

重熔温度对 Inconel 718 定向凝固过程中糊状区偏析和 Rayleigh 数的影响

王 玲¹, 许斌斌¹, 刘 林², 董建新³

(1. 南京信息工程大学, 江苏 南京 210044)

(2. 西北工业大学 凝固技术国家重点实验室, 陕西 西安 710072)

(3. 北京科技大学, 北京 100083)

摘 要: 用扫描电镜 (SEM) 以及能谱分析方法 (EDAX) 研究了经不同重熔温度加热并以一定速率定向凝固的高温合金 Inconel718 糊状区液相的显微组织和成分。给出了液相中 Nb、Mo 沿着糊状区的分布。同时计算了糊状区液相密度差和相对 Rayleigh 数 (Rar)。当重熔温度从 1600 °C 升高到 1700 °C, Mo 偏析加重, 糊状区变长, 液相密度差在凝固初期变大, 糊状区 Rar 的极大值显著升高, 这说明重熔温度提高后热溶质对流趋势增大, 糊状区变得不稳定。

关键词: 高温合金; 定向凝固; 重熔温度; 偏析; 相对 Rayleigh 数

中图分类号: TG132.3+2

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2017)02-0565-06

以 Ni-Cr-Fe 为基的合金 Inconel718 由于其可在 650 °C 高温长期保持稳定的机械性能而在航空航天领域具有广泛的应用, 是目前使用量最大的沉淀强化镍基高温合金, 主要用于航空航天发动机涡轮盘及导向叶片和地面燃气轮机的制造。Inconel718 合金元素含量很高, 尤其是 Mo 和 Nb。一方面, 这些合金元素赋予 Inconel718 出色的高温机械性能, 如高温强度、持久寿命等; 另一方面, 高的 Nb 和 Mo 含量 (约 5% Nb, 3% Mo, 质量分数) 使合金凝固时很容易偏析, 甚至在铸锭中形成宏观偏析黑斑, 使其报废^[1-15]。

很多学者研究了合金宏观偏析的形成机制及其影响因素^[1-7], 发现宏观偏析主要是由于合金热溶质对流引起的, 而热溶质对流形成又受到很多因素的影响, 如合金的成分、热梯度、凝固速率等。这些条件除了本身对热溶质对流产生影响, 还会彼此相互作用。本实验在以前研究重熔温度为 1600 °C 定向凝固实验结果的基础上^[1,2,15], 研究重熔温度升高后 (1700 °C) 定向凝固高温合金 Inconel 718 糊状区液相的成分和 Rayleigh 数的分布情况, 旨在揭示重熔温度对 Inconel718 凝固偏析和热溶质对流趋势的影响。

1 实 验

实验用 Inconel 718 原材料切自高温合金铸锭, 经真空感应重熔(VIR)加真空电弧重熔 (VAR) 熔炼。

合金各成分如表 1 所示。

定向凝固样品经线切割为直径 7 mm, 长 90~100 mm 的小棒。定向凝固时, 将样品放入氧化铝坩埚, 在定向凝固真空感应炉中加热使其重熔, 保温 20 min, 然后在一定抽拉速率下将样品由下而上逐渐淬入 Ga-In-Sn 液体金属冷却介质。抽拉系统采用微机控制, 本实验中使用的抽拉速率为 5~100 $\mu\text{m/s}$ 。在此抽拉速率范围内, 可近似认为凝固速率等于抽拉速率, 液固界面温度梯度约为 100 °C/cm。重熔加热温度设定为 1700 °C。糊状区内液体的温度可以根据距温度梯度和糊状区内距液固界面的距离计算出, 计算公式为:

$$T = T_{\text{liq}} - h G \quad (1)$$

其中 T_{liq} 为 Inconel 718 的熔点, G 为液固界面处的温度梯度, h 为糊状区内距液固界面的距离。

定向凝固后的样品经腐蚀抛光后, 利用 SEM 等方式观察糊状区组织变化; 用 EDS 分析不同位置枝晶间液相的成分, 每个温度下的液相成分测量次数不少于 5 次; 用图像分析软件分析凝固过程中液相量和枝晶

表 1 Inconel 718 的成分

Table 1 Chemical composition of Inconel 718 ($\omega/\%$)

Nb	Ti	Al	Mo	Fe	Cr	C	Ni
5.36	0.97	0.56	2.98	19.93	17.72	0.021	Bal.

收稿日期: 2016-02-01

作者简介: 王 玲, 女, 1970 年生, 博士, 副教授, 南京信息工程大学物理与光电工程学院, 江苏 南京 210044, 电话: 025-58731031, E-mail: sjzhwl@126.com

臂间距的变化；根据文献[1]提供的方法计算合金糊状区液相的密度和 Rayleigh 数。

2 结果与讨论

2.1 糊状区的纵剖面组织

图 1 给出了重熔温度为 1700 °C 时不同凝固速率下 Inconel 718 合金糊状区的纵剖面组织。图 1a 是糊状区在 10 μm/s 冷速时的糊状区组织，仍具有一定的胞状组织特征。在重熔温度为 1600 °C 时，Inconel 718 发生枝胞转变的凝固速率为 5~10 μm/s^[1,3]。当重熔温度升高后，枝胞转变凝固速率几乎没有变化，仍为 5~10 μm/s。在图 1b~1d 中，凝固速率大于 10 μm/s 时，随着凝固速率升高枝晶明显变细。

图 2 中给出了不同凝固速率下糊状区的长度 (LMZ) 和一次枝晶臂间距测量结果，并与重熔温度为 1600 °C 时的做了相应比较。2 种重熔条件下糊状区长度都是在凝固速率为 20 μm/s 时最长；一次枝晶臂随着凝固速率的增加越来越小。在相同的凝固速率下，重熔温度为 1700 °C 时糊状区长度比 1600 °C 时的要长。由此在重熔温度为 1700 °C、凝固速率为 20 μm/s 条件下，糊状区达到最长。

当凝固速率从一个非常低的值增加至 70 μm/s，Inconel718 的液固界面形态由平界面、胞状界面，逐

渐过渡为枝晶状界面，在凝固速率大于 10 μm/s 时形成典型的枝晶^[1,3]。当冷速极低或者极高时，由于扩散原因，糊状区都会变短。当棒状的样品从更高的重熔温度下冷却时，更多的热余必须从液固界面连续地传导到固相部分，导致糊状区变长。如果其他的凝固条件相同，重熔温度越高，糊状区长度越长。在凝固速率和重熔温度的共同影响下，在重熔温度为 1700 °C，凝固速率为 20 μm/s 时形成的糊状区最长。

在本研究中所有的凝固速率下，液固界面在 10 μm/s 由胞状界面转变为枝晶状界面。由于凝固速率较快，液固转变为非平衡转变，随着凝固速率增加，合金元素扩散的距离变短，一次枝晶臂变小，枝晶变细。另外，高的重熔温度致使更多的固体颗粒（如碳化物）在加热保温时熔化，存留在液相中的作为非均匀形核核心的颗粒变少，因此在相同凝固速率下一次枝晶臂间距明显变大。

2.2 糊状区的横截面组织

本实验研究了 Inconel718 凝固速率 10~70 μm/s 糊状区情况，在这个范围冷却更易宏观偏析^[8]。用 SEM 和 EDAS 分析了速率为 20 μm/s 时位于糊状区枝晶尖和枝晶底部之间的横截面组织，其结果显示在图 3。

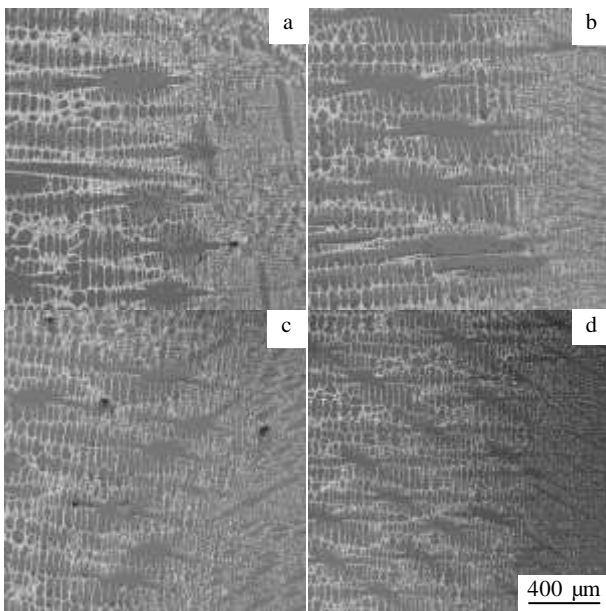


图 1 重熔温度为 1700 °C 时的糊状区纵剖面组织

Fig.1 Longitudinal section microstructures of the mushy zones with remelting temperature 1700 °C: (a) 10 μm/s, (b) 20 μm/s, (c) 40 μm/s, and (d) 70 μm/s

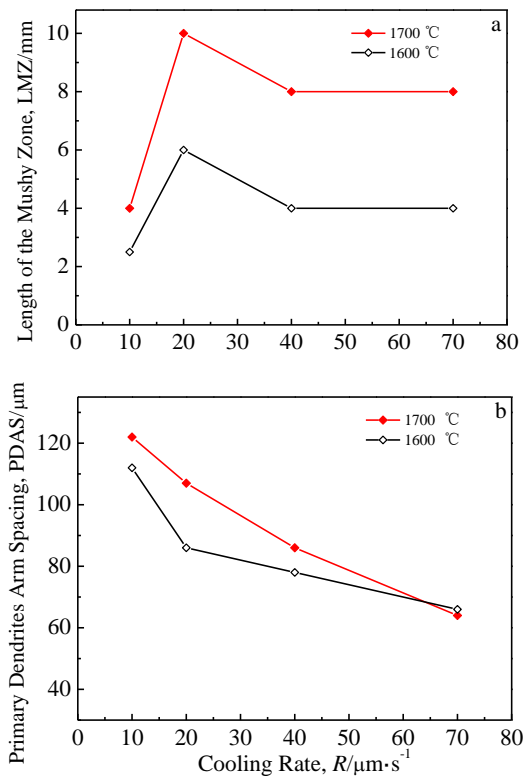


图 2 不同重熔温度和凝固速率下的糊状区形态

Fig.2 Morphology of the mushy zone under different remelting conditions and solidification rates: (a) the length of the mushy zone (LMZ) and (b) the primary dendrites arm spacing (PDAS)

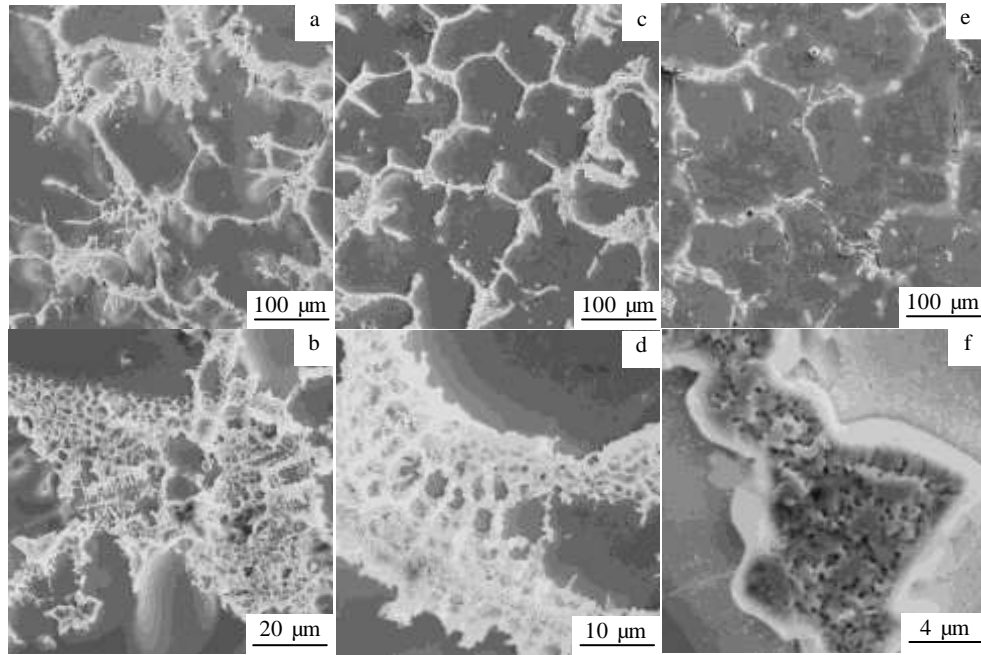


图 3 糊状区的横截面组织

Fig.3 Cross section structures in the mushy zones: (a, b) $R=20 \mu\text{m/s}$, $T=1326 \text{ }^\circ\text{C}$; (c, d) $R=20 \mu\text{m/s}$, $T=1306 \text{ }^\circ\text{C}$; (e, f) $R=20 \mu\text{m/s}$, $T=1176 \text{ }^\circ\text{C}$

其中图 3a, 3c 和 3e 是糊状区液相的低倍组织, 图 3b、3d 和 3f 分别为相应的高倍组织。在凝固的初始阶段 Inconel718 液相向固相的转变非常快, 如图 3a 所示, 液固界面下方 1 mm 处 ($1326 \text{ }^\circ\text{C}$) 的液相只剩下不到 50%。但在凝固后期, 这个转变却变得非常慢, 如图 3e 和 3f, 在 $1176 \text{ }^\circ\text{C}$ 的横截面组织中仍有 5% 的残余液相组织存在。在图 3b、3d 和 3f 由残余液相转变的共晶高倍组织中, 与重熔温度为 $1600 \text{ }^\circ\text{C}$ 时相比^[1], 共晶组成相明显变细, 如图 3b 和 3d 组织中有许多非常细的针状共晶 δ 相。重熔温度升高后, 显微组织另一个明显的区别是组织中出现了更多的缩孔, 如图 3e 和 3f 所示。

当重熔温度升高, 液态金属中的合金扩散更加充分。当重熔温度为 $1700 \text{ }^\circ\text{C}$ 时, 在液体组织中观察到了很多小的对流单元, 象水被烧开一样。而重熔温度为 $1600 \text{ }^\circ\text{C}$ 的液相组织没有观察到这样的对流小单元。高温和强对流促进了液相成分的均匀化, 淬火时有利于形成细的共晶组织。另外由于更多的可能作为非均匀形核核心的颗粒, 如一些杂质粒子, 在高的重熔温度下被熔化掉, 因此在相同的凝固速率下形成的枝晶数目相对减少, 一次枝晶臂变大。

2.3 糊状区液相中 Nb 和 Mo 的偏析

图 4 给出了凝固速率为 10, 20, 40 和 $70 \mu\text{m/s}$ 时糊状区残余液相中 Nb、Mo 含量。图中用点划线为相

应的液相分数。为了方便对比, 4 个图中坐标轴 (温度、合金元素的质量分数和液相分数) 采用了相同的变化范围。当凝固速率为 $20 \mu\text{m/s}$ 时, 由熔点以上冷却至 $1300 \text{ }^\circ\text{C}$, 液相中 Nb 和 Mo 的含量迅速上升至一个很高的值, 这和液相分数由 100% 迅速降低至 10% 相对应。 $10 \mu\text{m/s}$ 时 Nb 和 Mo 含量变化曲线与 $20 \mu\text{m/s}$ 时的相似, 在冷却至 $1300 \text{ }^\circ\text{C}$ 前显著上升而在凝固后期又有轻微的下降。而凝固速率为 40 和 $70 \mu\text{m/s}$ 时, 液相中 Nb 和 Mo 的含量变化曲线变化平缓, 偏析较轻。

和重熔温度为 $1600 \text{ }^\circ\text{C}$ 时相比^[1], Inconel 718 的偏析仍然主要是 Nb 和 Mo 在枝晶间的富集及其在晶干中心的贫化。Nb 在相同速率下, 相应的偏析变轻, 尤其是高冷速 40 和 $70 \mu\text{m/s}$ 时。在 2 种重熔温度下, 低冷速凝固时的液相中 Nb 和 Mo 的偏析曲线相似, 残余液相中 Nb 和 Mo 含量在凝固初期显著上升, 凝固后期又有轻微下降, 在 $1250\sim 1300 \text{ }^\circ\text{C}$ 有一个弱的峰值。表 2 中给出了各个冷速下糊状区残余液相中 Nb 和 Mo 含量的极大值。与重熔温度为 $1600 \text{ }^\circ\text{C}$ 时相似, Nb 含量的极大值随凝固速率的增加而降低, 而 Mo 含量的极大值在 $20 \mu\text{m/s}$ 冷速下最大。另外, 凝固速率相同时, 重熔温度为 $1700 \text{ }^\circ\text{C}$ 时残余液相中的 Mo 含量极大值明显高于重熔温度为 $1600 \text{ }^\circ\text{C}$ 时的极大值, 而相应冷速下 Nb 的极大值有所降低。

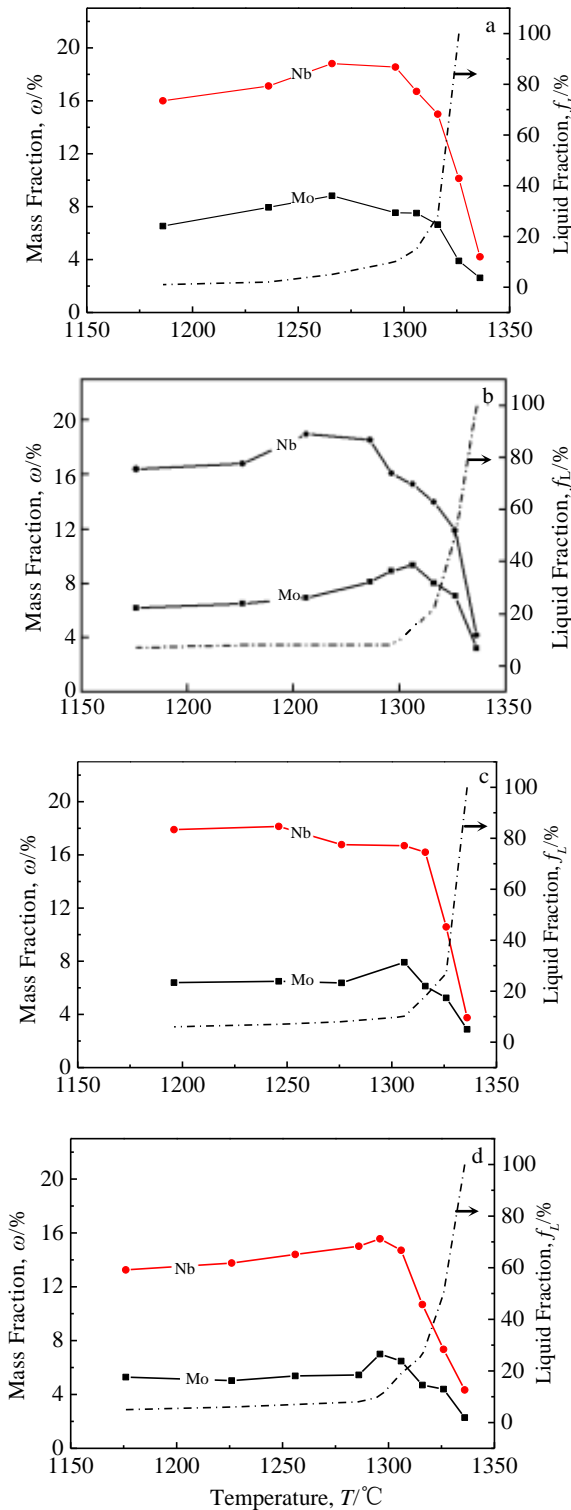


图 4 1700 °C 重熔不同凝固速率下糊状区液相中 Nb、Mo 的含量和液相分数

Fig.4 Content of Nb and Mo in the residual liquid and liquid fraction along the mushy zone at different solidification rates as the remelting temperature was 1700 °C: (a) 10 μm/s, (b) 20 μm/s, (c) 40 μm/s, and (d) 70 μm/s

表 2 不同重熔温度下糊状区液相中 Nb 和 Mo 含量极大值

Table 2 Maximum content of Nb and Mo in liquid in the mushy zone at different remelting temperatures (ω/%)

		Solidification rate/μm s ⁻¹			
		10	20	40	70
1600 °C	Nb	22.6	19.7	18.3	14.8
	Mo	6.23	8.87	7.14	5.03
1700 °C	Nb	19.98	18.57	18.14	16.06
	Mo	8.82	8.92	7.92	7.37

重熔温度和冷却速度通过影响凝固时固相和液相中合金元素的扩散程度最后决定终凝液相偏析情况。在非常低的冷速下，液、固相中的扩散都十分充分，凝固接近平衡转变，直至凝固后期没有偏析。当凝固速率上升，固相中的扩散被抑制，而液相中仍然能充分扩散，根据凝固原理，这种情况下凝固后期液相偏析最严重。但是当凝固速率进一步提高，液相和固相中的扩散同时被抑制，溶质的重新分配仅限于液固界面附近很小的范围，那么，这种情况下凝固后期偏析反而减轻。重熔温度对偏析的影响机理也是通过其影响液、固相中的扩散而最终影响偏析的。重熔温度提高后，液体流动的趋势显著增大，但对于大原子 Mo 元素来说，在低冷速时固相中很难扩散，根据前面的分析，这种情况残余液相中的 Mo 含量会升到很高的值。但是如果凝固速率进一步升高，固相和液相中的 Mo 扩散都受到抑制，而这时 Mo 偏析反而减轻。和 Mo 相比较，Nb 扩散过程更容易些，在高重熔温度凝固时，固相中可存在部分扩散，所以凝固后期 Nb 的偏析没有加重。综合上面几个方面，重熔温度上升到 1700 °C 后，在低冷速下，Mo 偏析加重比较显著，而 Nb 偏析稍微减轻。

2.4 糊状区的液相密度差和相对 Rayleigh 数变化

商用 Inconel718 宏观偏析产生的凝固速率通常为 20 μm/s 左右^[12]，图 5 给出了两种重熔温度下凝固速率为 20 μm/s 时沿着糊状区液相密度差 Δρ 的计算结果。根据文献中提供的方法^[7-12]，通过给定横截面上残余液相的成分和温度计算出该温度下残余液相的密度从而计算出糊状区不同位置的液相密度差。如图 5 所示，在 2 种重熔温度下，随着深入糊状区温度的降低，液相密度差都迅速升高到一个较大的值。重熔温度升高后，整个糊状区内的液相密度差稍低，但在凝固初期其液相密度反而更高。

液相密度的变化是由于糊状区内液相成分的变化引起的。凝固过程中，合金元素 Nb、Mo 等迅速向液相中偏析，由于合金元素 Nb 和 Mo 的密度高于

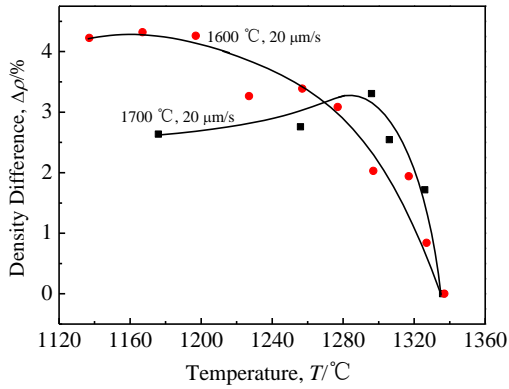


图 5 凝固速率为 20 μm/s 不同重熔温度时糊状区密度差

Fig.5 Liquid density difference along the mushy zone solidified at 20 μm/s with different remelting temperatures

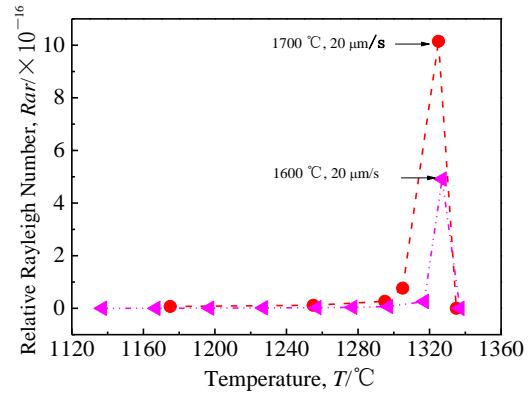


图 6 不同重熔温度下相对 Rayleigh 数 (Rar)

Fig.6 Relative Rayleigh number along the mushy zones grown with different remelting temperatures

Inconel718 的平均密度, 尤其是 Mo, 导致液相密度及液相密度差在凝固初期迅速升高。根据 2.3 部分的结果和参考文献, 残余液相中 Mo 的最高含量发生在 1700 °C 重熔、20 μm/s 凝固时糊状区 1300 °C 的位置, 因此此处的液相密度差最大。而在凝固后期, 含 Nb、Mo 的碳化物等相析出, 合金元素含量下降, 液相密度差开始下降。

2.5 不同凝固速率下相对 Rayleigh 数的变化

根据已知的黑斑形成机制, 宏观偏析黑斑是由热溶质对流趋势可以由简化的相对 Rayleigh 数 (Rar) 公式 (2) 计算得来的值来表征^[13, 15], Rar 值越高, 对流和黑斑形成的趋势越大。

$$Rar = \frac{\Delta\rho \cdot \Pi}{f_L} \cdot \frac{1}{R} \quad (2)$$

式中, Δρ 是液相密度差, Π 是渗透性, f_L 为液相分数, R 为凝固速率。公式(2)中的渗透性由文献[7, 9, 10]提供的公式 (3) 来计算, 式中 λ₁ 和 λ₂ 分别为一次、二次枝晶臂间距。

$$\Pi = 9.66 \times 10^{-18} \cdot f_L^{3.34} \cdot \lambda_1^{0.699} \lambda_2^{2.73} \quad (3)$$

渗透性正比于液体分数的 3.34 次方, 并随着枝晶臂间距增大而增大。所以随着深入糊状区, 渗透性急剧降低。重熔温度升为 1700 °C 后, 相应位置上液相分数和枝晶臂变大, 渗透性增大。

图 6 给出了 2 种重熔温度下, 凝固速率为 20 μm/s 时糊状区相对 Rar 值计算结果。从图 6 给出的相对 Rayleigh 数的计算结果可以看出, 2 种重熔温度下在 1317~1327 的 Rar 曲线都存在尖锐的峰值。这是因为糊状区内随着温度降低, 液体密度差增加但渗透性降低, 结果, 正比于两者乘积的 Rar 的极大值出现在液相线下 10~20 °C 的位置。这表明在液相线下方

10~20 °C 非常接近枝晶尖的位置对流形成的趋势最大, 此时液体分数大约 60%, 这和文献中报道的情况黑斑易在液相分数为 40%~60%^[15]时形成是一致的。

图中重熔温度为 1700 °C 的 Rar 极大值约为 1600 °C 时的 2 倍。当重熔温度为 1700 °C, 液相密度差在凝固初期非常高, 同时整个凝固过程渗透性比重熔温度为 1600 °C 时要好, 这样, 前者的 Rar 极大值远远大于后者的。这表明重熔温度升高, Rar 的极大值显著升高, 热溶质对流和黑斑形成趋势极大的增加。这可以解释为什么重熔温度升高会显著增加铸造中黑斑形成的风险^[7, 13, 15]。

3 结 论

- 1) 当重熔温度从 1600 °C 升高到 1700 °C, Nb 偏析变轻, Mo 偏析加重。糊状区变长。
- 2) 重熔温度升高, 液相密度差在凝固初期有所升高, 后期变化不大。
- 3) 相对 Rayleigh 数 Rar 的极大值出现在液相线下 10~20 °C 的位置, 重熔温度升高后其值增大到原来的 2 倍, 液体流动的趋势显著增大, 糊状区变得不稳定。

参考文献 References

[1] Wang Ling, Liu Lin, Dong Jianxin et al. *Materials Science and Technology*[J], 2012, 28(11): 1349

[2] Wang Ling, Liu Lin, Wu Hongyan et al. *Chemical Engineering Communications*[J], 2010, 197(12): 1586

[3] Zhao Xinbao(赵新宝), Gu Yuefeng(谷月峰), Lu Jintao(鲁金涛) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2015, 44(3): 768

- [4] Beckermann C, Gu J P, Boettinger W J. *Metall Mater Trans A*[J], 2000, 31A(1): 2545
- [5] Wang Ling(王玲), Zhong Boying(仲博颖), Dong Jianxin(董建新) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2007, 36(12): 2104
- [6] Cao Guoxin(曹国鑫), Zhang Maicang(张麦仓), Dong Jianxin(董建新) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2014, 43(1): 103
- [7] Yang W, deBarbadillo J J, Morita Koki *et al. JOM-US*[J], 2004, 56(1): 56
- [8] Auburtin P, Wang T, Cockcroft S L *et al. Metall Mater Trans B*[J], 2000, 31B(1): 801
- [9] Yang W, Chen W, Chang K-M *et al. Metall Mater Trans A*[J], 2001, 32A(1): 397
- [10] Sung P K, Poirier D R, McBride E. *Materials Science and Engineering A*[J], 1997, 231 A(1): 189
- [11] Long Z D, Liu X B, Yang W *et al. Metallurgical Materials Transaction A*[J], 2004, 386A(1): 254
- [12] Tin S, Pollock T M. *Journal of Materials Science*[J], 2004, 39(1): 7199
- [13] Kleber S Cruz, Ivaldo L Ferreira *et al. Materials Chemistry and Physics*[J], 2009, 115(2): 116
- [14] Wang Ling(王玲), Gong He(巩贺). *China Foundry*(中国铸造)[J], 2012, 9(3): 263
- [15] Wang Ling, Yao Yijun, Dong Jianxin *et al. Chemical Engineering Communication*[J], 2010, 197(12): 1571

Effects of Remelting Temperature on the Segregation and Rayleigh Number in the Mushy Zone of Directionally Solidified Superalloy Inconel 718

Wang Ling¹, Xu Binbin¹, Liu Lin², Dong Jianxin³

(1. Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China)

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

(3. University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

Abstract: Superalloy Inconel 718 was directionally solidified at various solidification rates after heating at different remelting temperatures. The microstructure and composition of the liquid along the mushy zone of the superalloy have been investigated by scanning electron microscope (SEM) and energy dispersion analysis spectrometry (EDAX). The content of Nb and Mo in the interdendritic liquid along the mushy zone was given. The liquid-density difference and relative Rayleigh number in the interdendritic liquid were calculated. Results show that when the remelting temperature increases from 1600 °C to 1700 °C, the segregation of Mo becomes more serious, the liquid-density difference becomes higher at the beginning of solidification and the maximum relative Rayleigh number (*Rar*) increases greatly, which indicates the tendency of thermal solute fluid flow becomes larger and mushy zone is more unstable.

Key words: superalloy; directional solidification; remelting temperature; segregation; relative Rayleigh number

Corresponding author: Wang Ling, Ph. D., Associate Professor, School of Physics and Optoelectronic Engineering, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, P. R. China, Tel: 0086-25-58731031, E-mail: sjzhwl@126.com