

文章编号:1673-9981(2022)02-0328-09

定向凝固过程中单晶合金枝晶生长的研究进展

岳帅帅,叶子天,郭扬帆,唐云宇,张小丽*

(北方民族大学材料科学与工程学院,宁夏 银川 750021)

摘要:随着定向凝固技术与工艺的不断发展,工程技术人员对枝晶生长的控制也越来越精准。为使枝晶生长朝着人们设定的方向发展,进而获得理想的组织结构,凝固过程的控制成为关键因素。定向凝固技术制备的合金虽能提高其综合力学性能,但受到枝晶生长等多方因素影响,因此有必要对枝晶生长方面的研究工作进行评述。综述了定向凝固工艺参数、合金成分和晶体取向对枝晶生长的影响,尤其是对一次枝晶间距的影响。通过建立物理模型来模拟枝晶的生长过程,一方面来验证理论模型的有效性,另一方面对于干扰因素进行预测和控制。此外,论文还分析与讨论了一次枝晶间距的极端范围与边界条件。最后,对影响定向凝固控制枝晶生长的因素进行了总结和展望。

关键词:定向凝固;单晶合金;枝晶生长;一次枝晶间距

中图分类号:TG244

文献标志码:A

引文格式:岳帅帅,叶子天,郭扬帆,等. 定向凝固过程中单晶合金枝晶生长的研究进展[J]. 材料研究与应用,2022,16(2):328-336.

YUE Shuaishuai, YE Zitian, GUO Yangfan, et al. Study on Dendritic Growth in Single Crystal Alloys During Directional Solidification[J]. Materials Research and Application,2022,16(2):328-336.

定向凝固技术是在凝固过程中采用强制手段,使已经凝固的合金和没有凝固的熔体之间建立单一方向的温度梯度,进而保证熔体沿着与热流相反的单一方向凝固,以此得到理想的定向凝固组织的一种铸造工艺。该技术的最大优势在于,其制备的合金材料有无横向晶界,因此纵向力学性能优异。定向凝固技术目前广泛应用于航空发动机中涡轮叶片的工艺制备^[1-4]。在设定好的定向凝固参数下,单相合金材料界面随着抽拉速率的不断提高都会经历一个从平界面到胞晶、枝晶的界面形态转变,其中枝晶生长能对材料的性能和寿命起到决定性影响,特别是一次枝晶间距作为枝晶生长形态中特别重要的表征尺寸,在近几年受到了研究者的广泛关注。针对不同的合金体系,想要进一步提高材料的性能需要结合合金本身的特性去研究分析,涉及材料内部

富含的元素种类和元素含量。史振学等^[6]通过对镍基单晶高温合金研究发现,随着Cr含量增加,合金的一次枝晶间距并没有明显变化,共晶含量明显增加,但合金组织的稳定性降低。这表明合金的优异性能取决于合金成分,但若要提高合金的性能不仅只局限于改变合金成分。比如,凝固过程中所设定的抽拉速率等工艺参数会影响界面前沿的温度梯度,进而影响一次枝晶间距的大小,而且随着凝固过程的推进,冷却速率会出现差异性变化。徐莽等^[5]发现,随着生长高度的增加一次枝晶间距会逐渐增加,但增加到某一值后趋于稳定。如果精准调控抽拉过程的进程,通过改变温度梯度和过冷条件来使定向合金的生长朝着预设的方向发展,有利于获得更多的参考数据。

早期,Hunt模型^[7]、Kurz-Fisher模型^[8]和 Trivedi

收稿日期:2021-07-28

基金项目:北方民族大学自治区级大学生创新训练计划项目(S2020-11407-008)

作者简介:岳帅帅(1999-),男,宁夏银川人,本科,学士,E-mail:tianrenxiliuguang@163.com。

通信作者:张小丽,E-mail:xlzhang@alum.imr.ac.cn。

模型^[9]对一次枝晶间距作出了理论解析,但是都没有考虑到晶体取向对枝晶生长的影响。Grugel和Zhou^[10]发现,随着抽拉速度和温度梯度之间的夹角增大,一次枝晶间距也在增大。随后,Gandin等^[11]研究了一次枝晶间距与晶体取向的关系,提出了倾斜一次枝晶间距模型。Esaka和Rappaz等^[12-13]通过透明合金研究了薄膜试样中的晶粒组织演化。王理林等^[14]通过对透明模型合金定向凝固研究发现,晶体取向会明显影响晶粒的平界面失稳行为,平界面失稳孕育时间和初始扰动随着固/液界面能各向异性项 $\omega\cos(4\theta_0)$ 增大而增大。王贤斌等^[15]发现:具有生长优势的二次枝晶臂对相邻枝晶的生长抑制作用,随枝晶的择优生长方向与温度梯度方向夹角的增大而增大;同时,一次枝晶间距也随枝晶的择优生长方向的夹角增大而增大。反过来讲,枝晶生长因受限于定向凝固过程中工艺参数的差异化和不确定性,导致晶体取向的偏离,进而影响到晶粒的竞争生长机制的正常进行,难以保持组织的均匀性。综合研究者不断研究出的成果,探讨晶体取向对整个枝晶生长过程的影响作用及微观组织演化规律,对提高合金性能十分重要。

一次枝晶间距是指相邻两个枝晶的枝晶干之间的垂直距离。不同的晶体材料因合金成分的差异具有本身独有的特性,针对某一型号合金设定不同凝固参数下所表现出的枝晶生长演化也会有所不同,但基本上都脱离不了根据机制和实验结果所修正后

建立的枝晶组织表征参数的理论模型。陈瑞等^[16]建立了改进型的元胞自动机模型,其可以对不同定向凝固工艺参数下枝晶生长过程开展数值模拟,验证理论模型的有效性及其一次枝晶间距是否在于一定范围内存在变化。采用镍基单晶高温合金来研究发现,凝固过程中存在枝晶消失和枝晶生长的现象,一次枝晶间距在一定的容许范围内波动调整,并指出其上限和下限的相差倍数因合金的特性决定,这与J. D. Hunt等^[17-18]认为一次枝晶间距的上限与下限相差一倍不符。在研究一次枝晶间距的分布情况下,一次枝晶间距越小代表着组织越细密,减小合金的一次枝晶间距可以对优化合金铸态组织起到促进作用,可有效降低铸态合金的共晶和 γ' 相尺寸及优化碳化物形貌,进而对合金的持久性能产生影响。

总结了定向凝固工艺参数对枝晶生长的影响,以及枝晶生长受合金成分和晶体取向的影响,通过数值模拟来深入分析枝晶的复杂生长过程,把一次枝晶间距作为枝晶形态演化中重要的特征尺度,并研究其规律性变化。

1 定向凝固工艺参数对枝晶生长的影响

1.1 抽拉速率对枝晶生长的影响

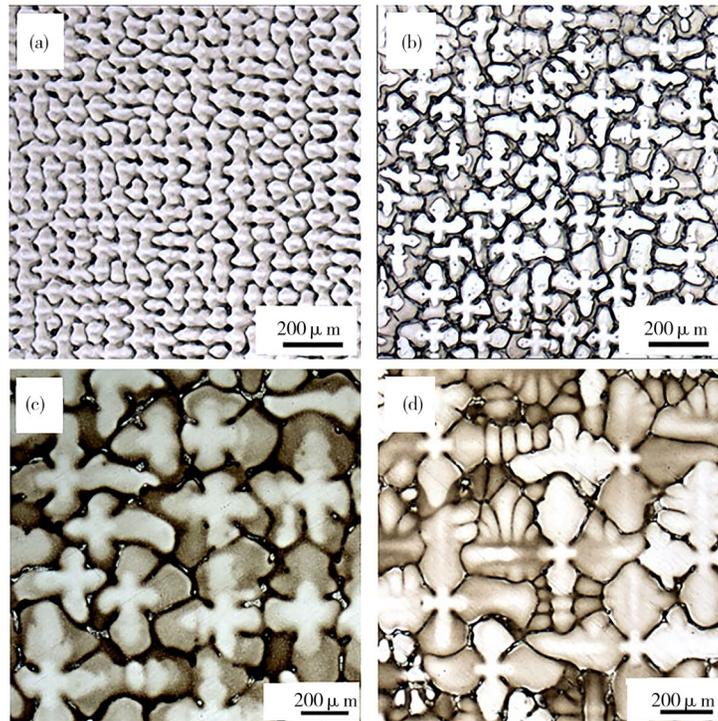
DZ466合金是北京航空材料研究院自主研发的新型耐蚀定向合金,其化学成分列于表1^[13]。

表 1 DZ466合金的化学成分
Table 1 Chemical composition of DZ466 alloy w/%

C	Al	Ti	Cr	Ta	Co	W	Mo	Hf	B	Ni
0~0.8	2~6	1~4	6~13	3~7	7~10	4~6	1~4	0~3	0~0.05	余量

姜华等^[19]在研究定向凝固工艺对DZ466合金显微组织的影响中指出,随着抽拉速率的增大,一次枝晶间距减小。型壳中合金液从液态转变为固态的凝固速率增大,增加了 γ 相机体内的过饱和度,从而增大了 γ' 相析出时的驱动力,促进了 γ' 相的析出和形核。但较快的抽拉速率。由于缩短了生长时间从而抑制了 γ' 相的长大,导致枝晶干和枝晶干 γ' 相尺寸均显著减小。在合金凝固的过程中,尽管Al和Ta等元素形成 γ' 相富集在枝晶间,但当达到共晶的成分时便会以共晶的形式析出,使共晶体积分数略微增加,但存在的共晶组织占少量,所以整体上枝晶

逐渐细化。采用电子探针进一步分析发现,一次枝晶间距的减小会抑制MC型碳化物在熔体内的扩散行为,使尺寸减小、形核增加,在枝晶间和晶界处分布更加弥散、均匀。通过实验也验证了抽拉速率对枝晶生长有明显的影响,结果如图1所示。从图1可见,当温度梯度较大时(图1(a)和图1(b), $G=240\text{ K}\cdot\text{min}^{-1}$),增大抽拉速率时一次枝晶间距明显减小;此外,当温度梯度较小时(图1(c)和图1(d), $G=80\text{ K}\cdot\text{min}^{-1}$),增大抽拉速率时一次枝晶间距减小,但是减小的趋势不如高温温度梯度时明显。



(a) $G=240 \text{ K}\cdot\text{min}^{-1}$, $v=1 \text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$; (b) $G=240 \text{ K}\cdot\text{min}^{-1}$, $v=6 \text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$;
(c) $G=80 \text{ K}\cdot\text{min}^{-1}$, $v=1 \text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$; (d) $G=80 \text{ K}\cdot\text{min}^{-1}$, $v=6 \text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$.

图1 不同温度梯度和不同抽拉速率的枝晶组织

Fig. 1 Dendrite structures of cross sections under different temperature gradients and pulling rates

1.2 温度梯度对枝晶生长的影响

保持抽拉速率一定时,提升温度梯度,一次枝晶间距明显减小;当抽拉速率较小时($v=1 \text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$),随着温度梯度的增大,一次枝晶间距减小;当抽拉速率较大时($v=6 \text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$),随着温度梯度的增大,一次枝晶间距也减小。此外,高温温度梯度能促进 γ' 相的析出和形核,但是抑制了相的长大,所以 γ' 相尺寸相对减小。因此,提高温度梯度会在一定程度上获得细小的枝晶组织和 γ' 相组织。但制备单晶高温合金DZ466所采用的HRS法主要是通过炉内保温加热区和试棒底部水冷托盘及辐射散热实现正的温度梯度,不足之处在于随着凝固距离的增加散热效率逐渐下降,这导致固液界面前沿的温度梯度略有降低,一次枝晶间距略有增大,抑制了 γ' 相的析出和形核而促进其长大,所以 γ' 相尺寸相对增大。

在保证定向凝固工艺参数设定不变的条件下,冷却速率的差异化因生长高度的增加而引起定向凝固组织的不均匀。徐莽等^[5]指出,定向凝固过程中冷却距离沿纵向方向增加,意味着散热效率的降低趋势逐渐稳定,导致一次枝晶间距会在生长高度30 mm处放慢增长速度,渐于平衡(图2)。同时,不同

生长高度处的 γ' 相大小、形态、数量及碳化物均会受到影响。被细化的 γ' 相分布于枝晶干和枝晶间处起到强化效果,防止产生裂纹;转变形态后的碳化物受限于二次枝晶干数量激增的约束,聚于枝晶干间形核。由此可见,只有精确控制温度梯度的高低和抽拉速率的快慢去满足生长高度下冷却速率的提高,

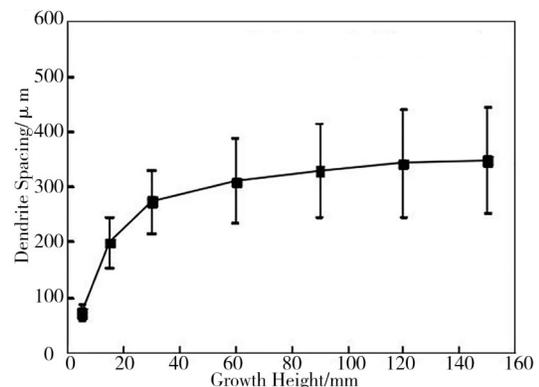


图2 定向凝固DZ4125合金不同枝晶间距与生长高度的关系^[5]

Fig. 2 Relationship between different dendrite spacing and growth height of directionally solidified DZ4125 alloy

才能实现优异性能合金的研发。

若将合金的性能潜力最大程度发挥出来,就要将以上凝固工艺参数(抽拉速率、温度梯度)确立在合适的区间界限内,并对数据进行对比分析以确立一套完备的工艺流程,且随着科学技术的不断发展和设备的更新换代,也需要切实更新和完善工艺参数。纵观定向凝固技术的发展过程,新型定向凝固技术较于常规定向凝固技术要求更细化组织,不断完善和发展着凝固理论^[20]。尽管不同的合金体系其受影响的规律存在差异,但仍需要结合科技产业进步的需要对合金做定性分析,为单晶高温合金的开发做好数据支撑。

2 合金成分对枝晶生长的影响

不同的合金因其富含的元素种类和元素含量具有各自独特的特性,定向凝固技术也只能依照它的优势去最大程度地激发该合金的潜能。Singer等^[21]对含Re和Ru的单晶高温合金凝固特性的研究表明,合金的结晶温度范围对Re的加入很敏感,并且导致了共晶含量的增大,而Ru的加入对合金的共晶含量没有造成明显影响。高斯峰等^[22]采用高速定向凝固工艺制备单晶高温合金DD403、DD407和Alloy A,通过分析对比发现结晶温度范围和元素种类会对共晶含量起到决定性影响,而3种合金一次枝晶间距差异是由结晶温度范围造成的。

总体上说,在凝固条件相同的情况下,不同合金的凝固偏析程度主要受结晶温度范围大小和合金成分的影响。结晶温度范围越大偏析越严重,共晶含量越高;枝晶凝固中溶质再分配会导致合金元素在枝晶干和枝晶间分布不均匀,合金元素之间也会因含量高低影响彼此的偏析程度。除此之外,阳大云等^[23]探讨合金成分与共晶数量的对应关系,对采用三因素三水平正交实验方法配置出的九种合金,使用电子探针在共晶块中心到枝晶干中心的直线上进行微区元素的定量分析发现,Co和W富集于枝晶干,而Ti元素强烈富集于枝晶间。随着Ti含量的增加,共晶数量大幅度增加且起着明显的促进作用。刘世忠等^[24]发现:在铸态组织中随着C含量的增加,枝晶间的共晶尺寸变小,含量减小;碳化物尺寸变大,含量增加,其形态向骨架状、汉字状转变。史振学等^[6]发现,随着Cr含量增加,枝晶间的共晶尺寸变大且含量增多。诸如C、Ti和Hf等都是MC碳化物的形成元素^[25],在枝晶干和枝晶间富集会有不同的效果,主要体现在凝固后期。

以镍基单晶高温合金这一体系来说,其金属结

构复杂,内部含有大量W、Ta及Mo等难熔金属元素。难熔金属元素含量过多,容易形成TCP相而导致合金力学性能下降,从而降低了使用寿命,难以适应高温工况;含量过低,则不能提高镍基单晶高温合金的耐高温性。如何在保持难熔元素含量又能尽量提高合金的耐高温性,降低TCP有害相的继续生成,提高组织的稳定性,这就需要去把握合金内各元素含量对枝晶生长的一个平衡。在尖端领域,不仅看重合金材料的耐高温性,还会向着提高合金的抗氧化、耐疲劳性和耐腐蚀等诸多优异的综合性能开展研究。但对于有些贵金属属于战略元素,各项性能提高的同时伴随着制造成本的不断增加。要想制造出优质合金,需要对合金内各元素做定量分析,明确其在合金中的作用,研究其对枝晶生长的优劣,最终调节比例或添换部分元素种类才能达到预想的性能指标。

3 晶体取向对枝晶生长的影响

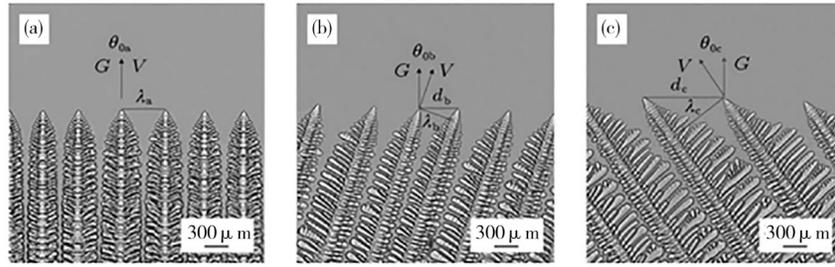
在定向凝固过程中,枝晶基本上会沿晶体特定的择优取向进行生长。王贤斌等^[15]对类金属透明模型合金丁二腈-1.0%乙醇(质量分数,SCN-1.0% Eth)合金进行了考察,如图3所示。从图3可以看出,随着一次枝晶与温度梯度的夹角 θ_0 的增大,一次枝晶间距逐渐增大。

在设定抽拉速率恒定的条件下,随着枝晶择优生长方向(100)与温度梯度的夹角 θ_0 的增大,枝晶形态会发生改变。在早期K-F尖端半径模型的基础上,结合晶体取向对一次枝晶间距的影响建立修正后的K-F模型^[15]。

$$\lambda_1 = 4.3(\Delta T')^{\frac{1}{2}} \left(\frac{D_L \Gamma}{\Delta T_0 k_0} \right)^{\frac{1}{4}} G^{-\frac{1}{2}} V^{-\frac{1}{4}} \left\{ 1 + d \left[(\cos \theta)^{-e} - 1 \right] \right\} \quad (1)$$

式(1)中 λ_1 为一次枝晶间距, $\Delta T'$ 为非平衡结晶温度范围, D_L 为液相溶质扩散系数, Γ 为Gibbs-Thomson系数, ΔT_0 为平衡结晶温度范围, k_0 为平衡溶质分配系数, G 为温度梯度, V 为凝固速率, V_c 为平胞转变临界速度, $V > V_c/k_0$ 。

不难看出,对于同一种合金,在相同的温度梯度和凝固速率下,一次枝晶间距会随着单晶(100)方向与温度梯度的夹角的增加而增大。不仅如此,晶体取向对定向凝固条件下的平界面失稳行为产生影响。从图3也可以看出,该晶体的(100)晶向与温度梯度的夹角增大会导致二次臂的生长方向和温度梯度方向夹角减小,发生竞争生长,使得二次枝晶臂生



(a) $\theta_{0a} = 0^\circ$; (b) $\theta_{0b} = 18^\circ$; (c) $\theta_{0c} = 35^\circ$.

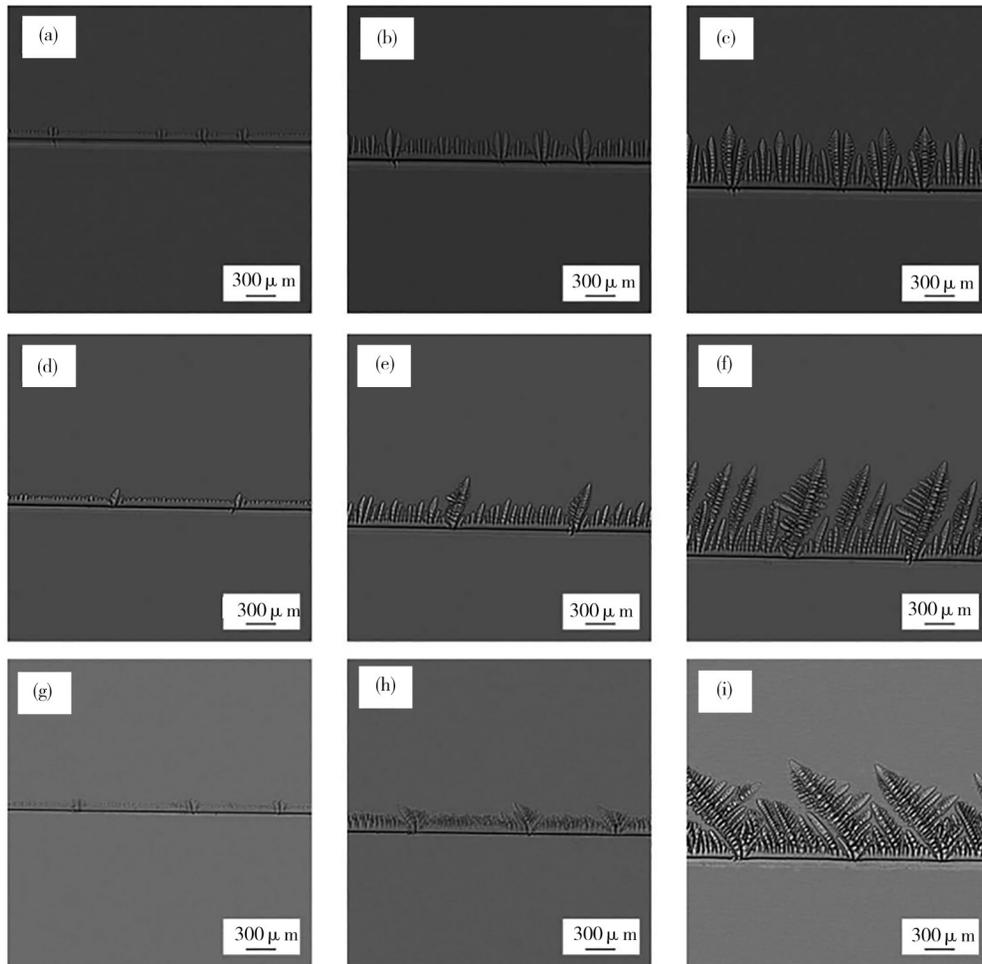
图3 不同取向晶体定向凝固枝晶的生长形貌^[15]

Fig. 3 The growth morphologies of directional solidified dendrites with different orientations

长优势增加,向相邻枝晶排除溶质产生富集进而起到抑制作用,使得一次枝晶间距增大。

结合以上分析,晶体取向对枝晶生长有着不可忽略的决定性影响,同时作为合金本身固有的特性,尽管设定同一凝固参数也会因合金种类的不同对枝晶生长演化产生影响。王理林等^[14]对在晶粒的平

界面非稳态演化过程中整体初始扰动共同沿着热流方向竞争生长(图4)进行了研究并认为,这主要是由不同频率的背景热起伏被选择性地放大所导致的,虽然对于单晶中可能存在的少量缺陷会受晶体取向的不同会有能量高低的变化,但界面失稳却对此并不敏感,其为次要因素。因此,结合合金本身固



(a) $\theta_{0a} \approx 0^\circ, t = 25 \text{ s}$; (b) $\theta_{0a} \approx 0^\circ, t = 50 \text{ s}$; (c) $\theta_{0a} \approx 0^\circ, t = 75 \text{ s}$; (d) $\theta_{0b} \approx 18^\circ, t = 25 \text{ s}$; (e) $\theta_{0b} \approx 18^\circ, t = 50 \text{ s}$; (f) $\theta_{0b} \approx 18^\circ, t = 75 \text{ s}$; (g) $\theta_{0c} \approx 35^\circ, t = 25 \text{ s}$; (h) $\theta_{0c} \approx 35^\circ, t = 50 \text{ s}$; (i) $\theta_{0c} \approx 35^\circ, t = 75 \text{ s}$.

图4 不同取向的单晶平界面失稳后的组织形貌演化^[15]

Fig. 4 Microstructure evolution of single crystals with different orientations after planar interface instability

有的特性去研究枝晶的竞争生长机制,对获得良好的性能显得尤为重要。比如,二次枝晶取向的不同并不会对晶粒的竞争生长速率产生明显的影响,而增大凝固工艺参数中的抽拉速率会使溶质边界层厚度减小,弱化了溶质场的交互作用,导致非择优取向枝晶阻挡择优取向枝晶的频率增大,其结果是非正常的竞争生长影响到枝晶间距的大小,这就对镍基高温合金被定向凝固工艺处理时提出更高的要求。

4 定向凝固工艺下枝晶生长的数值模拟

定向凝固是一个复杂的过程,通过模拟不同定向凝固工艺参数下枝晶生长过程,建立模型并分析演变规律,能够有效预测并控制枝晶的形成,进而开发出具有优异性能的合金。目前,进行数值模拟的主要方法有元胞自动机法(CA)和相场法(PF)两种。郭钊等^[26]对多元高温合金凝固时的枝晶生长采用改进元胞自动机方法进行对比发现,增大过冷度能促进枝晶快速生长,但会引发明显的溶质梯度。赵红晨^[27]发现,增大冷速能起到细化晶粒的作用,但对Mg-RE合金系如若要获得细小晶粒,需要克服不同冷速区域内原位难以获得成分过冷的困难。相较而言,相场法还能结合温度场、流场、溶质场等耦合,建立耦合热力学数据库的多相场模型来多角度地描述多种情况下合金凝固过程^[29-31]。楚硕^[32]发现,溶质扩散系数对溶质溶度耦合强度的增加会增加尖端过冷度。不止于此,探究枝晶生长规律的涉及温度因素还有Lewis系数、温度梯度以及形核过冷等,对比实验结果和模拟结果去分析可能存在的未知因素干扰并反复优化工艺设计,做到能预测能控制。

基于数值模拟去考虑不同抽拉速率、温度梯度和择优取向对柱状晶生长形态的影响。比如优异的高温力学性能常通过竞争淘汰来获得特定晶体取向的晶粒来满足,过程中存在不可忽略的参数波动会导致雀斑^[33-34]、小角度晶界^[35]和杂晶^[36]等缺陷的形成,严重地破坏了微观组织。对上述提到的透明合金进行数值模拟后,结果解释仍是择优取向枝晶淘汰非择优取向枝晶,但镍基高温合金汇聚竞争生长模拟结果表明,在一定条件下会出现反常淘汰现象。因此,枝晶的优先生长方向对于枝晶间的竞争过程也具有重要的影响^[37-38]。如今,随着计算机技术的不断发展,更多更快地朝着基于二维、三维相场的方向模拟枝晶的竞争生长。Guo^[39]、Takaki^[40-41]和

Touret^[42]等都在二维相场上研究晶体取向与温度梯度对柱状晶竞争生长的影响。付金良等^[43]基于三维相场模型发现,枝晶交叉生长的前提在于晶粒生长方向与温度梯度方向的夹角大小,其竞争生长行为导致枝晶间断式生长的现象。从二维相场到三维相场的转变能更完整地描绘出枝晶的竞争生长现象,这就对计算机提出了更高的要求。随着人们深入探究定向凝固过程中存在的定律和理论,相场法也朝着扩大模拟范围、提升求解效率和参考外部条件变化的方向发展,进而反向应用于实际凝固过程中^[44]。

5 一次枝晶间距的容许范围

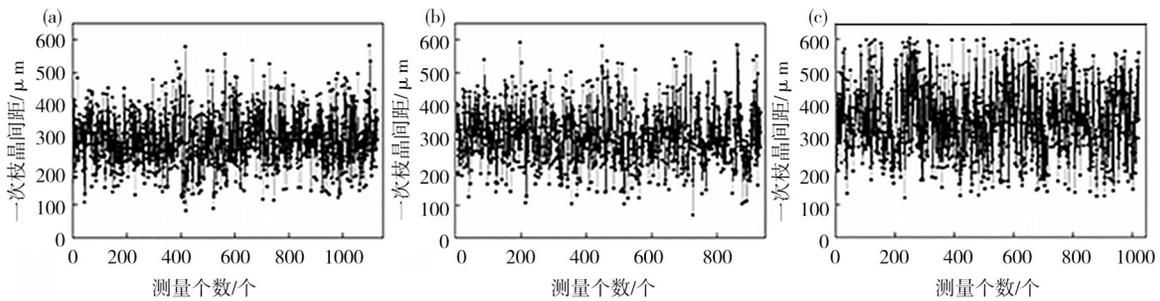
一次枝晶间距的容许范围必然与其凝固历史有关。张显飞等^[45]在元胞自动机模型上模拟定向凝固下丁二腈-2.5%乙醇的一次枝晶间距的选择过程,在假设液相无对流、溶质传输由扩散控制及固/液界面处于平衡态的情况下,模拟不同初始枝晶数目条件下的定向凝固组织演变过程,结果表明稳态生长一次枝晶间距取决于初始形核过程,具备随机性,不存在一一对应关系。但当两个一次枝晶的间距过大时,通常会以分枝机制进行间距调整,新的一次枝晶能否成长取决于固/液界面的稳定性及一次枝晶间液相成分过冷区的形成两方面因素。在给定的凝固条件下,间距较小不足以造成成分过冷区,不会形成新枝晶;间距适中会导致一次枝晶间液相内界面失稳,凸起开始形成并逐渐长大,凸起尖端排出的溶质向外扩散困难造成富集,仍不能继续形成新枝晶;间距过大会大幅减少溶质场的重叠程度,甚至不会发生交集,容易使得溶质能顺畅地向远处扩散运输,凸起顺利地长成一次枝晶。表明,枝晶间距存在一个临界值,新枝晶的形成取决于两个旧枝晶间的距离是否大过临界值,从而减小枝晶间距。所以,受固/液界面稳定性及浓度场的影响因素,一次枝晶间距的上下限也会收到影响具体的一次枝晶间距变化范围需要考究枝晶的形成历史。如果在没有对流的条件下,固/液界面能和溶质扩散系数均能影响一次枝晶间距的上下限。随着溶质扩散系数越小,两个相邻枝晶周围的溶度梯度发生交叠的概率会降低,一次枝晶间距的上下限就会越小;随着固/液界面能的增加,界面失稳的临界过冷度会增加,一次枝晶间距的上下限就会越大。

定向凝固一次枝晶间距范围是否有上下限,以及上限和下限的差值倍数。刘贵群等^[46]研究发现:

镍基单晶高温合金的一次枝晶间距会随着凝固距离的增大而增大,增长速率也会在凝固过程的进展中明显增长;上限和下限的差值倍数受合金特性的影响各有差异,枝晶生长的过程中在一定的容许范围内波动变化并且相差不止一倍,甚至远大于一倍。

针对在不同凝固距离截面统计一次枝晶间距涉及两种方法,分别是直接测量法和正方形估算法,依照不同晶体材料中枝晶形态来对比两种分析方法的精准程度,同时也需要考虑到效率的高低来衡量其可行性。图5为采用直接测量法统计的DD5高温合

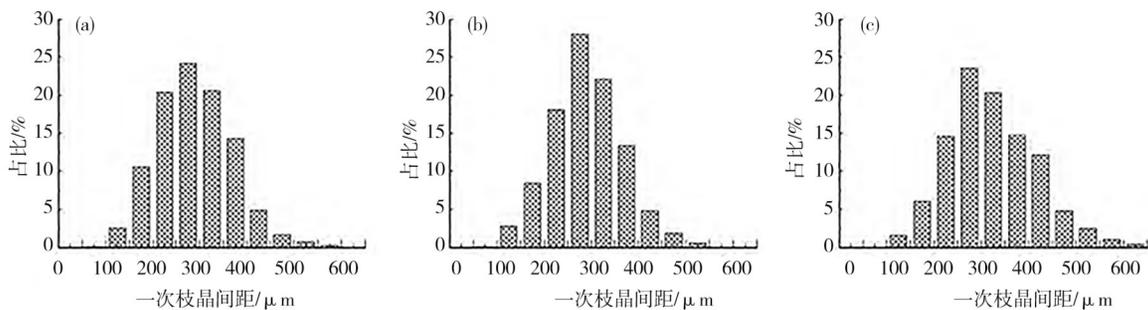
金不同凝固距离截面的一次枝晶间距统计结果。从图5可以发现,一次枝晶间距在100~600 μm 之间波动,这与DD32高温合金的一次枝晶间距变化规律一致。图6为采用直接测量法统计的DD32高温合金不同凝固距离的一次枝晶间距分布概率。从图6可见:一次枝晶间距并不是一个确定的值,由于枝晶生长过程不断地进行消失和再生的演化而确保它在一定范围内动态调整,基本上满足于正态分布的概率;但从另一角度来看,凝固过程中的传热、传质和对流,决定着枝晶的生长形态和特征尺寸。



(a) 50 mm; (b) 150 mm; (c) 250 mm.

图5 采用直接测量法统计的DD5高温合金不同凝固距离截面的一次枝晶间距

Fig. 5 The primary dendrite spacing of DD5 superalloy at different solidification distances by direct measurement



(a) 50 mm; (b) 150 mm; (c) 250 mm.

图6 采用直接测量法统计的DD32高温合金不同凝固距离的一次枝晶间距分布概率

Fig. 6 The distribution probability of primary dendrite spacing of DD32 superalloy at different solidification heights by direct measurement

6 总结与展望

(1)随着抽拉速率的增加,一次枝晶间距减小。随着温度梯度的提升,一次枝晶间距减小。定向凝固的进行会因冷却速率的差异化,导致一次枝晶间距增加。这种复杂的枝晶生长过程让合金呈现优异不等的性能,只有在对合金做好足够地定性分析的基础上,调整凝固参数(抽拉速率、温度梯度)才会对优化合金的枝晶组织起到决定性影响。

(2)合金成分作为合金本身固有的特性,不同种类的元素会起到抑制或促进枝晶生长的作用。如果要人为控制枝晶向着预想的方向生长,需要调整元素含量或者添换新元素,通过定量分析来明确其在合金中的作用,平衡其对枝晶生长的影响,最终制备出性能均衡或突出的合金。

(3)不同晶体取向对定向凝固枝晶择优生长方向影响也不同,一般为(100)晶向与温度梯度的夹角增大导致一次枝晶间距增大。枝晶的竞争生长机制也会因抽拉速率的增大出现反常现象影响枝晶间距

的大小。

(4)在高温合金定向凝固过程中,随着凝固距离的增大,一次枝晶间距在一定容许范围内进行动态调整。这表明研究一次枝晶间距的容许范围对合金的性能高低有间接的评估意义。

(5)设定定向凝固工艺参数、晶体取向、缺陷等条件去反复开展对枝晶生长的数值模拟,通过对比分析实验结果能预测哪些条件可以对提高合金性能产生积极影响,以三维相场为发展前景,更精准更高效地设计工艺和开发合金。

参考文献:

- [1] 郭勇冠,李双明,刘林,等. DZ125高温合金定向凝固微观组织的CA法模拟[J]. 金属学报,2008,44(3):365.
- [2] 闵志先,沈军,冯周荣,等. 定向凝固DZ125合金的溶质分配系数及偏析行为的研究[J]. 金属学报,2010,46(12):1543
- [3] 傅恒志. 航空航天材料定向凝固[M]. 北京:科学出版社,2015:5
- [4] 刘林,孙德建,黄太文,等. 高梯度定向凝固技术及其在高温合金制备中的应用[J]. 金属学报,2018,54(5):615-626.
- [5] 徐莽,刘国怀,张相龙,等. 定向凝固DZ4125柱晶高温合金晶粒生长过程组织演化及其竞争生长行为[J]. 稀有金属材料与工程,2021,50(4):1350-1358.
- [6] 史振学,刘世忠,王效光,等. Cr含量对一种单晶高温合金凝固行为的影响[J]. 兵器材料科学与工程,2016,39(1):1-5.
- [7] HUNT J D. Solidification and casting of metals [M]. London: The Metals Society, 1979:35.
- [8] KURZ W, FISHER D J. Dendrite growth at the limit of stability: Tip radius and spacing[J]. Acta Metallurgica, 1981, 29(11):11-20.
- [9] TRIVEDI R. Interdendritic spacing: Part II . A comparison of theory and experiment [J]. Metall Trans A, 1984, 15(6): 977-982.
- [10] GRUGEL R N, ZHOU Y. Primary dendrite spacing and the effect of off-axis heat flow[J]. Metall Trans A, 1989, 20(5): 969-973.
- [11] GANDIN C A, ESHELMAN M, TRIVEDI R. Orientation dependence of primary dendrite spacing[J]. Metall Trans A, 1996, 27(9):2727-2739.
- [12] ESAKA H. Dendritic growth and spacing in succinonitrile-acetone alloys [D]. Switzerland: Ecole Polytechnique Federale de Lausanne, 1986.
- [13] GANDIN C A, RAPPAZ M. Coupled finite element-cellular automaton model for the prediction of dendritic grain structures in solidification processes [J]. Metall Mater, 1994,42(7): 2233-2246.
- [14] 王理林,王贤斌,王红艳,等. 晶体取向对定向凝固平界面失稳行为的影响[J]. 物理学报,2012,61(14):424-429.
- [15] 王贤斌,林鑫,王理林,等. 晶体取向对定向凝固枝晶生长的影响[J]. 物理学报,2013,62(10):413-418.
- [16] 陈瑞,许庆彦,柳百成. 基于元胞自动机方法的定向凝固枝晶竞争生长数值模拟[J]. 物理学报,2014,63(18):449-460.
- [17] HUNT J D, LU S Z. Numerical modeling of cellular/dendritic array growth: Spacing and structure predictions [J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 1996, 27(3):611-623.
- [18] LU S Z, HUNT J D, GILGIEN KURZ W. Cellular and dendritic array growth in rapidly solidified Al-Fe and Al-Si alloys[J]. Acta Materilia, 1994,42(5):1653-1660.
- [19] 姜华,暴云飞,李青,等. 定向凝固工艺对DZ466高温合金显微组织的影响[J]. 航空材料学报,2018,38(3):52-57.
- [20] 问亚岗,崔春娟,田露露,等. 定向凝固技术的研究进展与应用[J]. 材料导报,2016,30(3):116-120.
- [21] HECKL A, RETTIG R, SINGER R F. Solidification characteristics and segregation behavior of nickel-base superalloys in dependence on different rhenium and ruthenium contents [J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 2010,41A(1):202-211.
- [22] 高斯峰. 镍基单晶高温合金微观组织的研究[J]. 热加工工艺,2015,44(21):79-81.
- [23] 阳大云,金涛,赵乃仁,等. 钽,钨和钨对镍基单晶高温合金铸态组织的影响[J]. 航空材料学报,2003,23(增刊):17-20.
- [24] 刘世忠,史振学,李嘉荣. C含量对第二代单晶高温合金组织的影响[J]. 航空材料学报,2017,37(3):9-15.
- [25] 马德新,王富,温序晖,等. CM247LC单晶高温合金中MC碳化物对 γ/γ' 共晶反应的影响[J]. 金属学报,2017,53(12):1603.
- [26] 郭钊,周建新,沈旭,等. 改进元胞自动机法数值模拟高温合金凝固过程枝晶生长行为[J]. 机械工程材料,2020,44(2):65-72.
- [27] 赵红晨. 铸造Mg-4Y-3Nd-1.2Al合金枝晶组织细化数值模拟[D]. 哈尔滨:哈尔滨理工大学,2021.
- [28] BECKERMANN C, GU J P, BOETTINGER W J. Development of a freckle predictor via rayleigh number method for single-crystal nickel-base superalloy castings [J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 2000, 31(10):2545-2557.
- [29] 张坚,陈静波,赵龙志,等. 二元合金非等凝固枝晶生长相场法模拟[J]. 铸造技术,2016(10):2129.
- [30] 方鹏均,刘芯宇,张雷,等. 边界热通量作用下枝晶生长相场模型的有限元法模拟[J]. 功能材料,2017,48(4):4154.
- [31] 陈伟鹏,赵宇宏,张冰,等. 金属凝固过程枝晶生长相场法模拟研究进展[J]. 材料导报,2018,32(S2):535-539.

- [32] 楚硕,郭春文,王志军,等.浓度相关的扩散系数对定向凝固枝晶生长的影响[J].物理学报,2019,68(16):296-303.
- [33] 马德斯.定向凝固的复杂形状高温合金铸件中的雀斑形成[J].金属学报,2016,52(4):426-436.
- [34] POLLOCK T M, MURPHY W H. The breakdown of single-crystal solidification in high refractory nickel-base alloys [J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 1996, 27(4): 1081-1094.
- [35] AVESON J W, TENNANT P A, FOSS B J, et al. On the origin of sliver defects in single crystal investment castings[J]. Acta Materialia, 2013, 61(14): 5162-5171.
- [36] YANG X L, DONG H B, WANG W, et al. Microscale simulation of stray grain formation in investment cast turbine blades [J]. Materials Science and Engineering: A, 2004, 386(1/2): 129-139.
- [37] 位明光.轻量化汽车用Mg-Gd-Zn系合金微观组织定量调控的相场法研究[D].郑州:郑州轻工业大学,2021.
- [38] 许庆彦,杨聪,柳百成.镍基高温合金定向凝固过程枝晶组织相场模拟研究[J].航空制造技术,2019,62(19):14-20.
- [39] GUO Chunwen, LI Junjie, YU Honglei, et al. Branching-induced grain boundary evolution during directional solidification of columnar dendritic grains [J]. Acta Materialia, 2017, 136: 148-163.
- [40] Tomohiro Takaki, Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta, et al. Two-dimensional phase-field study of competitive again during directional solidification of polycrystalline binary alloy [J]. Journal of Crystal Growth, 2016, 442: 14-24.
- [41] Tomohiro Takaki, Munekazu Ohno, Takashi Shimokawabe, et al. Two-dimensional phase-field simulations of dendrite competitive growth during the directional solidification of a binary alloy bicrystal [J]. Acta Materialia, 2014, 81: 272-283.
- [42] TOURRET D, KARMA A. Growth competition of columnar dendritic grains: A phase-field study [J]. Acta Materialia, 2015, 82: 64-83.
- [43] 付金良,高亚龙,冯力.三维相场法模拟定向凝固过程枝晶交叉生长研究[J].铸造技术,2018,39(9):1888-1892.
- [44] 陈伟鹏,赵宇宏,张冰,等.金属凝固过程枝晶生长相场法模拟研究进展[J].材料导报,2018,32(S2):535-539.
- [45] 张显飞,赵九洲.合金定向凝固一次枝晶间距模拟[J].中国有色金属学报,2012,22(10):2868-2874.
- [46] 刘贵群,冯丽,王贺明,等.镍基单晶高温合金一次枝晶间距的统计研究[J].特种铸造及有色合金,2021,41(2):153-157.

Study on Dendritic Growth in Single Crystal Alloys During Directional Solidification

YUE Shuaishuai, YE Zitian, GUO Yangfan, TANG Yunyu, ZHANG Xiaoli*
(North Minzu University, School of Material Science and Engineering, Yinchuan 750021, China)

Abstract: With the continuous development of directional solidification technology and the continuous updating and optimization of solidification process, the control of dendritic growth has become more and more precise. In order to control the dendritic growth to the desired direction and obtain the ideal structure, it is the key to control the solidification process. The high-quality alloys produced by directional solidification technology can improve their comprehensive mechanical properties, but dendrite growth is affected by many factors. Therefore, the research on dendrite growth is summarized. The effects of directional solidification process parameters, alloy compositions and crystal orientations on dendritic growth, especially on the primary dendrite spacing, are reviewed. By establishing a model to simulate the dendrite growth process, on the one hand, the validity of the theoretical model is verified, and on the other hand, the interference factors can be predicted and controlled. In addition, the allowable range of the primary dendrite spacing is also analyzed, and its upper and lower limits are discussed. Through the study of dendritic growth, the theoretical basis for the research and development of single crystal alloys is provided.

Key words: directional solidification; single crystal alloy; dendritic growth; primary dendrite spacing

(学术编辑:黎小辉)