxed transition (CET) map, the geometrical relationship for the cross section of the molten pool is established and the relationship between the solidification condition and the microstructure for Ni-based single crystal superalloys fabricated by selective laser melting (SLM) is obtained. The SLM experiments are conducted on the (100) crystallographic plane of SRR99 single crystal substrate along the [001] direction. The results show that the minimum angle between the solidification velocity and the laser scanning velocity is about 46.4° (larger than 45°) under the conditions of laser power of 160 W, powder-layer thickness of 20 μm and scanning speed of $V_b \leq 30 \text{ m} \cdot \text{min}^{-1}$. It can be predicted that the microstructure of the laser molten pool is composed of [001] dendritic crystals growing from bottom to top and [010] dendritic crystals on two sides. The experimental results coincide well with the theoretical analysis results. In addition, good metallurgical bonds are formed between layers and the crystallographic orientation of substrates gets extended.

Key words laser technique; selective laser melting; microstructure of molten pool; Ni-based single crystal superalloy

OCIS codes 140.3390; 140.3510; 160.3900

1 引言

镍基单晶高温合金具有优良的高温性能,在 600°C 以上仍能保持良好的高温强度、抗疲劳、抗腐蚀以及抗蠕变性能,广泛应用于先进航空发动机和燃气轮机叶片的制造中^[1-4]。镍基单晶零件没有横向晶界,生长

收稿日期: 2017-02-09; **收到修改稿日期:** 2017-03-09

基金项目: 国家自然科学基金(51075164)、河南省科技厅科技攻关项目(142102210509)、河南省教育厅重点科技攻关项目(14A460015)

作者简介: 潘爱琼(1987—),女,硕士,讲师,主要从事增材制造方面的研究。E-mail: panaiqiong@163.com

方向与主应力方向一致,因而可大大提高热端部件的可靠性和使用寿命。通过建立特定方向的温度梯度可获得单晶零件,生产中常用的方法为选晶法。选晶法是让众多晶粒通过狭窄的螺旋形选晶器后,只允许生长最快的一个晶粒进入铸型空腔从而得到单晶。这种传统的铸造法存在工序繁杂、螺旋选晶器模壳制作困难、生产周期长等缺陷。

随着技术的发展,利用增材制造(3D打印)技术直接制造金属功能零件可以很好地解决上述问题。如常用的激光近净成形(LENS)技术[也称直接金属沉积(DMD)技术或直接激光成形(DLF)技术]、选区激光熔化(SLM)技术及电子束选区熔化(EBSM)技术等。Kurz等^[5-7]用激光直接快速修复单晶叶片,指出可以通过调节工艺参数控制柱状晶向等轴晶的转变(CET),从而延续单晶基材的取向;Ardakani等^[8]研究了单晶高温合金在不同温度梯度下晶体的生长情况^[1],发现高温梯度有利于得到精确的[001]取向;Yang等^[9]阐明了基材晶体取向对重熔区组织的影响规律;黄卫东等^[10]对激光快速成形工艺进行了深入分析。这些研究大都集中在送粉式大功率CO₂激光器的金属零件直接制造技术上,其柔性化程度、成形精度及零件复杂程度均不及SLM技术的^[11-12]。国内外学者对SLM成形镍基单晶高温合金的工艺参数、致密度、显微组织和力学性能等进行了较多研究^[13-17],但有关SLM镍基单晶高温合金熔池组织的研究鲜有报道。本文采用SLM成形技术,在铸造镍基单晶高温合金基板上预先铺粉,通过激光层层扫描制造实体。重点分析实体成形过程中激光熔池凝固的组织特点,并得到了凝固条件与显微组织的关系,预测了熔池的组织分布,最后根据理论分析进行了SLM实验,验证了理论分析的正确性。

2 实验材料与方法

选用镍基单晶高温合金SRR99粉末为实验材料,成分见表1。粉末颗粒呈球形,粒径小于45 μm,粉末形貌如图1所示,实验前将粉末在120℃的干燥箱中烘干。所用基板是螺旋选晶法制备的SRR99镍基单晶基板(SX-substrate),用X射线衍射(XRD)法测定基板的晶体取向,确保单晶基板的择优方向[001]与沉积方向一致,以利用SRR99的外延生长特性沉积实体(SX-deposit),如图2所示。所用SLM 3D打印设备的光纤激光器的最大输出功率为200 W,光斑直径为100 μm,成型腔中充满稀有气体,水、氧含量(体积分数)均在10⁻⁵以下。激光束在预先铺好的粉末上按切片轮廓对粉末进行逐点逐线扫描,使路径上的粉末熔化的同时,使已凝固层发生部分重熔并迅速凝固。全过程在高纯度氩气保护气氛下进行,以避免氧化。

选择优化后的成形工艺参数:激光功率 P 为160 W,扫描速率 V_b 不超过30 m·min⁻¹,铺粉层厚 t 为20 μm,采用正交层错的扫描策略。

为便于观察激光熔池中的组织形态,将试样沿垂直于扫描线方向(横截面)和平行于扫描线方向(纵截面)切开,经研磨、抛光后使用100 mL HCl、7 mL H₂SO₄、150 g CuSO₄的腐蚀剂侵蚀,在光学显微镜(OM)及环境扫描电子显微镜(ESEM)下进行组织观察。

表1 SRR99粉末的化学成分

Table 1 Chemical compositions of SRR99 powders

Composition	Al	Ti	Cr	Co	Ta	W	C	Ni
Mass fraction /%	5.5	2.2	8.5	5.0	2.8	9.5	0.015	Bal.

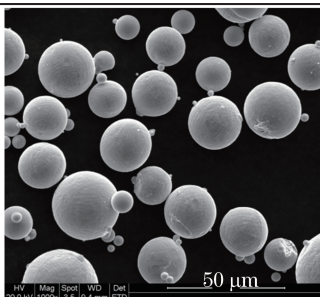


图1 SRR99单晶高温合金粉末形貌

Fig. 1 Morphology of single crystal superalloy SRR99 powders

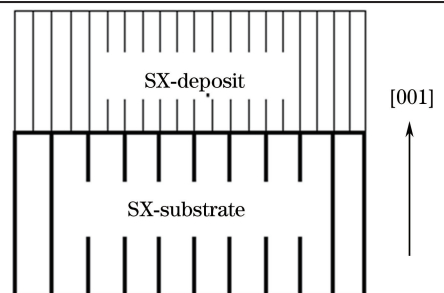


图2 外延生长示意图

Fig. 2 Schematic diagram of epitaxy growth

3 熔池组织分析

3.1 熔池横截面的几何关系

为了分析 SLM 熔池组织的分布情况,结合激光重熔的研究^[9-10],建立图 3 所示的熔池模型。设激光扫描速率为 V_b ,熔池凝固速率即固液界面的推进速率为 V_s , V_s 始终垂直于固液界面前沿,定义凝固速度与激光扫描速度间的夹角为 θ 。为定量计算 θ 的取值范围,图 4 给出了熔池横截面的几何关系,其中假设熔池横截面为理想的圆弧形,所在圆的半径设为 R ,铺粉层厚 t 近似等于熔池高度,熔池上表面宽度即熔覆道宽度设为 $2c$ 。存在如下几何关系:

$$R^2 = c^2 + (R - t)^2. \quad (1)$$

由图 4 可以看出,在熔池底部 θ 取值最大,等于 90° ,从熔池底部到顶部 θ 值逐渐减小,到熔池顶部 θ 值达到最小值 θ_{\min} ,求得这个最小值就可以得到 θ 的取值范围,且

$$\cos \theta_{\min} = c/R. \quad (2)$$

将(1)式代入(2)式化简得

$$\cos \theta_{\min} = \frac{2t}{c + t^2/c}. \quad (3)$$

在 SLM 成形过程中,铺粉层厚 t 可看作常数,因此只需获得适当工艺条件下最小的熔覆道半宽 c 即可求得 θ_{\min} 。当激光功率一定时, V_b 越大,熔覆道半宽 c 越小。在系列实验中,根据优化的工艺参数,当铺粉层厚 $t = 20 \mu\text{m}$,激光功率 $P = 160 \text{ W}$,最大扫描速率设为 $30 \text{ m} \cdot \text{min}^{-1}$ (若继续增大扫描速度将降低试样的致密度)时,测得熔覆道最小半宽度 $c = 50 \mu\text{m}$,将数值代入(3)式可得 $\theta_{\min} \approx 46.4^\circ$,即 θ 在 $46.4^\circ \sim 90^\circ$ 之间。

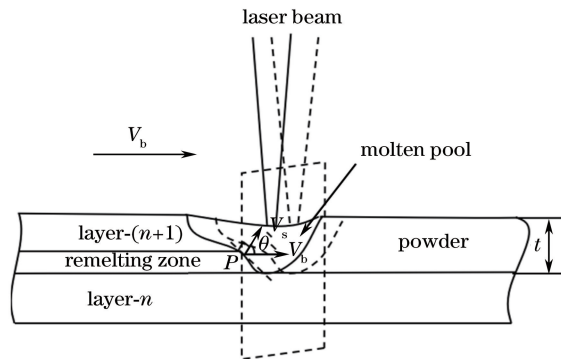


图 3 激光熔池模型

Fig. 3 Model of laser molten pool

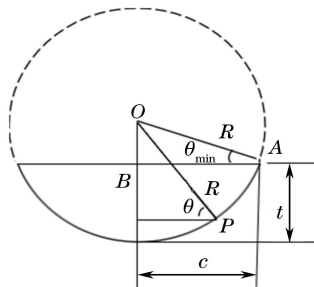


图 4 熔池横截面几何关系示意图

Fig. 4 Geometric relationship for cross section of molten pool

3.2 凝固条件与显微组织图

在快速凝固条件下,温度梯度 G 和凝固速率 V_s 的变化将影响熔池的组织形态,从熔池底部到顶部容易发生 CET,Gäumann 等^[6]建立了局部凝固条件与显微组织的关系:

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

式中 a 、 n 的取值与材料有关; N_0 为单位体积内的非均匀形核数; φ' 为等轴晶的体积分数。借鉴 Gäumann 在分析 CMSX-4 镍基高温合金 CET 时的方法, 取 $a = 1.25 \times 10^6 \text{ K}^{3.4} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, $n = 3.4$, $N_0 = 2 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$, $\varphi' = 0.66\%$ 。其中 $\varphi' = 0.66\%$ 是 CET 的临界值, 可以得到 SLM 成形 SRR99 的 CET 曲线, 如图 5 所示, 其中 ΔT_n 是在强制性快速生长条件下的形核过冷度。实线将整个区域分成两部分, 分别是左上部分的等轴晶生长区和右下部分的柱状晶生长区, 由图可知, 温度梯度越大, 凝固速率越小, 越有利于柱状晶的生长, 否则有利于等轴晶的生长。

SLM 成形 SRR99 单晶高温合金时, 熔池底部的温度梯度 G 最大, 从熔池底部到顶部 G 逐渐减小; 熔池底部的凝固速率 V_s 最小, 从熔池底部到顶部逐渐增大。可见在成形过程中恰当地设置工艺参数, 可使激光熔池组织位于柱状晶生长区, 各层组织能在上层组织的基础上保持外延生长特性, 基材的晶体取向就能够在成形过程中逐层传递下去, 获得多层的定向凝固组织。

SLM 成形系统的温度梯度 G 取值范围^[18] 为 $10^7 \sim 10^9 \text{ K} \cdot \text{m}^{-1}$ 。由于 $V_s = V_b \cos \theta$, 在实验参数范围内, 根据 3.1 节计算得到的 θ 取值范围可得 V_s 的取值范围为 $0 \sim 3.45 \times 10^{-4} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。将温度梯度和凝固速度范围标注在 CET 图中, 得到实验条件下 SRR99 单晶高温合金的局部凝固条件与显微组织的关系, 如图 5 阴影部分所示, 可见所选实验参数合理, 在成形时不会发生 CET, 激光熔池组织全部为柱状晶形态。

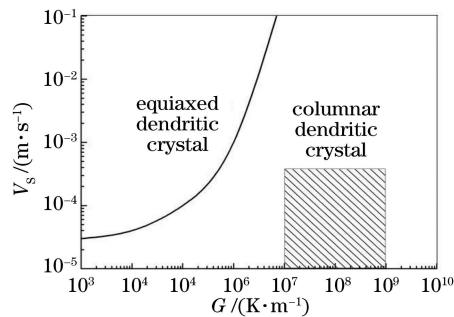


图 5 在 $N_0 = 2 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$, $\varphi = 0.66\%$, $\Delta T_n = 2.5 \text{ }^\circ\text{C}$ 实验条件下, SRR99 凝固条件和显微组织关系图

Fig. 5 Relationship diagram of solidification condition and microstructure of SRR99 under experimental conditions of

$$N_0 = 2 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}, \varphi = 0.66\% \text{ and } \Delta T_n = 2.5 \text{ }^\circ\text{C}$$

3.3 熔池组织的预测

由以上分析可知, SLM 成形 SRR99 单晶高温合金的熔池组织均为柱状晶。而面心立方的 SRR99 有 $[001]$ 、 $[010]$ 、 $[100]$ 三个择优生长方向, 为了分析熔池各区域组织确切的生长取向, 定义某一取向的枝晶生长速率为 V_{hkl} , Yang 等^[9] 通过理论分析得到了 V_{hkl} 与 V_b 的关系, 如图 6 所示, 其中 φ 为枝晶择优生长速度与凝固速度的夹角。 $\theta \geq 45^\circ$ 有利于熔池底部 $[001]$ 方向枝晶 ($\varphi > 45^\circ$) 和熔池两侧 $[010]$ 方向枝晶 ($\varphi < 45^\circ$) 的生长, $\theta < 45^\circ$ 有利于熔池顶部沿扫描方向的 $[100]$ 方向枝晶的生长, 如图 7 所示。

在实验工艺参数范围内计算得到 $\theta_{\text{min}} \approx 46.4^\circ$ (大于 45°), 可以预测到 SLM 成形的熔池组织由熔池底部向顶部生长的 $[001]$ 区枝晶和熔池两侧的 $[010]$ 区枝晶两部分组成, 没有沿扫描方向的 $[100]$ 晶区。

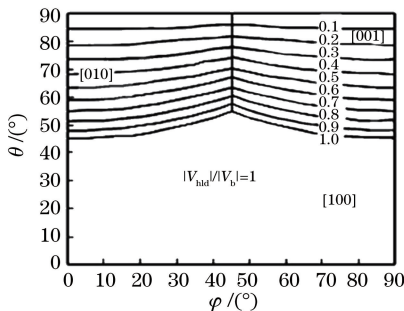


图 6 (001) 晶面上沿 $[100]$ 晶向扫描时 $|V_{\text{hkl}}| / |V_b|$ 的等值线^[9]

Fig. 6 Isopleth map of $|V_{\text{hkl}}| / |V_b|$ when scanning along $[100]$ direction on (001) surface^[9]

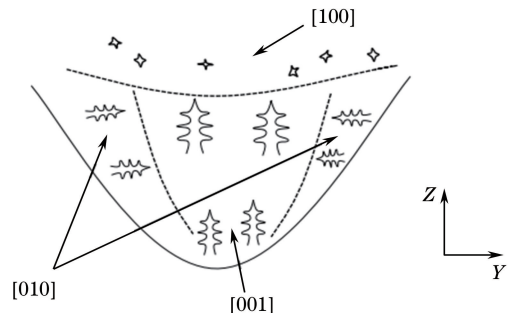


图 7 典型 SLM 镍基单晶高温合金组织示意图

Fig. 7 Microstructural diagram of typical Ni-based single crystal superalloy fabricated by SLM

4 实验验证

在激光功率 $P=160\text{ W}$ 、铺粉层厚 $t=20\ \mu\text{m}$ 、不同扫描速率 ($V_b \leq 30\ \text{m}\cdot\text{min}^{-1}$) 的条件下进行系列实验。图 8(a)、(b) 所示为扫描速度分别为 $30\ \text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ (试样 1) 和 $25\ \text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ (试样 2) 时试样横截面的光学显微组织, 可以看出, 从熔池底部到顶部是沿沉积方向生长的 $[001]$ 枝晶。这是因为熔池底部区域有自上而下的最大的温度梯度, 而枝晶实际生长方向又与热流方向有关, 即沿着与热流方向最为接近的择优方向生长, 所以 $[001]$ 枝晶优先生长; 又由于 SLM 成形过程有较大的强制性竖向温度梯度, 故在熔池中心线区域 $[001]$ 枝晶可以从底部一直延续到熔池顶部。一般情况下, 最大温度梯度方向垂直于熔池边界, 随着凝固的进行, 从熔池底部到熔池两侧熔池边界线越来越陡峭, 最大温度梯度方向从竖直方向向水平方向变化, 与热流方向最相近的择优取向也由 $[001]$ 变为 $[010]$, 故熔池两侧是横向生长的 $[010]$ 枝晶区域, 熔池顶部无沿扫描方向生长的 $[100]$ 晶区, 与理论分析相吻合。图 8(c) 所示为 A 处的高倍放大组织形貌, 表明熔池边界与上一基层熔合良好; 图 8(d) 显示沉积试样与单晶基板形成了良好的冶金结合, 基板的取向得到了很好的延续。

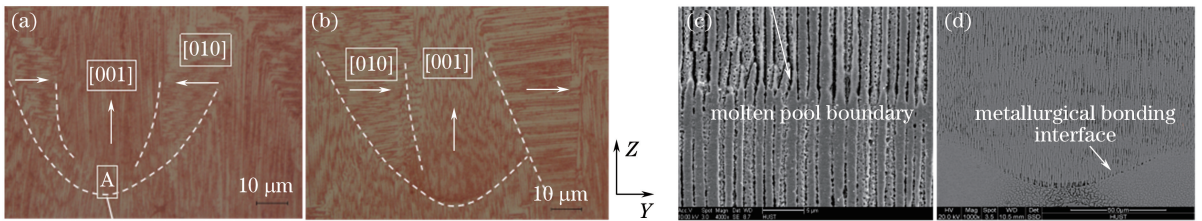


图 8 试样的横截面显微组织 ($P=160\text{ W}$)。 (a) $V_b=30\ \text{m}\cdot\text{min}^{-1}$;

(b) $V_b=25\ \text{m}\cdot\text{min}^{-1}$; (c) A 处的显微组织形貌; (d) 试样与基板的冶金结合

Fig. 8 Cross-sectional microstructure of samples ($P=160\text{ W}$). (a) $V_b=30\ \text{m}\cdot\text{min}^{-1}$; (b) $V_b=25\ \text{m}\cdot\text{min}^{-1}$;

(c) microstructural morphology of zone A; (d) metallurgical bonding between sample and substrate

图 9 所示为试样 1 沿扫描方向的显微组织形貌, 可以看到, 熔池中间为沿沉积方向的 $[001]$ 枝晶, 其截面呈蜂窝状, 二次枝晶不发达, 熔池两侧是横向生长的 $[010]$ 枝晶区域, 可见 SLM 成形 SRR99 镍基单晶高温合金的熔池组织是定向凝固柱状晶, 由熔池底部向顶部生长的 $[001]$ 枝晶区、熔池两侧的 $[010]$ 枝晶区两部分组成。

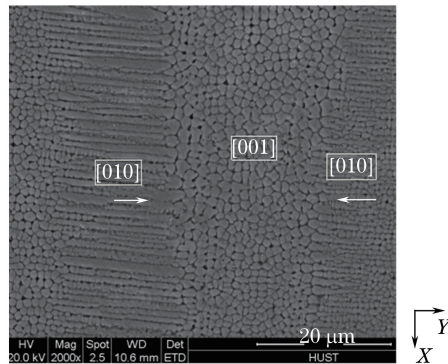


图 9 沿扫描方向的显微组织形貌

Fig. 9 Microstructural morphology along scanning direction

5 结 论

采用 SLM 成形技术, 在铸造镍基单晶高温合金基板上预先铺粉, 通过激光层层扫描制造实体。重点分析了实体成形过程中激光熔池凝固的组织特点, 建立了激光熔池横截面的几何关系。在激光功率 $P=160\text{ W}$ 、铺粉层厚 $t=20\ \mu\text{m}$ 、扫描速率 $V_b \leq 30\ \text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ 的条件下, 计算出凝固速度与激光扫描速度间夹角的最小值 $\theta_{\min} \approx 46.4^\circ$ (大于 45°)。得到 SLM 成形 SRR99 单晶实体的凝固条件与显微组织之间的关系, 表明激光熔池组织全部为柱状晶。进一步预测了激光熔池组织仅由熔池底部向顶部生长的 $[001]$ 枝晶区和熔池两侧的 $[010]$ 枝晶区两部分组成, 无沿扫描方向的 $[100]$ 晶区。实验结果与预测结果相符, 且熔池中心线区域

的[001]枝晶区从底部一直延续到熔池顶部,基材的晶体取向在层间得到了延续。

参 考 文 献

- [1] Hu Zhuangqi, Liu Lirong, Jin Tao, *et al.* Development of the Ni-base single crystal superalloys[J]. *Aeroengine*, 2005, 31(3): 1-7.
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] Tang Zhongjie, Guo Tieming, Fu Ying, *et al.* Research present situation and the development prospect of nickel-based superalloy[J]. *Metal World*, 2014(1): 36-40.
唐中杰, 郭铁明, 付迎, 等. 镍基高温合金的研究现状与发展前景[J]. *金属世界*, 2014(1): 36-40.
- [3] Ford T. Single crystal blades[J]. *Aircraft Engineering and Aerospace Technology*, 1997, 69(6): 564-566.
- [4] Arakere N K, Swanson G. Effect of crystal orientation on fatigue failure of single crystal nickel base turbine blade superalloys[J]. *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power*, 2002, 124(1): 161-176.
- [5] Kurz W, Bezençon C, Gäumann M. Columnar to equiaxed transition in solidification processing [J]. *Science and Technology of Advanced Materials*, 2001, 2(1): 185-191.
- [6] Gäumann M, Bezençon C, Canalis P, *et al.* Single-crystal laser deposition of superalloy: Processing-microstructure maps[J]. *Acta Materialia*, 2001, 49(6): 1051-1062.
- [7] 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.
- [8] Ardakani M G, D'Souza N, Wagner A, *et al.* Competitive grain growth and texture evolution during directional solidification of superalloys[A]. *The Minerals Metals and Materials Society*, 2000.
- [9] Yang S, Huang W D, Liu W J, *et al.* Development of microstructures in laser surface remelting of DD2 single crystal[J]. *Acta Materialia*, 2002, 50(2): 315-325.
- [10] Huang Weidong. *Laser solid forming*[M]. Xi'an: Northwestern Polytechnical University Press, 2007.
黄卫东. *激光立体成形*[M]. 西安: 西北工业大学出版社, 2007.
- [11] Chen Guangxia, Zeng Xiaoyan. Comparative research on direct laser fabrication and selective laser melting[J]. *Modern Manufacturing Engineering*, 2005(5): 72-75.
陈光霞, 曾晓雁. DLF与SLM激光快速成型方法的比较研究[J]. *现代制造工程*, 2010(5): 72-75.
- [12] Kempen K, Yasa E, Thijs L, *et al.* Microstructure and mechanical properties of selective laser melted 18Ni-300 steel[J]. *Physics Procedia*, 2011, 12: 255-263.
- [13] Wang F, Wu X H, Clark D. On direct laser deposited Hastelloy-X: dimension, surface finish, microstructure and mechanical properties[J]. *Materials Science and Technology*, 2011, 27(1): 344-356.
- [14] Jia Q B, Gu D D. Selective laser melting additive manufacturing of Inconel 718 superalloy parts: densification, microstructure and properties[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2014, 585(6): 713-721.
- [15] Carter L N, Wang X, Read N, *et al.* Process optimisation of selective laser melting using energy density model for nickel based superalloys[J]. *Materials Science and Technology*, 2016, 32(7): 657-661.
- [16] Hou Huipeng, Liang Yongchao, He Yanli, *et al.* Microstructure evolution and tensile properties of Hastelloy-X parts produced by selective laser melting[J]. *Chinese J Lasers*, 2017, 44(2): 0202007.
侯慧鹏, 梁永朝, 何艳丽, 等. 选区激光熔化 Hastelloy-X 合金组织演变及拉伸性能研究[J]. *中国激光*, 2017, 44(2): 0202007.
- [17] Yan Anru, Yang Tiantian, Wang Yanling, *et al.* Thermal properties and mechanical properties of selective laser melting different layer thicknesses of Ni powder[J]. *Chinese J Lasers*, 2016, 43(2): 0203004.
闫岸如, 杨恬恬, 王燕灵, 等. 选区激光熔化不同层厚镍的热特性与机械性能[J]. *中国激光*, 2016, 43(2): 0203004.
- [18] Pan Aiqiong. Study on SRR99 Ni-based single-crystal superalloy by selective laser melting [D]. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology, 2013: 28-29.
潘爱琼. 选区激光熔化成形 SRR99 镍基单晶的基础研究[D]. 武汉: 华中科技大学, 2013: 28-29.