

高通量计算辅助镍基高温合金中 Re、Ru 元素的交互作用探究

吴佳奇, 连利仙, 李雯静, 刘颖

(四川大学 材料科学与工程学院, 四川 成都 610065)

摘要: 为探究 Re、Ru 元素之间复杂的交互作用机制, 借助高通量计算建立了包含成分、微观组织参数、动力学参数、物性参数及宏观性能的数据集, 有效降低了实验成本和时间。结果表明, Re、Ru 的加入分别通过降低有效扩散系数和合金堆垛层错能以提高合金的蠕变寿命。Ru 元素降低合金堆垛层错能、降低 γ' 相反相畴界能以及 Ru 的固溶强化作用共同影响合金的屈服强度, 使屈服强度未发生显著变化。同时, 在研究的 4 种合金体系中, Re 元素显著促进 tcp 相析出, 而 Ru 元素的加入并未对 tcp 相的析出起抑制或促进作用, 并通过元素分配行为及镍基高温合金相稳定结构图分析 Ru 对 tcp 相的析出起抑制还是促进作用。

关键词: 镍基高温合金; Ru 元素; Re 元素; 交互作用; 高通量计算

中图法分类号: TG132.3¹3; TG146.1¹5

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2025)09-2273-08

1 引言

镍基高温合金由于其优异的高温力学性能、抗蠕变性能、耐热性能及抗腐蚀性能等广泛应用于航空航天领域和国防领域, 是工业燃气轮机及航空发动机的首选材料^[1-2]。采用更高的涡轮入口温度可以提高发动机的工作效率, 因此迫切需要设计出承温能力更优异的合金成分。Re 元素的加入发挥了关键的高温强化作用, 且其含量随着代次的提高不断增加。然而 Re 的高度稀散和高昂价格急剧增加了合金的应用风险和制造成本, 不利于合金的应用发展^[3]。同时过高的 Re 含量会促进 tcp 相的析出, tcp 相作为脆性相通常是合金中的裂纹源, 其析出不利于合金的力学性能^[4-5]。对此, 通过加入 Ru 元素不仅可以增加 γ 基体相与 tcp 相的错配度^[6-7], 还可以通过“反向分配”机制^[8-9]或增大 Re 在 γ 基体相中的溶解度^[10]来降低 Re 在 γ 基体相中的过饱和度以抑制 tcp 相的析出^[11]。但 Ru 元素在镍基高温合金的作用机制仍存在一定的争议, 最近一些研究发现 Ru 的加入会促进 tcp 相的析出^[12-14]。因此, 在镍基高温合金中 Ru 元素的加入是抑制还是促进 tcp 相的析出, 目前并没有明确的机理解释。近年来, 研究者们进行了大量 Re、Ru 元素对镍基高温合金微观组织、元素分配行为及力学性能的影响的相关研究^[15-19], 但大多研究都集中在单一元素, 而镍基高温合金中包含 10 种以上的合金元素, 不同元素之间存在复杂的

交互作用。传统试错法会消耗大量的实验成本及时间。

本研究通过在 4 种合金体系中改变 Re、Ru 元素含量得到 6724 组合金成分, 结合热力学软件进行高通量计算, 构建起包含成分、微观参数、动力学参数及宏观性能的数据集以探究 Re、Ru 元素的交互作用。分析微观参数及热力学参数的变化以阐释宏观性能变化机制。旨在为镍基高温合金的成分设计及替代元素寻找提供参考。

2 实验

选择了 4 种合金成分进行 Re、Ru 元素的交互作用探究, 分别为 DZ417G、DZ404 和 DZ406 3 种定向凝固镍基高温合金及之前研究中通过多目标优化得到的低成本合金 A5, 具体名义成分如表 1 所示。在 4 种合金的基础上调整 Re、Ru 元素的含量, 范围设置为 0wt%~4wt% (质量分数), 步长设置为 0.1wt% (质量分数), 共 6724 组合金成分。基于热力学软件 JMatPro 热力学性质计算模块及机械性能计算模块, 利用 API 接口快速采集微观组织参数 (相含量、相成分、相转变温度)、动力学参数 (γ' 相的反相畴界能、堆垛层错能)、物性参数 (剪切模量) 及力学性能 (900 °C/200 MPa 蠕变寿命、900 °C 屈服强度、室温屈服强度) 等数据。结合采集数据及理论公式计算有效扩散系数、错配度、平均原子体积差、平均价电子数等数据。构建起包含成分、微观参数、动力学参数、物性参数及宏观力学性能的数据集。数据收集流程如图 1 所示。

收稿日期: 2024-09-15

基金项目: 国家自然科学基金(61976046); 四川省重大科技项目(2019ZDZX0022)

作者简介: 吴佳奇, 男, 1998 年生, 硕士, 四川大学材料科学与工程学院, 四川 成都 610065, E-mail: 1733652770@qq.com

表1 4种合金的名义成分
Table 1 Nominal composition of four kinds of alloys (wt%)

| Alloy | Nb | Cr | Co | W | Mo | Ta | Hf | Zr | Al | Ti | B | C | V | Re, Ru | Ni |
|--------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|------|-----|-----|-------|------|------|----------|------|
| DZ417G | 0 | 9 | 10 | 0 | 3 | 0 | 0 | 0 | 5.3 | 4.4 | 0.018 | 0.18 | 0.75 | 0~4(0.1) | Bal. |
| DZ404 | 0 | 9.5 | 5.8 | 5.5 | 3.8 | 0 | 0 | 0.02 | 6 | 1.9 | 0.018 | 0.13 | 0 | 0~4(0.1) | Bal. |
| DZ406 | 0 | 6.8 | 12 | 5 | 1.5 | 6.3 | 1.5 | 0.25 | 6 | 0 | 0.015 | 0.12 | 0 | 0~4(0.1) | Bal. |
| A5 | 0.7 | 6 | 5.4 | 2.2 | 5 | 4.4 | 0 | 0 | 6.7 | 2 | 0.013 | 0.3 | 0 | 0~4(0.1) | Bal. |

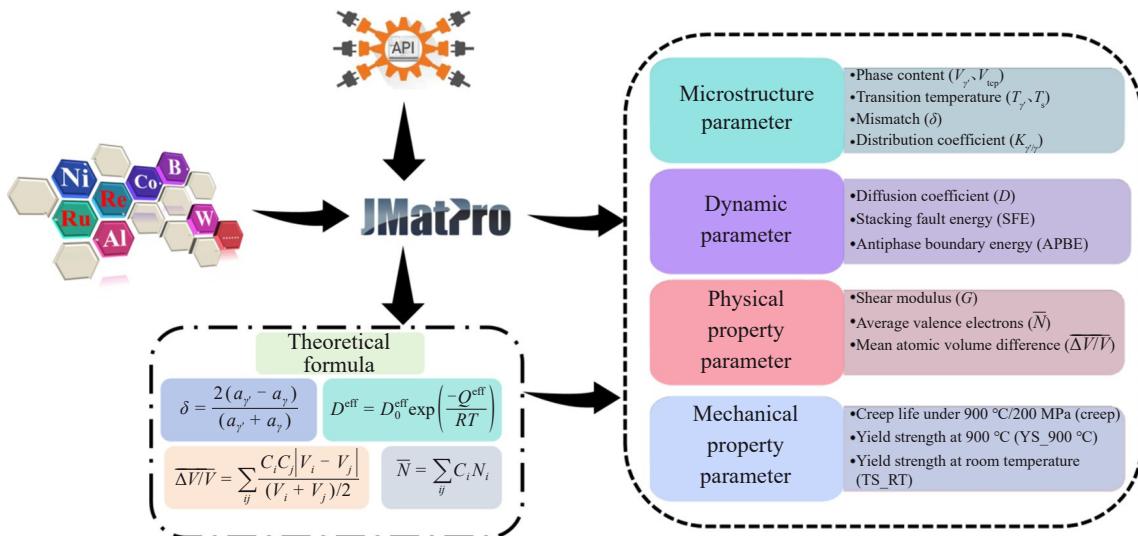


图1 数据采集流程图

Fig.1 Flow chart of data collection

3 结果与讨论

结合收集到的6724组数据,分析Re、Ru元素含量的变化对宏观力学性能、微观组织参数、动力学参数及物性参数的影响。由于影响宏观力学性能的因素较多,且具有复杂的交互作用。本研究试图探究微观参数及动力学参数变化与宏观力学性能变化之间的联系,找到影响蠕变寿命及屈服强度的主要因素。另一方面,通过元素分配系数、平均价电子数、平均原子体积差等探究Ru元素对tcp相起促进还是抑制作用。由于4种合金的变化趋势均一致,以DZ417G为例进行分析。

3.1 宏观力学性能

图2~图3分别为Re、Ru元素含量变化对镍基高温合金宏观力学性能的影响。图2为900 °C/200 MPa下蠕变寿命受Re、Ru元素含量变化的影响,显示Re、Ru元素含量的增加均可以提高蠕变寿命,但Ru元素的作用更加显著。图3显示Re元素含量的增加对900 °C高温屈服强度并没有显著的影响,而Ru元素含量的增加使室温屈服强度降低,但不敏感。现有的大量实验已证明了Re、Ru元素的加入有利于镍基高温合金的蠕变寿命^[20~22]。

3.2 微观组织参数

镍基高温合金中主要的析出相为γ'相(Ni₃Al、Ni₃Ti、

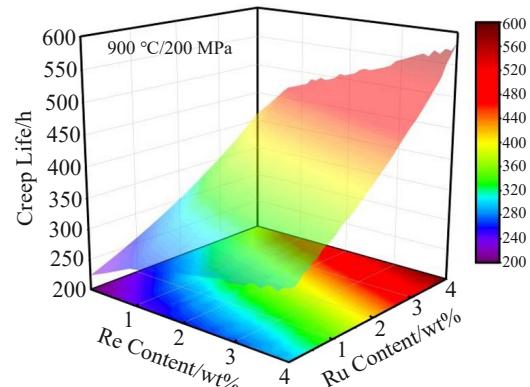


图2 Re、Ru含量对蠕变寿命的影响

Fig.2 Effects of Re and Ru contents on creep life

Ni₃Nb),具有Cu₃Au型Li₂面心立方有序结构,为沉淀强化型镍基高温合金中的主要强化相,其形貌、尺寸、含量及成分均对合金性能有显著影响。有研究表明蠕变寿命随γ'相含量的增加有先提高后下降的趋势,且当γ'相含量为60%~70%时,合金具有最高的蠕变寿命^[23]。图4a为γ'相体积分数随Re、Ru元素含量的变化情况,可以看到Re、Ru元素含量的变化并未引起γ'相体积分数的改变,这主要是因为γ'相体积分数主要受沉淀强化元素(Al、

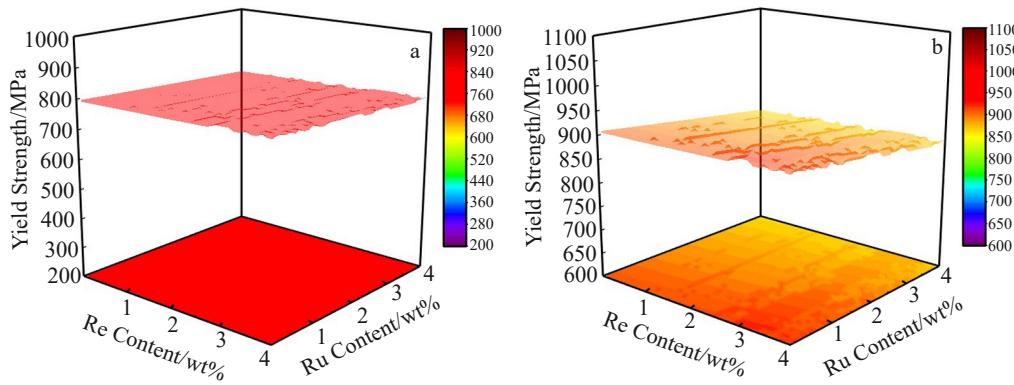


图3 Re、Ru含量对屈服强度的影响

Fig.3 Effects of Re and Ru contents on yield strength at 900 °C (a) and room temperature (b)

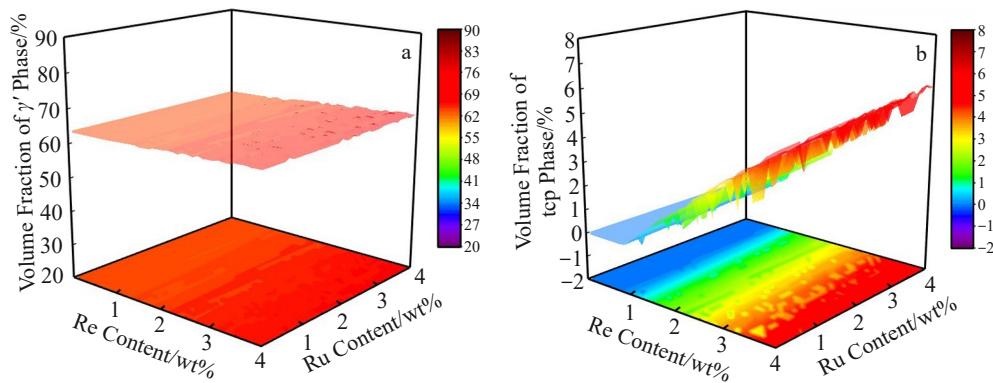


图4 Re、Ru元素含量对γ'相和tcp相体积分数的影响

Fig.4 Effects of Re and Ru contents on the volume fraction of γ' phase (a) and tcp phase (b)

Ta、Ti、Nb)含量的影响,而Re、Ru元素主要分布于 γ 基体相,为固溶强化元素,其含量变化对 γ' 相含量不会有太大影响。Shi等^[24]人也通过实验探究了Ru元素含量变化对 γ' 相含量的影响,发现Ru含量的变化并不能明显改变 γ' 相含量。

tcp相在镍基高温合金中为有害相,其为脆性相,多成为裂纹源,不利于合金的性能^[25]。本研究考虑了常见的6种tcp相(δ 相、 σ 相、 μ 相、 η 相、Laves相、P相),将6种tcp相的体积分数的总和作为tcp相体积分数,图4b为tcp相体积分数随Re、Ru元素含量的变化情况。当Re含量超过1wt%后,其含量的增加显著促进了tcp相的析出,大量研究也发现镍基高温合金中加入Re元素会促进tcp相的析出^[26-28]。Re元素为固溶强化元素,主要分布于 γ 基体相中,通过形成长、短程内应力场、原子偏聚区和短程有序区等阻碍位错的运动,进而起到固溶强化作用;另一方面,通过加入Re元素可以降低有效扩散系数,进而提高蠕变寿命^[29]。因此,随着镍基高温合金的发展,研究者通过提高Re含量提高合金的性能。但由于Re元素是强tcp相析出元素,并偏聚于 γ 基体相,随着Re元素含量的提高, γ 基体相中Re元素的过饱和度不断提高,进而促

进tcp相的析出。一些研究通过加入Ru元素改变其他合金元素的分配行为,缓解元素偏析程度,即“反向分配”现象,通过降低tcp相形成元素在 γ 基体相中的过饱和度,进而抑制tcp相的析出。然而,目前一些研究发现在一些合金中,Ru元素的加入不仅不会抑制tcp相的析出,反而促进tcp相的析出^[30-31]。在本研究的合金体系中,Ru含量的变化对tcp相没有显著影响,既不促进也不抑制tcp相的析出。通过合金体系的平均价电子数和平均原子体积差,以及元素分配行为进一步分析。

根据各合金元素在 γ' 强化相和 γ 基体相中的含量,利用公式(1)可以计算各合金元素在两相中的分配系数 $K_i^{\gamma'/\gamma}$ ^[15]。其中 $C_i^{\gamma'}$ 和 C_i^{γ} 分别为i元素在 γ' 强化相和 γ 基体相中的原子分数。

$$K_i^{\gamma'/\gamma} = C_i^{\gamma'}/C_i^{\gamma} \quad (1)$$

本研究计算了当Re元素含量为3wt%时,各元素分配系数随Ru含量的变化情况,如图5所示。计算结果表明,Al、Ta元素的分配系数均大于1,作为沉淀强化元素偏析于 γ' 相,且Ti的偏析程度大于Al。Co、Mo、Cr、Re、Ru元素的分配系数小于1,作为固溶强化元素偏析于 γ 基体相,其中Re元素的偏析程度最大。W元素则较为均

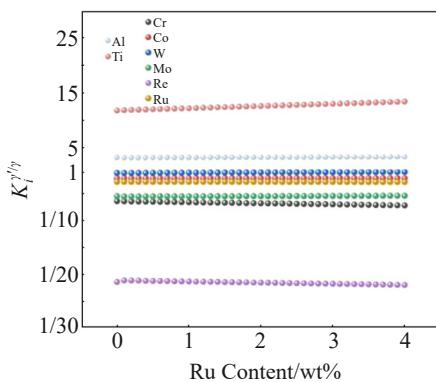


图 5 各合金元素分配系数随 Ru 含量的变化

Fig.5 Variations of distribution coefficients of each alloying element with Ru content

匀的分配于 γ 强化相和 γ 基体相中。从图 5 中可以看到,随着 Ru 元素含量的增加,各合金元素的偏析程度并未缓解,未出现“反向分配”现象。

为了进一步探究 Ru 元素的加入是否起到抑制或促进 tcp 相析出的作用,通过公式(2)和公式(3)计算合金的平均价电子数 \bar{N} 和平均原子体积差 $\Delta \bar{V}/\bar{V}$ 。

$$\bar{N} = \sum_i C_i N_i \quad (2)$$

$$\Delta \bar{V}/\bar{V} = \sum_{ij} \frac{C_i C_j |V_i - V_j|}{(V_i - V_j)/2} \quad (3)$$

式中, C_i 和 C_j 为各合金元素的原子比, N_i 和 N_j 分别为各合金元素的价电子数和原子体积, 其数值如表 2 所示。通过公式计算, 以 DZ417G 为基础合金体系的 1681 组合金

表 2 各合金元素的价电子数(N)和原子体积(V)Table 2 Number of valence electrons (N) and atomic volume (V) of each alloying element

| Element | N | $V/\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$ |
|---------|-----|---------------------------------------|
| Ni | 10 | 6.59 |
| Al | 3 | 10 |
| Ti | 4 | 10.65 |
| Ta | 5 | 10.9 |
| Nb | 5 | 10.87 |
| Cr | 6 | 7.23 |
| Co | 9 | 6.7 |
| Re | 7 | 8.85 |
| Ru | 8 | 8.3 |
| B | 3 | 4.6 |
| C | 4 | 4.58 |
| Hf | 4 | 13.6 |
| Mo | 6 | 9.4 |
| W | 6 | 9.53 |
| Zr | 4 | 14.1 |
| V | 5 | 8.78 |

成分的平均价电子数介于 8.17~8.33 之间, 平均原子体积差介于 0.142~0.156 之间。Seiser 等人^[32]建立了包含平均价电子数和平均原子体积差的二维结构图, 用于 tcp 相、 γ' 相及 γ 相的稳定性判定。同时, Seiser 等人在随后的研究中证实了平均价电子数和平均原子体积差对各相稳定性的影响^[33]。本工作研究的 DZ417G 合金体系的平均价电子数和平均原子体积差位于红色方框区域, 并不位于 tcp 相的稳定区或 γ 相稳定区, 因此 Ru 元素的加入即不会抑制 tcp 相的析出, 也不会促进 tcp 相的析出。

Peng 等^[28,34]人基于第二代高温合金 CMSX-4 设计出 Astra 系列合金, 并探究了 Ru 元素加入对 tcp 相析出的影响, 发现 Ru 降低了 tcp 相析出的驱动力, 抑制 tcp 相的析出。计算了该合金的平均价电子数和平均原子体积差分别为 8.451 和 0.695, 处于 γ 基体相稳定区, 因此 Ru 元素的加入会抑制 tcp 相的析出, 与实验结果一致。而 Lee 等^[31]人则发现 Ru 元素的加入促进了 tcp 相的析出, 通过计算, 合金的平均价电子数和平均原子体积差处于 tcp 相稳定区, 故 Ru 元素的加入会促进 tcp 相的析出, 与实验结果一致。

总的来说, 在探究的 4 种合金体系中, Re 元素含量的增加会促进 tcp 相的析出, 而 Ru 元素的增加由于未引起“反向分配”现象, 未缓解 tcp 相形成元素的偏析程度, 且合金成分的平均价电子数及平均原子体积差并未处于镍基高温合金相稳定区结构图中的 tcp 相稳定区或 γ 相稳定区, 因此并不会对 tcp 相的析出起到促进或抑制作用。不同的合金体系中 Ru 对 tcp 相的析出具有不同的作用, 可借助元素分配行为、镍基高温合金相稳定结构图等方法进行分析。

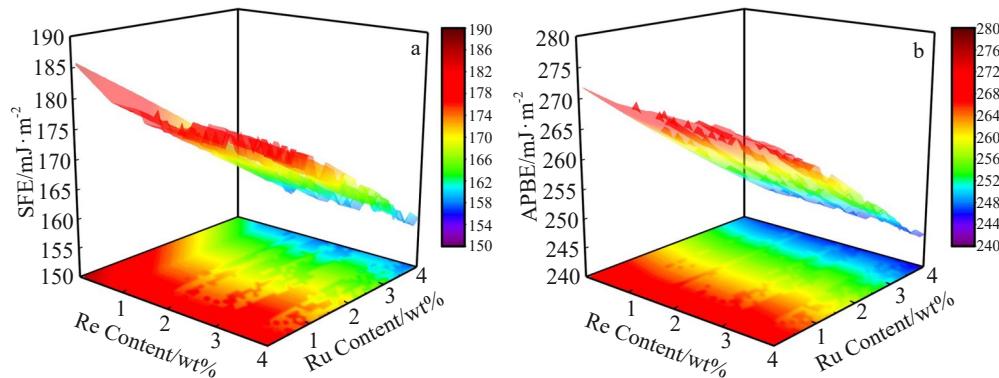
3.3 动力学参数

通过热力学软件采集到各合金成分在 900 °C 下的堆垛层错能(SFE)及 γ' 相的反相畴界能(APBE)。其随 Re、Ru 元素的变化情况如图 6 所示。图中显示 Re 含量的变化对合金的堆垛层错能及 γ' 相的反相畴界能并没有明显的影响, 而 Ru 元素含量的增加显著降低合金的堆垛层错能及 γ' 相的反相畴界能。

晶体是由原子面按一定规则重叠堆积起来的, 当这种原子面重叠堆积的规则在某处被破坏时, 该处就会出现面缺陷, 这种缺陷被叫做堆垛层错^[35]。堆垛层错的形成会引起能量的增加, 单位面积层错所增加的能量即为堆垛层错能。Tian 等^[36]人研究了镍基高温合金中堆垛层错能对合金蠕变性能的影响, 结果表明 Co 含量的增加降低了堆垛层错能, 进而提高合金的蠕变性能。高温固溶强化机制中高温稳态蠕变速率的近似计算如式(4)所示:

$$\dot{\varepsilon} = A \gamma^m \left(\frac{\sigma}{E} \right)^n D \quad (4)$$

其中, A 为常数, γ 为堆垛层错能, σ 为外加应力, E 为弹性模量, D 为扩散系数, m 与 n 均为大于 1 的常数。从公式

图 6 Re、Ru 元素变化对堆垛层错能及 γ' 相反相畴界能的影响Fig.6 Influences of elements Re and Ru on stacking fault energy (a) and antiphase boundary energy of γ' phase (b)

(4)中可以看出,若加入高温合金固溶体基体的合金元素可以降低合金的堆垛层错能和扩散系数,并提高弹性模量,则可以降低合金的高温稳态蠕变速率,进而提高抗蠕变能力;另一方面,由于溶质原子在堆垛层错和 γ 基体中的浓度是不同的,堆垛层错的形成会产生溶质原子偏聚区,进而阻碍位错的运动。这种强化效应称为铃木(Suzuki)效应,其强化程度可近似用公式(5)计算。

$$\tau = AC \left(\frac{\partial \gamma}{\partial C} \right)^2 \quad (5)$$

其中, τ 为位错通过溶质原子偏聚区所需要的能量, A 为常数, γ 为堆垛层错能, C 为溶质原子浓度。从公式(5)中可以看出,溶质单位浓度引起的堆垛层错能变化越大,屈服强度的增加越大。因此, Ru 元素含量增加引起的堆垛层错能降低不仅可以提高合金的蠕变性能,还可以提高合金的强度。

近年来,研究者通过不同的方法计算反相畴界能以指导合金成分的设计^[37-40]。Chen 等^[37]人通过密度泛函理论及机器学习方法建立起了反相畴界能预测模型,并通过预测商业高温合金中的反相畴界能证明了模型的适用性。位错切割 γ' 相的所有理论,都与反相畴界能有关。Ham 等人^[39]推导出了单一位错切割沉淀颗粒引起屈服强度增加的近似计算式,如公式(6)所示:

$$\Delta\tau = \left(\frac{APBE}{b} \right)^{3/2} \left(\frac{4fr_s}{\pi T} \right)^{1/2} \quad (6)$$

其中, APBE 为单位面积上的反相畴界能, r_s 为与位错线相切割的颗粒的平均尺寸, b 为伯格斯矢量, f 为沉淀相的体积分数。Reppich 等^[41]人发现, 位错切割 γ' 相时屈服强度的峰值可以近似为公式(7):

$$\sigma_{y,peak} \propto \frac{APBE \cdot f^{1/2}}{2b} \quad (7)$$

从公式(6)和公式(7)中可以看出反相畴界能的提高有利于合金屈服强度的增加。因此, 图 7b 中 Ru 元素含量的增加降低了 γ' 相的反相畴界能, 对合金的屈服强度有不利影响。

Li^[22]等人通过实验对比无 Ru 合金与含 Ru 合金的发现 Ru 的加入可以降低中温高应力条件下的堆垛层错能进而提高合金蠕变寿命。本研究收集了 3 组 Ru 含量不同的合金在不同条件下的蠕变寿命, 如表 3 和表 4 所示^[24,42-43]。计算不同条件下合金的堆垛层错能及 γ' 相的反相畴界能如表 4 所示, 发现在不改变其余元素含量的前提下, Ru 元素含量的增加同时降低了合金的堆垛层错能及 γ' 相的反相畴界能, 且合金的蠕变寿命提高。验证了镍基高温合金中 Ru 元素的加入可降低合金堆垛层错能以提高蠕变寿命。

沉淀相的析出和粗化、位错的运动、蠕变变形等都与元素的扩散有关。本研究利用公式(8)计算 900 °C 下合金基体的有效扩散系数^[44]。

表 3 所选合金成分

Table 3 Composition of selected alloys (wt%)

| Alloy | Co | Cr | W | Mo | Re | Ru | Al | Ta | Hf | Nb | Ni |
|--------|------|------|------|------|------|-----|-----|------|------|------|------|
| SC1111 | 7.1 | 3.6 | 5.4 | 1 | 4.4 | 2.6 | 6 | 7.9 | 0.1 | 0 | Bal. |
| SC1112 | 6.9 | 3.5 | 5.4 | 1 | 4 | 4 | 6 | 8 | 0.1 | 0 | Bal. |
| 2.5Ru | 11.7 | 3.9 | 6.1 | 0.85 | 5 | 2.5 | 6.2 | 8.5 | 0.15 | 0 | Bal. |
| 3.5Ru | 12.1 | 4.1 | 6 | 0.95 | 5 | 3.5 | 6.2 | 8.5 | 0.08 | 0 | Bal. |
| DMD4 | 7.65 | 3.02 | 5.75 | 0 | 6.1 | 0 | 5.4 | 6.78 | 1.12 | 0.35 | Bal. |
| DMD4R4 | 7.62 | 3 | 5.74 | 0 | 6.08 | 3.2 | 5.5 | 6.45 | 1.11 | 0.34 | Bal. |

表 4 所选合金在不用条件下的蠕变寿命及堆垛层错能

Table 4 Creep life and stacking fault energy of selected alloys under different conditions

| Alloy | Test condition (°C/MPa) | Creep life/h | SFE/ mJ·m ⁻² | APBE/ mJ·m ⁻² |
|--------|----------------------------|-----------------|----------------------------|-----------------------------|
| SC1111 | 1100/140 | 263.3 | 260 | 208 |
| SC1112 | | 282.1 | 256 | 199 |
| 2.5Ru | 1140/137 | 88.92 | 226 | 189 |
| 3.5Ru | | 144.9 | 217 | 181 |
| DMD4 | 1100/90 | 354 | 295 | 229 |
| DMD4R4 | | 655 | 273 | 206 |
| DMD4 | 982/240 | 136 | 263 | 229 |
| DMD4R4 | | 266 | 242 | 207 |

$$D^{\text{eff}} = D_0^{\text{eff}} \exp\left(\frac{-Q^{\text{eff}}}{RT}\right) \quad (8)$$

式中, T 为绝对温度, $R(8.314 \times 10^{-3} \text{ kJ} \cdot (\text{mol} \cdot \text{K})^{-1})$ 为气体摩尔常数, D_0^{eff} 和 Q^{eff} 分别为指前系数和激活能, 可通过公式(9)和公式(10)计算。

$$D_0^{\text{eff}} = \frac{1}{\sum_i \frac{C_i}{D_0^{i,\text{Ni}}}} \quad (9)$$

$$Q^{\text{eff}} = Q^{\text{Ni}} + \sum_i C_i Q^{i,\text{Ni}} \quad (10)$$

式中, C_i 为 γ 相中 i 元素的原子比, 可通过热力学软件计算得到, $D_0^{i,\text{Ni}}$ 和 $Q^{i,\text{Ni}}$ 分别为 i 元素在 Ni 中的指前因子和自扩散激活能, 其具体数值如表 5^[45] 所示。图 7 显示 Ru 含量对扩散系数并没有影响, 但 Re 元素含量的增加显著降低了有效扩散系数, 当 Re 含量大于 1wt% 后, 扩散系数降低速率变缓。

研究表明扩散系数显著影响合金的蠕变性能。Reed 等^[46] 人提出了衡量蠕变抗力的性能指标 M_{creep} , 如公式(11)所示:

$$M_{\text{creep}} = \sum_i \frac{C_i}{D_i} \quad (11)$$

其中, C_i 为 i 元素在合金中的原子分数, D_i 为 i 元素在 Ni

表 5 各溶质在 Ni 中的指前因子 $D_0^{i,\text{Ni}}$ 和自扩散激活能 $Q^{i,\text{Ni}}$ Table 5 Pre-exponential factor $D_0^{i,\text{Ni}}$ and self-diffusion activation energy $Q^{i,\text{Ni}}$ of each solute i in Ni

| Element | $D_0^{i,\text{Ni}}/\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ | $Q^{i,\text{Ni}}/\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ |
|---------|--|---|
| Cr | 5.2×10^{-4} | 289 |
| Co | 1.8×10^{-4} | 281 |
| Mo | 1.15×10^{-4} | 281 |
| Re | 8.2×10^{-7} | 255 |
| W | 8.0×10^{-6} | 264 |
| Ta | 2.0×10^{-5} | 251 |
| Ti | 4.1×10^{-4} | 275 |
| Al | 4.3×10^{-4} | 272 |

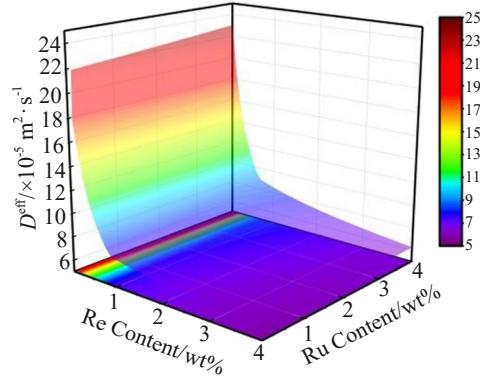


图 7 Re、Ru 元素变化对基体有效扩散系数的影响

Fig.7 Effect of elements Re and Ru on effective diffusion coefficient of matrix

中的扩散系数。同时镍基高温合金部件通常的工作环境为高温低应力, 温度在 $0.6T_m$ 以上, 所受应力小于合金的屈服强度, 产生一种与时间有关的变形行为, 即蠕变变形。当施加应力不足以开动位错切割机制和 Orowan 绕过机制时, 蠕变变形只能借助于位错以热激活攀移方式越过强化粒子。Ansell 等^[47] 人提出了此时稳态蠕变速率的近似计算公式, 如公式(12)所示:

$$\dot{\epsilon} = \frac{\pi \sigma^4 L^2 D}{r G^3 K T} \quad (12)$$

其中, σ 为外加应力, L 为沉淀相颗粒间距, D 为基体元素的扩散系数, r 为第二相颗粒尺寸, G 为剪切模量, K 为常数, T 为绝对温度。从公式(4)、公式(11)及公式(12)中均可以看到扩散系数的降低有利于合金蠕变寿命的提高。对此, 很多研究者也将扩散系数作为合金设计准则以优化合金成分^[20,48-49]。由表 5 可以看到 Re 元素在 Ni 中的扩散系数比其他元素低 3 个数量级, 合金中 Re 含量的增加会引起有效扩散系数的降低, 这是 Re 元素加入提高合金蠕变寿命的主要原因。

本研究中, Re 元素和 Ru 元素分别通过降低有效扩散系数和合金堆垛层错能以提高合金蠕变性能。另一方面, Ru 元素降低 γ' 相的反相畴界能不利于合金的屈服强度, 但 Ru 元素的固溶强化作用及引起的堆垛层错能增加可以提高合金的屈服强度, 因此, Ru 元素对合金屈服强度没有显著影响可能是由于这 3 个因素相互作用导致。

4 结 论

1) Re、Ru 元素含量的增加均可提高合金 900 °C / 200 MPa 下的蠕变寿命, 且 Ru 元素的作用更加显著。其主要原因是 Re 含量的增加可以降低有效扩散系数, Ru 含量的增加可以降低合金的堆垛层错能。

2) Re、Ru 元素的改变对合金的高温屈服强度没有显著影响。Ru 元素含量的增加降低了合金的室温屈服强

度,但不敏感,这主要是因为Ru元素的加入引起的固溶强化作用及堆垛层错能的增大有利于增强合金的屈服强度,而引起的 γ' 相的反相畴界能降低不利于合金的屈服强度,多种因素共同影响屈服强度的变化。

3)本工作研究的4中合金体系中,Re元素显著促进tcp相的析出。而Ru元素的加入并未引起其他元素的“反向分配”现象,且平均原子体积差和平均价电子数并未处于镍基高温合金相稳定区结构图中的tcp相稳定区以及 γ 相稳定区,因此本研究中Ru元素的加入并不会对tcp相的析出起到促进或抑制作用。通过验证,不同合金体系可通过分析元素分配行为及相稳定结构图判断Ru元素的加入对tcp相析出的影响。

4) Re、Ru作为重要战略元素,其高昂的价格和复杂的交互作用急剧增加实验成本及时间,本工作借助热力学软件进行高通量计算提高了研究效率,结合已有实验,验证了该方法的可行性,为成分设计与替代元素寻找提供思路。

参考文献 References

- [1] Reed R C. *The Superalloys Fundamentals and Applications*[M]. London: Cambridge University Press, 2006: 1
- [2] Prasad N E, Wanhill R J H. *Aerospace Materials and Material Technologies: Volume 2: Aerospace Material Technologies*[M]. Singapore: Springer Singapore, 2017: 1
- [3] Zhang Longfei(张龙飞), Jiang Liang(江亮), Zhou Kechao(周科朝) et al. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*(中国有色金属学报)[J], 2022, 32(3): 630
- [4] Zhang Z K, Yue Z F. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2018, 746: 84
- [5] Wilson A S. *Materials Science and Technology*[J], 2017, 33(9): 1108
- [6] Peng Z, Povstugar I, Matuszewski K et al. *Scripta Materialia*[J], 2015, 101: 44
- [7] Jin H X, Zhang J X, Zhang Y J et al. *Intermetallics*[J], 2019, 113: 106556
- [8] Heckl A, Neumeier S, Cenanovic S et al. *Acta Materialia*[J], 2011, 59(17): 6563
- [9] Carroll L J, Feng Q, Mansfield J F et al. *Materials Science and Engineering A*[J], 2007, 457(1-2): 292
- [10] Sato A, Harada H, Yokokawa T et al. *Scripta Materialia*[J], 2006, 54(9): 1679
- [11] Long H B, Mao S C, Liu Y N et al. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2018, 743: 203
- [12] Chen J Y, Feng Q, Sun Z Q. *Scripta Materialia*[J], 2010, 63(8): 795
- [13] Sun J, Liu J, Li J et al. *Scripta Materialia*[J], 2021, 205: 114209
- [14] Lv X Z, Zhang J X, Feng Q. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2015, 648: 853
- [15] Zhao Guoqi(赵国旗), Tian Sugui(田素贵), Liu Lirong(刘丽荣) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2022, 51(1): 52
- [16] Sun Jingxia(孙晶霞), Liu Jinlai(刘金来), Chen Chao(陈超) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2022, 51(2): 369
- [17] Ai Cheng(艾诚), Liu Gang(刘刚), Liu Lin(刘林) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2012, 41(8): 1336
- [18] Shi Zhenxue(史振学), Liu Shizhong(刘世忠), Yue Xiaodai(岳晓岱) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2023, 52(6): 1977
- [19] Luo Shiyu(骆宇时), Zhao Yunsong(赵云松), Yang Shuai(杨帅) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2016, 45(7): 1719
- [20] Wei B S, Lin Y, Huang Z W et al. *Acta Materialia*[J], 2022, 240: 118336
- [21] Liang Shuang(梁爽), Zhao Fengqin(赵凤芹), Liu Zhixin(刘智鑫) et al. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*(中国有色金属学报)[J], 2020, 30(9): 2116
- [22] Li Y M, Tan Z H, Wang X G et al. *Materials Science and Engineering A*[J], 2022, 856: 144006
- [23] Murakumo T, Kobayashi T, Koizumi Y et al. *Acta Materialia*[J], 2004, 52(12): 3737
- [24] Shi Q Y, Huo J J, Zheng Y R et al. *Materials Science and Engineering A*[J], 2018, 725: 148
- [25] Wilson A S. *Materials Science and Technology*[J], 2017, 33(9): 1108
- [26] Xiong Jiangying(熊江英), Long Anping(龙安平), Zhang Jianting(张建庭) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2021, 50(11): 3995
- [27] Wang Huan(王欢), Ning Likui(宁礼奎), Zheng Zhi(郑智) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2020, 49(1): 247
- [28] Matuszewski K, Rettig R, Matysiak H et al. *Acta Materialia*[J], 2015, 95: 274
- [29] Meher S, Carroll M C, Pollock T M et al. *Materials & Design*[J], 2018, 140: 249
- [30] Chen J Y, Feng Q, Sun Z Q. *Scripta Materialia*[J], 2010, 63(8): 795
- [31] Lee S, Do J, Jang K et al. *Scripta Materialia*[J], 2023, 222: 115041
- [32] Seiser B, Drautz R, Pettifor D G. *Acta Materialia*[J], 2011, 59(2): 749
- [33] Hammerschmidt T, Seiser B, Cak M et al. *Superalloys 2012*[C]. Champion: Seven Springs Mountain Resort, 2012: 135
- [34] Peng Z, Povstugar I, Matuszewski K et al. *Scripta Materialia*[J], 2015, 101: 44
- [35] Guo Jianting(郭建亭). *Materials Science and Engineering for Superalloys*(高温合金材料学)[M]. Beijing: Science Press, 2008: 84
- [36] Tian C G, Han G M, Cui C Y et al. *Materials & Design*[J], 2014,

- 64: 316
- [37] Chen E, Tamm A, Wang T *et al.* *npj Computational Materials*[J], 2022, 8(1): 80
- [38] Mishin Y. *Acta Materialia*[J], 2004, 52(6): 1451
- [39] Ham R K. *Ordered Alloys: Structural Applications and Physical Metallurgy*[M]. Baton Rouge: Claitors, 1970: 365
- [40] Sluiter M, Hashi Y, Kawazoe Y. *Computational Materials Science*[J], 1999, 14(4): 283
- [41] Reppich B. *Acta Metallurgica*[J], 1982, 30(1): 87
- [42] Chatterjee D, Hazari N, Das N. *Procedia Engineering*[J], 2013, 55: 51
- [43] Song W, Wang X G, Li J G *et al.* *Materials Science and Engineering A*[J], 2020, 772: 138646
- [44] Campbell C E, Boettinger W J, Kattner U R. *Acta Materialia*[J], 2002, 50(4): 775
- [45] Zhu Z, Basoalto H, Warnken N *et al.* *Acta Materialia*[J], 2012, 60(12): 4888
- [46] Reed R C, Tao T, Warnken N. *Acta Materialia*[J], 2009, 57(19): 5898
- [47] Ansell G S, Weertman J. *Trans Am Inst Mech Eng*[J], 1958, 215: 838
- [48] Pröbstle M, Neumeier S, Feldner P *et al.* *Materials Science and Engineering A*[J], 2016, 676: 411
- [49] Xu B, Yin H Q, Jiang X *et al.* *Computational Materials Science*[J], 2022, 202: 111021

Interaction of Elements Re and Ru in Nickel-Based Superalloys Assisted by High-Throughput Calculations

Wu Jiaqi, Lian Lixian, Li Wenjing, Liu Ying

(College of Materials Science and Engineering, Sichuan University, Chengdu 610065, China)

Abstract: To investigate the complex interaction mechanism between elements Re and Ru, a dataset containing composition, microstructural parameters, kinetic parameters, physical parameters and macroscopic properties with the aid of high-throughput calculations were established, which effectively reduces the experimental cost and time. Results show that the addition of Re and Ru improves the creep life of the alloys by lowering the effective diffusion coefficient and stacking dislocation energy. The addition of the element Ru reduces the stacking dislocation energy and the antiphase domain energy, which in combination with the solid solution strengthening of Ru together affect the yield strength of the alloys, resulting in no significant change in the yield strength. At the same time, the four alloy systems were studied, element Re significantly promotes the tcp phase precipitation, while element Ru does not inhibit or promote the tcp phase precipitation. The element distribution behavior and the phase stability structure diagram of nickel-based superalloy was analyzed whether Ru inhibited or promoted the tcp phase precipitation.

Key words: nickel-based superalloys; element Ru; element Re; interactions; high-throughput calculations

Corresponding author: Lian Lixian, Ph. D., Professor, College of Materials Science and Engineering, Sichuan University, Chengdu 610065, P. R. China, E-mail: scu_lianyi@126.com