

DOI: 10.16410/j.issn1000-8365.2024.3298

非(001)晶面促进激光单晶熔凝过程中 柱状晶外延生长

王雷, 何峰, 王志军, 李俊杰, 王锦程

(西北工业大学凝固技术国家重点实验室, 陕西西安 710072)

摘要: 当激光熔池内的柱状枝晶沿着熔池边界外延生长时, 其方向并不严格平行于温度梯度, 而是选择与基体一致的择优方向生长, 因此基体取向可以影响柱状晶的外延生长行为。在使用激光金属成型/沉积技术修复昂贵的单晶部件时, 需要考虑这一特性。现有研究已经实现了(001)晶面上的柱状晶完全外延生长进而获得完整单晶。然而由于叶片形状复杂, 实际修复过程中可能会遇到的不同取向表面。论文对(001)和非(001)取向表面修复过程中的杂晶形成能力进行了比较研究, 通过数值计算获得了控制微观组织的局部凝固变量, 并将杂晶晶粒的体积分数作为量化单晶完整性指数。结果表明, 与(001)晶面相比, 多数非(001)晶面可以促进柱状晶的外延生长, 进而获得更好的单晶完整性, 实验结果也验证了这一结论。分析显示不同枝晶生长区域的边界是杂晶形成敏感区, 两种晶面的差异在于边界数目及其位置。研究结果可以优化修复和制造应用中的沉积方向和激光加工窗口提供指导。

关键词: 单晶高温合金; 激光修复; 晶区分布; 杂晶形成

中图分类号: TG111.4

文献标识码: A

文章编号: 1000-8365(2024)03-0288-05

Enhanced Epitaxial Growth of Columnar Crystal in Laser Repaired Single Crystal Superalloys on Non-(001)-Oriented Surfaces

WANG Lei, HE Feng, WANG Zhijun, LI Junjie, WANG Jincheng

(State Key Laboratory of Solidification Processing, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

Abstract: Epitaxial crystal in dendritic form grows along the crystallographic direction of a substrate and can be misoriented with respect to the heat flow direction. This point needs to be considered during the repair of valuable single crystal components with laser metal forming/deposition techniques. During the process, achieving epitaxial structures without nucleated grains is required to maintain single crystal integrity, which is achieved on (001)-oriented planes. However, randomly oriented surfaces can be encountered in real applications that need to be examined. In this work, the repairs on (001)- and non-(001)-oriented surfaces are studied comparatively, with a focus on the avoidance of nucleated grains. The local solidification variables that control the deposited structures are calculated, and the fraction of nucleated grains is quantified as an index of single-crystal integrity. The results show that enhanced epitaxial growth can be achieved on most non-(001) planes compared to the (001) surface, which is also verified by our experiments. This difference can be related to the boundaries of different dendritic growth regions as well as their locations. It is expected that the results can be applied to optimize deposition orientations and laser processing windows in repair and manufacturing applications.

Key words: single-crystal superalloy; laser repair; growth region distribution; stray grain formation

柱状晶外延生长的一个典型特征是热量主要由基体传输, 在这种情况下, 热流与界面移动方向相反。根据界面移动的速度, 其形态可以随着速度的增加从平面→细胞→树突→细胞→平面演化。细胞倾向于平行于热流方向生长。然而, 由于界面能

和/或动力学的各向异性, 枝晶将沿着最接近热流方向的择优晶体方向生长。因此, 对于外延枝晶来说, 其方向不仅由热流决定, 还受基体取向影响。这对于理解和控制昂贵单晶高温合金激光修复过程中的组织演化非常重要^[1]。

收稿日期: 2023-12-08

基金项目: 中央高校基本科研业务费专项资金; 凝固技术国家重点实验室自主研究课题(2023-TS-01); 国家自然科学基金(52301063)

作者简介: 王雷, 1989年生, 博士研究生, 教授。研究方向为凝固微观组织模拟。Email: lei.wang@mail.nwpu.edu

引用格式: 王雷, 何峰, 王志军, 等. 非(001)晶面促进激光单晶熔凝过程中柱状晶外延生长[J]. 铸造技术, 2024, 45(3): 288-292.

WANG L, HE F, WANG Z J, et al. Enhanced epitaxial growth of columnar crystal in laser repaired single crystal superalloys on non-(001)-oriented surfaces[J]. Foundry Technology, 2024, 45(3): 288-292.

镍基高温合金因其在高温下具有优异的机械性能而成为制造燃气轮机热部部件的择优材料^[2]。这种材料被铸造成单晶形式,通过消除晶界来改善性能。然而,单晶部件非常昂贵,非常需要有效的维修技术来延长其使用寿命。一种有前景的方法是激光金属沉积/成形技术^[3-4]。成功的修复需要维持单晶结构,因此确保熔池内柱状晶沿原始基体方向外延生长是修复成功与否的关键^[5]。

在大多数情况下,修复是在(001)取向的表面上进行的^[6],并且需要仔细控制激光加工参数以获得良好的外延枝晶。在实际应用中,由于单晶组件的复杂形状,可以在各种晶面进行修复^[7-12]。为了使这项技术更加实用,有必要研究非(001)表面的情况。除了从技术角度来看具有重要意义外,控制杂晶晶粒形成的基本变量对于成功的单晶修复和过程控制至关重要。当过冷液体与其自身的固体对应物接触时,外延生长和成核之间存在竞争。与基底没有取向关系的杂晶晶粒需要被抑制。取决于晶体生长速度 V_d 和沿方向的温度梯度 G_d 的结构过冷区是成核发生的地方。当在不同取向的表面上进行激光沉积时,外延晶体的生长方向会发生变化,从而导致 G_d 和 G_d 的变化。这会影响组织过冷的程度并最终影响形核敏感性。因此,详细了解如何随沉积表面变化及其对外延生长质量的影响是这项工作的重点。在本工作中,我们对各种取向平面的凝固变量进行了数值计算,并显示了修复结构的差异。发现在非(001)表面上获得了增强的外延生长,并被实验证实。

1 理论模型

图 1a 是非(100)取向表面上的激光重熔过程的中心纵截面的熔池形状的示意图。激光束沿 x 方向以 V_b 的速度扫描。达到稳定状态后熔池形状保持恒定。基板定向为在[100]和 x 轴之间具有角度。当 $\xi=0^\circ$ 时,激光束在(001)晶体表面上沿[100]方向扫描。这种情况下枝晶生长区域的典型分布如图 1b 所示。由于柱状枝晶竞争生长,熔池内形成了 4 个

具有沿着不同择优方向生长的晶区。 ξ 是基板从(001)面旋转到非(001)面的角度,如果基板顺时针旋转,则定义为正。当 $\xi=\pm 45^\circ$ 时,基板表面为[10 $\bar{1}$]。由于 FCC 晶体的四重对称性, $\xi=-45^\circ$ 与 45° 对应情况完全相同,因此本文仅给出 45° 的情况。为了实现关于中心线对称的结构,激光束的扫描轨迹被限制在 $y=0$ 平面内,否则就会形成如 Park 等^[13]所示关于熔池不对称的微观结构。 ψ_{hkl} 是择优生长方向[hkl]与熔池法线之间的取向差角,其中 hkl=001、010 或 100。固液界面速度 V_n 与 V_b 的关系为: $|V_n|=V_b \cdot n=V_b \cdot \cos\theta$ 。

外延柱状枝晶局部凝固变量(温度梯度和生长速度)的计算方法如下。首先通过求解稳态传热方程计算温度场:

$$\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + \frac{V_b}{\alpha} \frac{\partial T}{\partial x} = 0 \quad (1)$$

式中, V_b 为 2.5 mm/s, $\alpha=4.98 \times 10^{-6}$ m²/s。激光束的能量为高斯分布并由下式描述:

$$q(x, y) = \frac{2\eta P}{\pi r_b^2} \cdot \exp\left\{\frac{-2(x^2+y^2)}{r_b^2}\right\} \quad (2)$$

式中, η 为吸收系数; P 为激光功率; r_b 为激光束半径。文中, $\eta=0.5$ 、 $P=230$ W 和 $r_b=0.75$ mm。为简单起见,忽略了熔池内部液流的影响^[14]。本研究选用国产第二代单晶高温合金 DD6, 其成分为 Cr-4.5Co-9.0Mo-2.0W-8.0Ta-7.5Re-2.0Nb-0.5Al-5.6Hf-0.1Ni-Bal (重量百分数)。相比于熔池尺寸,糊状区的大小可以忽略不计,因此定义熔池形状为液相线的等温线 $T=T_l=1401$ K。计算温度梯度 G_n 和固液界面法向 n :

$$G_n = \sqrt{G_x^2 + G_y^2 + G_z^2} \quad (3a)$$

$$n = \left(\frac{G_x}{G_n}, \frac{G_y}{G_n}, \frac{G_z}{G_n} \right) \quad (3b)$$

值得注意的是,单晶熔池中的枝晶不是沿着热流方向生长,而是沿着几个择优的晶体方向生长并形成不同的生长区域。对于 FCC 晶体,择优生长方向是对应于界面刚度的最小值^[15-16]的 $\langle 100 \rangle$ 方向。由于存在 6 个 $\langle 100 \rangle$, 具体哪个择优方向会被选择由最小过冷标准^[17-19]决定,这相当于柱状晶沿着该方

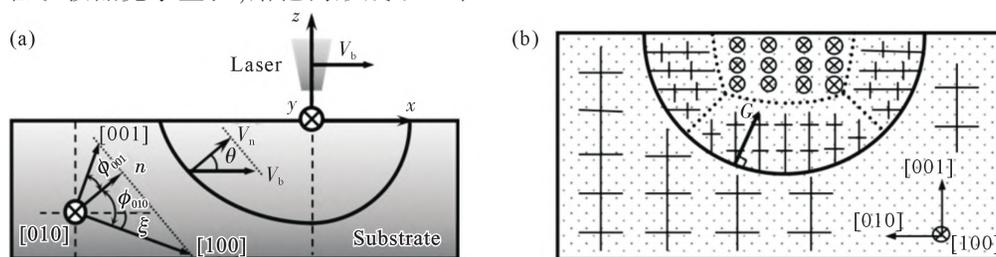


图 1 非(100)晶面上的激光熔凝过程及晶区分布示意图:(a) 激光熔凝过程,(b) 晶区分布示意图

Fig.1 Schematics of the laser remelting processes and growth region distribution on the non-(100) plane: (a) laser remelting processes, (b) growth region distribution

向与法线方向偏差最小的择优方向生长：

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

式中, $\psi_{hkl} = \arccos(\mathbf{n}_{hkl} \cdot \mathbf{n})$ 。沿[hkl]方向的法线 \mathbf{n}_{hkl} 可以通过旋转矩阵计算, 该旋转矩阵将矢量从晶体坐标转换为 $x-y-z$ 坐标。

$$R(\xi) = \begin{bmatrix} \cos\xi & 0 & -\sin\xi \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin\xi & 0 & \cos\xi \end{bmatrix} \quad (5)$$

在确定枝晶生长方向后, 沿枝晶方向的局部凝固变量由下式给出：

$$V_d = \frac{V_n}{\cos\phi} \quad (6a)$$

$$G_d = G_n \cdot \cos\psi \quad (6b)$$

杂晶晶粒的体积分数 ϕ 可用于定量表征单晶完整性。通过将原始的柱状到等轴模型^[20]扩展到快速凝固条件, Gaumann 等^[6]通过以下方式将 ϕ 与局部凝固条件和材料参数相关联：

$$\frac{G_d^n}{V_d} = a \left\{ \sqrt[3]{\frac{-4\pi N_0}{3\ln(1-\phi)}} \frac{1}{n+1} \right\} \quad (7)$$

式中, $a = 1.25 \times 10^6 \text{ K}^n \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$, $n = 3.4$, $N_0 = 2 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$ 。值得注意的是, 这些参数的数值是在 CMSX-4 合金^[6]确定的, 对于国产 DD6 合金, 由于合金成分接近, 其参数可假定与 CMSX-4 合金接近。同时注意到, a 和 N_0 的数值只会影响杂晶积分数的绝对值, 不影响基体取向之间的相对差异。

2 实验结果及讨论

图 2a 显示了不同旋转角度 ξ 对应的枝晶生长

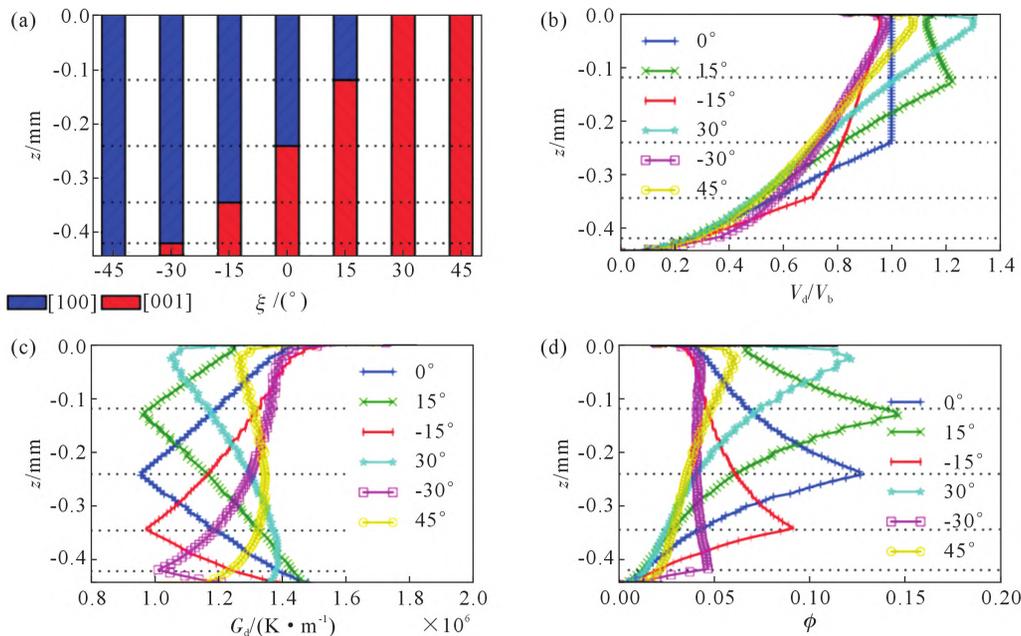


图 2 特征量随沿着中轴线的熔池深度的变化规律:(a) 晶区分布, (b) 归一化枝晶生长速度, (c) 温度梯度在枝晶生长方向的分量, (d) 杂晶体积分数

Fig.2 The evolution of characteristic parameters along the depth of the melt pool: (a) growth region distribution, (b) normalized growth velocity, (c) thermal gradient component along the dendritic growth direction, (d) volume fraction of stray grains

区域在熔池深度方向的分布情况。两个生长区域 [100] 和 [001] 形成并相互竞争, 其边界位于不同深度, 如虚线所示。当基体表面为 (001) 取向时, 即 $\xi = 0^\circ$ 时, 熔池的下半部分被向上生长的 [001] 枝晶占据, 而 [100] 枝晶平行于激光束方向移动并占据上半部分。在边界处, 枝晶生长方向发生了 90° 的变化。当基体旋转到具有非 (001) 表面时, [100] 和 [001] 区域之间的边界随着移动。当 $\xi \rightarrow 45^\circ$ 时, 边界随着的增加而向上移动。当 $\xi \geq 30^\circ$ 时, [001] 枝晶占据整个熔池。当 $\xi \rightarrow -45^\circ$ 时, 边界向下移动, 最终仅出现 [100] 枝晶。图 2b 和 c 显示了不同方向的 V_d/V_b 和 G_d 随熔池深度 z 的变化。由于 V_d 与 V_b 相关, 因此给出了归一化速度 V_d/V_b 。从熔池底部到表面, 除 $\xi = 15^\circ$ 外, 所有方向的 V_d 都不断增加。 V_d 可以大于 V_b , 如 $\xi = 15^\circ, 30^\circ$ 和 45° 的情况。当 $\xi = 15^\circ$ 时, V_d 在边界处达到最大值, 而对于其他情况, $V_d/V_b(z)$ 的斜率会发生变化。至于 G_d , 其值范围为 1.0×10^6 至 $1.5 \times 10^6 \text{ K/m}$, 这是激光重熔工艺中的典型值。一个典型的特征是, 由于 ψ 在边界处最大, 因此 G_d 总是在边界处达到最小值。这说明尽管如式 (6b) 所示, G_d 由 G_n 和 $\cos\psi$ 共同决定, 但 $\cos\psi$ 的影响更占主导地位。杂晶体积分数 $\phi(z)$ 随变化的情况如图 2d 所示。对于有两个枝晶生长区域的情况, ϕ 始终达到最小值在边界处。随着边界的移动, 位置最小 ϕ 相应移动。可以看到, ϕ 的最大值对应于 G_d 的最小值, 但和 V_d 的分布并无直接关联。其原因是 ϕ 取决于 $G_d^{3.4}/V_d$ 而不是 G_d/V_d , G_d 是决定 ϕ 的主要参数如式 (7) 所示。

为了比较(001)和非(001)取向之间的差异,计算了 $\bar{\phi}$ 和 ϕ_{\max} 随旋转角度的变化情况,如图3所示。其中 ϕ_{\max} 是 ϕ 场沿z轴的最大值, $\bar{\phi}$ 而 ϕ 是在整个熔池深度的平均值,其通过下式定义为:

$$\bar{\phi} = \frac{1}{|z_{\max}|} \int_{z_{\max}}^0 \phi dz \quad (8)$$

$\bar{\phi}$ 和 ϕ_{\max} 的值越低,外延生长的质量和单晶完整性越高。

可以看出,在多数情况下(001)取向的基板比非(001)基板具有更高的 $\bar{\phi}$ 和 ϕ_{\max} ,这表明(001)取向表面并不是外延生长的最佳情况。 $\xi=15^\circ$ 是具有最高的和的取向,最容易形成杂晶。就避免晶粒形核而言, $\xi=-30^\circ$ 对应的熔池内部 ϕ_{\max} 最低, $\xi=45^\circ$ 的最低,是两个最优选择。 $\xi=45^\circ$ 对应的 $\bar{\phi}$ 低于 $\xi=0^\circ$ 的原因是熔池内部没有[100]/[001]晶区边界。如前所示,朝晶区边界快速增加并在此处达到最大值。因此晶区边界的存在可以提高的平均值,这也表明消除晶区边界是抑制杂晶形核的有效方法。除了边界的长度,边界的位置也起着重要作用。通过 $\xi=15^\circ$ 和 $\xi=-30^\circ$ 情况对比可以清楚地看到这一点,它们分别具有最高和最低的 ϕ_{\max} 。这说明即使 ϕ 在晶区边界处达到最大值,它的值很大程度上也取决于边界的位置。从图2c可以看出,边界处的 $G_d(\xi=15^\circ)$ 和 $G_d(\xi=-30^\circ)$ 之

间的差异很小,但 $\phi_{\max}(\xi=15^\circ)$ 大约是 ϕ_{\max} 的3倍($\xi=-30^\circ$)。这可以解释如下,虽然 G_d 是控制 ϕ 的主要变量,但当 $V_d \rightarrow 0$ 时, $\phi \rightarrow 0$ 。当 $\xi \rightarrow -30^\circ$ 时,边界移动到 V_d 较小的熔池底部,导致 ϕ 很小。相反,当 $\xi \rightarrow 15^\circ$ 时,边界移动到具有较高 V_d 的熔池表面,因此具有更高的 ϕ_{\max} 。

为了验证计算结果,使用与模拟相同的加工条件在(001)和(011)取向表面(即 $\xi=0^\circ$ 和 45°)上进行激光金属沉积,其横截面的显微组织如图4所示。沉积结构的顶部形成成核晶粒导致在(001)取向的平面上修复失败,如图4a所示;而熔池内部的柱状晶在 $\xi=45^\circ$ 时实现了完全外延生长,因此可以保持完整的单晶结构,如图4b所示。这一结果清楚地表明,在非(001)取向表面上可以实现柱状枝晶的外延生长,从而保证单晶修复的完整性。

3 结论

- (1)两个择优生长区域的边界是达到最小值的区域,容易形成杂晶晶粒。
- (2)消除晶区边界或将晶区边界移至熔池底部可减少杂晶晶粒的形成。
- (3)该结果可应用于沉积取向和加工参数的优化,从而进一步提高单晶叶片激光修复的质量和效率。

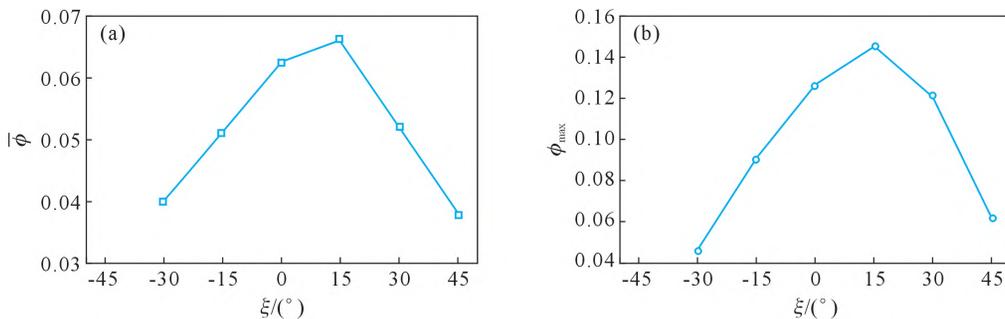


图3 杂晶体积分数的平均值和最大值随旋转角度的变化关系:(a)平均值,(b)最大值

Fig.3 The average value and the maximum value of stray grains as a function of the rotation angle: (a) the average value, (b) the maximum value

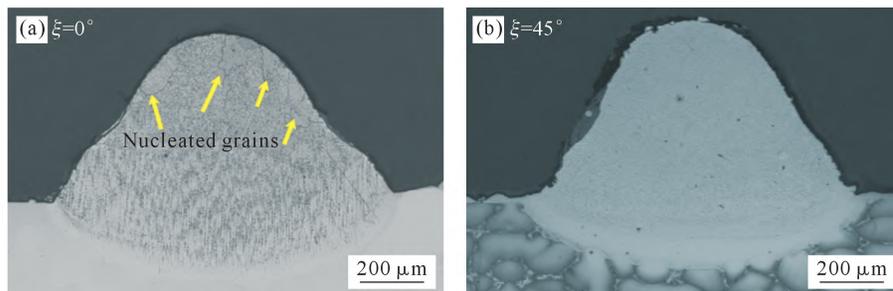


图4 (001)和非(001)晶面上激光粉末沉积镍基高温合金杂晶形成情况对比:(a) (001)晶面,(b)非(001)晶面

Fig.4 Comparison of stray grain formation during laser metal deposition on the (001) and non-(001) planes: (a) (001) plane, (b) non-(001) plane

参考文献:

- [1] 唐林峰,王楠,管强,等.单晶合金激光熔凝过程中晶向对单晶完整性的影响[J].物理学报,2010,59(11):7941-7948.
TANG L F, WANG N, GUAN Q, et al. Effect of orientation on integrity of single crystal during laser melted single crystal [J]. Acta Physica Sinica, 2010, 59(11): 7941-7948.
- [2] REED R C. The superalloys: Fundamentals and applications[M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2008.
- [3] 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.
- [4] HENDERSON M B, ARRELL D, LARSSON R, et al. Nickel based superalloy welding practices for industrial gas turbine applications[J]. Science and Technology of Welding and Joining, 2004, 9(1): 13-21.
- [5] 孙晓峰,宋巍,梁静静,等.激光增材制造高温合金材料与工艺研究进展[J].金属学报,2021,57(11):1471-1483.
SUN X F, SONG W, LIANG J J, et al. Research and development in materials and processes of superalloy fabricated by laser additive manufacturing[J]. Acta Metallurgica Sinica, 2021, 57(11): 1471-1483.
- [6] 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.
- [7] 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.
- [8] VILAR R, ALMEIDA A. Repair and manufacturing of single crystal Ni-based superalloys components by laser powder deposition—A review[J]. Journal of Laser Applications, 2014, 27(S1): S17004.
- [9] TAO S, GAO R, PENG H, et al. High-reliability repair of single-crystal Ni-base superalloy by selective electron beam melting[J]. Materials & Design, 2022, 224: 111421.
- [10] ANAND KUMAR S, RAJKUMAR V, NAGESHA B K, et al. Single crystal metal deposition using laser additive manufacturing technology for repair of aero-engine components [J]. Materials Today: Proceedings, 2021, 45: 5395-5399.
- [11] CI S W, LIANG J J, LI J G, et al. Microstructure and tensile properties of DD32 single crystal Ni-base superalloy repaired by laser metal forming [J]. Journal of Materials Science & Technology, 2020, 45: 23-34.
- [12] CHEN H, LU Y Y, LUO D, et al. Epitaxial laser deposition of single crystal Ni-based superalloys: Repair of complex geometry [J]. Journal of Materials Processing Technology, 2020, 285: 116782.
- [13] PARK J W, BABU S S, VITEK J M al, et al. Stray grain formation in single crystal Ni-base superalloy welds [J]. Journal of Applied Physics, 2003, 94(6): 4203-4209.
- [14] LIMMANEEVICHITR C, KOU S. Experiments to simulate effect of Marangoni convection on weld pool shape [J]. Welding Journal, 2000, 79: 231S-237S.
- [15] ASTA M, BECKERMANN C, KARMA A, et al. Solidification microstructures and solid-state parallels: Recent developments, future directions [J]. Acta Materialia, 2009, 57(4): 941-971.
- [16] HAXHIMALI T, KARMA A, GONZALES F, et al. Orientation selection in dendritic evolution [J]. Nature Materials, 2006, 5: 660-664.
- [17] DAVID S A, VITEK J M, RAPPAPAZ M, et al. Microstructure of stainless steel single-crystal electron beam welds [J]. Metallurgical Transactions A, 1990, 21: 1753-1766.
- [18] RAPPAPAZ M, DAVID S A, VITEK J M, et al. Development of microstructures in Fe-15Ni-15Cr single crystal electron beam welds [J]. Metallurgical Transactions A, 1989, 20: 1125-1138.
- [19] RAPPAPAZ M, DAVID S A, VITEK J M, et al. Analysis of solidification microstructures in Fe-Ni-Cr single-crystal welds [J]. Metallurgical Transactions A, 1990, 21: 1767-1782.
- [20] HUNT J D. Steady state columnar and equiaxed growth of dendrites and eutectic [J]. Materials Science and Engineering: A, 1984, 65(1): 75-83.