

# DD3 单晶合金短时液相扩散连接接头组织与性能研究

Study on Microstructure and Mechanical Properties of DD3 Single Crystal Alloy Joints Bonded for Short Time

李晓红<sup>1,2</sup>, 谢永慧<sup>2</sup>, 钟群鹏<sup>1</sup>, 曹春晓<sup>2</sup>

(1 北京航空航天大学材料科学与工程学院, 北京 100083;

2 北京航空材料研究院, 北京 100095)

LI Xiaohong<sup>1,2</sup>, XIE Yonghui<sup>2</sup>, ZHONG Qunpeng<sup>1</sup>, CAO Chunxiao<sup>2</sup>

(1 School of Materials Science and Engineering, Beijing University of Aeronautical and Astronautics, Beijing 100083, China;

2 Beijing Institute of Aeronautical Materials, Beijing 100095, China)

**摘要:** 采用 D1P 和 D1F 两种中间层合金在 1250℃ 下分别保温 10, 30min, 1, 2, 4h 扩散连接 DD3 单晶合金。这两种中间层合金是在 DD3 合金成分基础上添加了一定量的降熔元素硼, 分别以粉和箔带形式使用。对上述规范下获得的 DD3 接头组织和性能进行了研究分析, 结果表明, 扩散时间短, D1P 中间层合金扩散焊接头组织很不均匀, 在中间层合金流入处生成大量光板  $\gamma'$  相, 对接头持久性能不利, 1250℃ 下扩散 4h 接头的 980℃ 持久性能为母材性能的 60%; 而 D1F 中间层合金扩散焊接头组织均匀一致, 1250℃ 下扩散 4h 接头 980℃ 持久性能超过母材性能的 70%。

**关键词:** DD3 单晶合金; 扩散连接; 持久性能

中图分类号: TG146.1+5 文献标识码: A 文章编号: 1001-4381(2005)05-0003-04

**Abstract:** Single crystal superalloy DD3 was diffusion bonded at 1250℃ for 10, 30min, 1, 2, 4h with two interlayer alloys D1P and D1F. The compositions of these two interlayer alloys are similar to those of DD3 substrate and boron was added as melting-point depressant. The microstructures and mechanical properties of the joints were examined. Results showed that holding for such short time, there were a lot of blocky  $\gamma'$  phases in the bonding seam with D1P interlayer alloy, causing a lower stress rupture property of about 60% of the DD3 substrate at 980℃. However, for the D1F interlayer alloy, homogeneous joint microstructures were obtained showing a higher stress rupture property of about 70% of the DD3 substrate at 980℃.

**Key words:** DD3 single crystal alloy; diffusion bonding; stress rupture property

DD3 是中国第一代镍基单晶高温合金, 其不含稀贵元素, 主要由 (9.0~10.0)% (质量分数, 下同) Cr, (4.5~5.5)% Co, (5.0~6.0)% W, (5.5~6.2)% Al 和 (1.7~2.4)% Ti 等元素组成, 合金成本较低, 中、高温性能优良, 具有良好的抗热疲劳性能, 适合制作 1040℃ 以下工作的涡轮转子叶片和 1100℃ 以下工作的导向叶片<sup>[1]</sup>。早期对于 DD3 合金的长时间扩散连接工艺已经进行了较深入的研究, 并研制了适合的中间层合金, 采用 D1P 和 D1F 中间层合金在 1250℃ 保温 24h 连接规范下得到的接头组织与母材基本一致, 980℃ 持久性能达到或超过母材相应性能的 90%<sup>[2,3]</sup>。然而高温下扩散时间长、成本高、对设备的要求严格, 而且 DD3 合金用于不同部件对焊接接头的

性能要求也不同, 为此本工作将重点研究 D1P 和 D1F 中间层合金在 1250℃ 短时间扩散连接 DD3 单晶合金接头的组织和性能, 以进一步提高该工艺适用性和使用范围。

## 1 实验材料、方法及设备

在真空感应定向凝固炉中采用螺旋选晶法制备出实验用 DD3 合金 [001] 取向的单晶试棒。为防止由于机械加工应力导致母材在焊接热循环中发生再结晶, 焊前 DD3 合金表面准备采用了 1250℃/24h, AC + 870℃/32h, AC 的固溶时效处理 + 线切割 + 砂纸打磨方法, 焊前试样在丙酮溶液中超声波清洗。

连接用 D1P 中间层合金使用形式为- 60 目粉, 其成分除含有 3. 43% 的降熔元素硼, 铝含量稍高于母材外, 其他元素含量与 DD3 相当。而 D1F 中间层合金是按将 DD3 母材中的铝、钛去除后再加入 3. 8% 的硼配制而成, 以 0. 02mm 厚的非晶态箔带形式使用。

接头金相试样和性能试样均为对接接头。焊前严格配对加工, 加工后用夹具精确保证两试样取向一致。使用 D1P 粉状中间层合金时, 将适量的 D1P 中间层合金添加在试样的坡口处, 焊接间隙 0. 1mm; 使用 D1F 中间层合金时, 将两层 D1F 中间层合金夹在连接面之间, 用夹具固定后入炉焊接。扩散连接温度采用了母材的固溶处理温度 1250℃, 保温时间分别为 10, 30min, 1, 2, 4h。实验设备为双室真空钎焊炉, 焊接过程中热态真空度优于  $2 \times 10^{-2}$  Pa。接头组织和相成分在 JSM- 5600LV 扫描电镜及其附带的 LINK ISIS 300 能谱仪上进行观察和测试, 接头 980℃ 持久性能在 M143F 试验机上进行测试, 试样工作区尺寸为  $\varnothing 5\text{mm} \times 25\text{mm}$ 。

2 实验结果及讨论

2.1 D1P 和 D1F 中间层合金对应接头显微组织

图 1 为采用 D1P 中间层合金在 1250℃ 保温 10, 30min, 2, 4h 后炉冷对应的接头组织形貌。

从图 1 可以看出, 保温 10min, 焊缝宽度约为 150 $\mu\text{m}$ , 由  $\gamma$  和  $\gamma'$  两相组织 1, 连续分布的大块花团状  $\gamma + \gamma'$  共晶 2, 一些尺寸较大的骨架状化合物相 3 和一些黑色相 4 组成。在近缝区存在大量块状化合物相 5。随着保温时间的延长, 组织 1 宽度增加, 而  $\gamma + \gamma'$  共晶 2 的宽度减少, 花团状共晶边缘的丝状  $\gamma$  相回溶进入  $\gamma'$  相, 保温 4h 后  $\gamma'$  共晶会聚成为大块光板状  $\gamma'$  相 6。焊缝中央的骨架状化合物相尺寸减小, 形状转变为间断的小块状或点状。近缝区的化合物相数量也明显减少。

图 1a 中各相成分的 EDS 测试结果见表 1。可以看出, 焊缝中生成的骨架状化合物 Mo, W, Cr 元素含

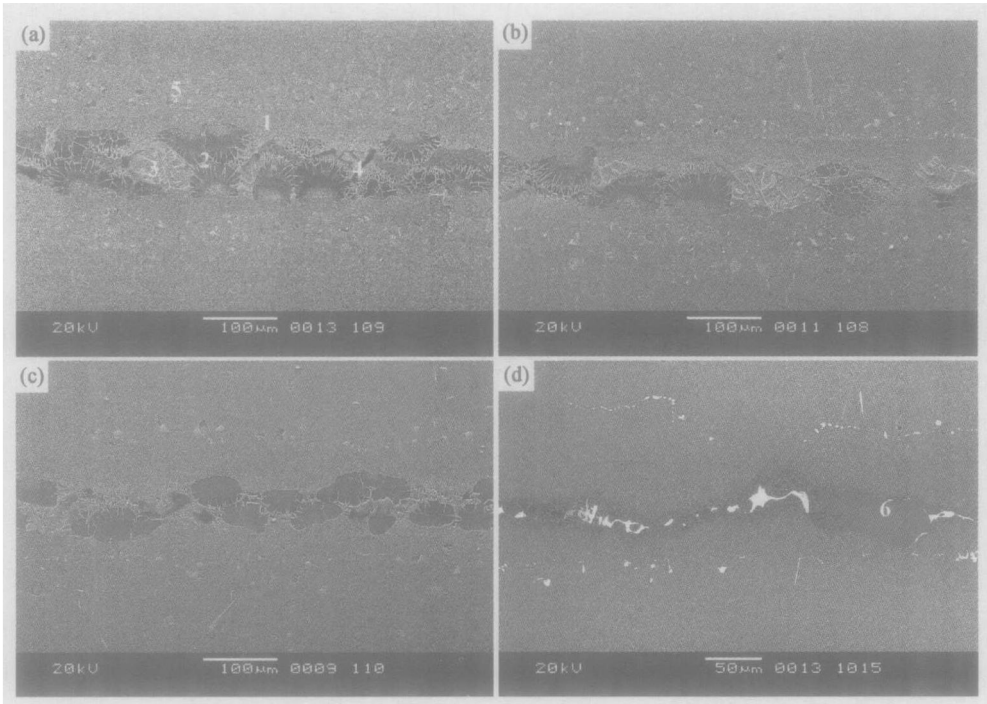


图1 D1P 中间层合金在 1250℃ 保温 10min (a), 30min (b), 2h (c) 和 4h (d) 连接接头组织形貌

Fig. 1 SEM morphology of joint microstructure bonded with D1P at 1250℃ for 10min (a), 30min (b), 2h (c) and 4h (d)

表 1 D1P 中间层合金在 1250℃ 保温 10min 连接接头中各相的化学成分

Table 1 Chemical compositions of phases in DD3 joint bonded with D1P at 1250℃ for 10 min

Analysis location	Composition(atom fraction/ %)							Phase
	Al	Ti	Cr	Co	Ni	Mo	W	
White phase 3	0. 42	0. 98	38. 87	2. 90	11. 90	28. 09	16. 84	( Mo, W, Cr)–B
Black phase 4	0. 29	0. 66	66. 78	7. 53	14. 46	9. 39	0. 89	Cr–B
White block y phase 5	–	2. 35	30. 81	1. 36	7. 49	35. 87	22. 12	( Mo, W, Cr)–B

量高,与近缝区的小块状化合物成分类似,分析是富 Mo, W, Cr 的硼化物。而焊缝中出现的黑色块状相 Cr 含量很高,而 Mo 含量较低,几乎不含 W,分析是一种富 Cr 的硼化物。

图 2 为 D1P 中间层合金扩散焊接头不同部位的组织形貌,可见接头组织存在较大的不均匀性,在放置中间层合金的坡口流入处焊缝的组织形貌与流出端的形貌差别很大。分析认为,由于 D1P 中间层合金熔化温度区间较宽(1110~ 1205 ℃),因此当加热至中间层合金开始熔化,初熔液相会在接头毛细作用下率先流入接头间隙中,并向纵深方向发展。随着温度升高,逐渐增多的熔化相作为初熔相的补充继续向缝中填入,直至填满整个接头间隙。由于加热过程中不同阶段所形成的液相成分不同,再加上等间隙接头液相流入取向的不确定性,因此接头组织不均匀。

图 3 为采用 D1F 中间层合金 1250℃保温 10, 30min, 2, 4h 对应接头的组织形貌。从图 3 可以看出,与图 1 类似,1250℃保温 10min 焊缝仍由 1 区的  $\gamma$  和  $\gamma'$  两相组织,2 区的花团状  $\gamma + \gamma'$  共晶、大块骨架状化合物相及一些黑块状的化合物相组成,但各相的数量明显减少。在近缝区仍有大量块状化合物相存在。扩散时间延长,焊缝中央的骨架状化合物相尺寸减小,黑块状化合物变成条状, $\gamma + \gamma'$  共晶相减少。保温 30min 和 2h,近缝区母材出现了明显的局部初熔现象。扩散 4h 后焊缝中的化合物相和近缝区母材中先前出现的局部初熔现象消失,仅有少量块状化合物相存在,焊缝

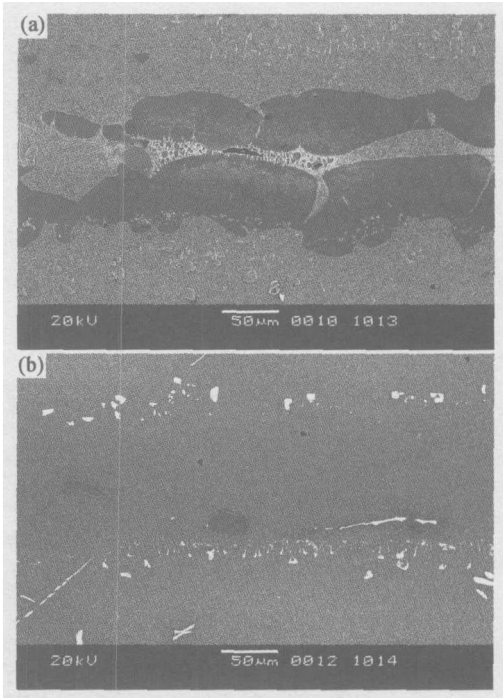


图 2 D1P 中间层合金在 1250℃保温 4h 接头组织形貌  
(a) 中间层合金流入端; (b) 流出端

Fig. 2 SEM morphology of joint microstructure at the groove  
(a) and bottom(b) with D1P at 1250℃/ 4h

组织已变得比较均匀。

分析可知, D1P 中间层合金的 Al, Ti 总含量高于 DD3 母材,因此在扩散连接过程中, D1P 中间层合金对应焊缝中央生成的共晶  $\gamma + \gamma'$  相数量多,尺寸大。

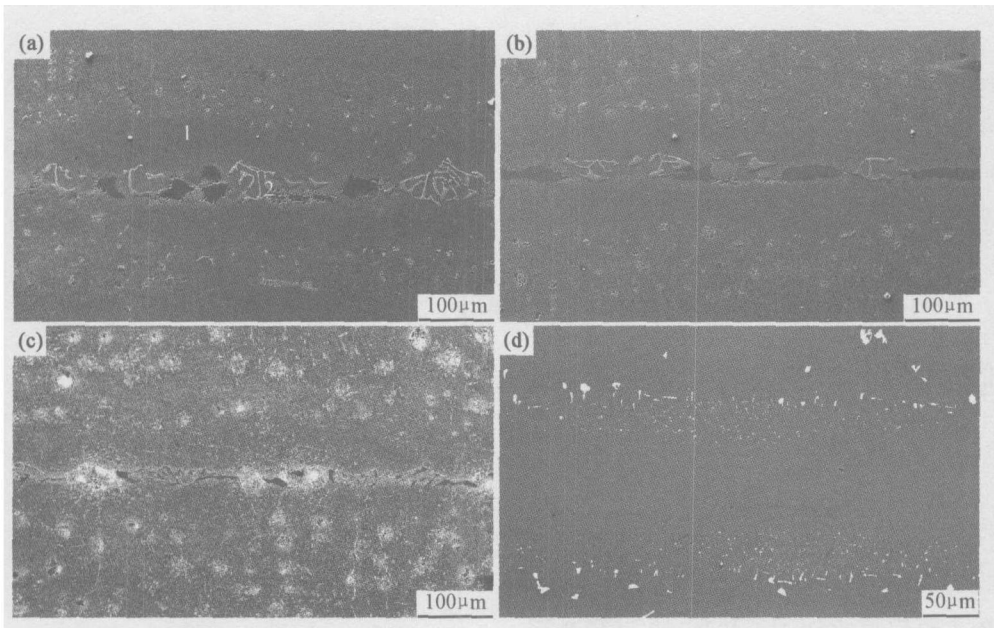


图 3 D1F 中间层合金在 1250℃保温 10min(a), 30min(b), 2h(c) 和 4h(d) 接头组织形貌

Fig. 3 SEM morphology of joint microstructure with D1F at 1250℃ for 10min(a), 30min(b), 2h(c) and 4h(d)

而 D1F 中间层合金不含 Al, Ti, 因此焊缝中央的花团状共晶  $\gamma + \gamma'$  相数量少, 尺寸小。但 D1F 中间层合金的 B 含量比 D1P 高, 由于 B 向母材扩散使近缝区母材的熔点下降, 会造成近缝区母材多处发生局部熔化。但从总体上看, 由于 D1F 中间层合金以箔带形式使用, 焊接间隙小, 中间层合金总量少, 且降熔元素扩散距离短, 因此焊缝组织成分更易于均匀化。

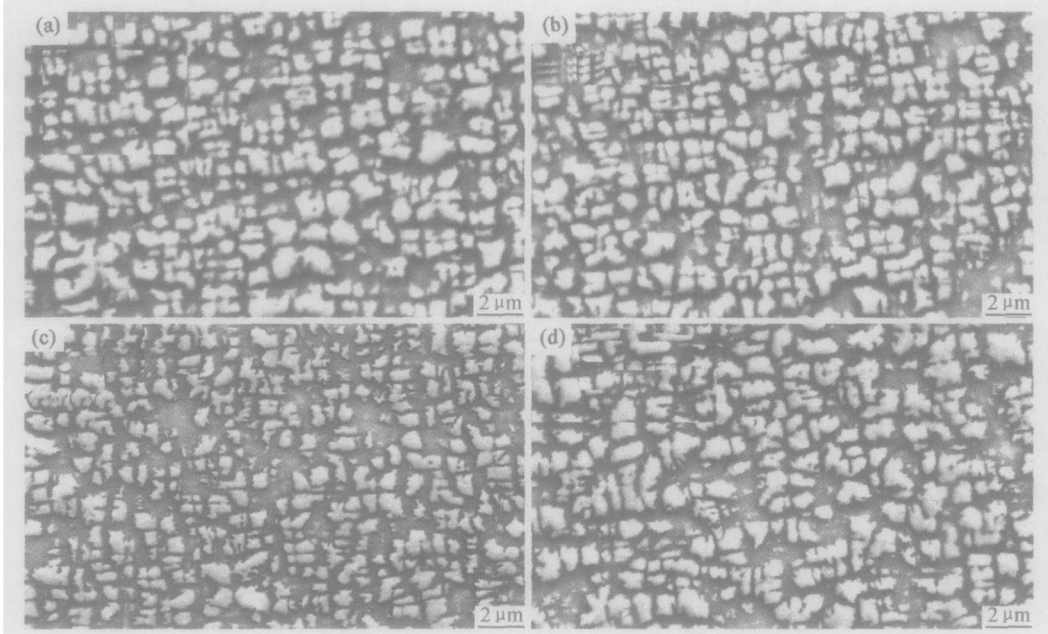


图 4 DD3 母材  $\gamma'$  相的形貌随保温时间延长的变化

(a) 10min; (b) 30min; (c) 2h; (d) 4h

Fig. 4 SEM morphology of microstructure evolutions of the  $\gamma'$  phases in DD3 substrate with increasing holding time

(a) 10min; (b) 30min; (c) 2h; (d) 4h

2.3 接头 980℃持久性能

采用两种中间层合金在 1250℃保温 4h 后炉冷连接的 DD3 单晶接头在 980℃, 不同应力水平下的持久寿命如表 2 所示。

根据文献[ 1], DD3 母材在 980℃的持久性能 $\sigma_{100h}$ 为 226MPa,  $\sigma_{200h}$ 为 201MPa, 从表 2 可以看出, 保温 4h 扩散连接, 应力取 DD3 母材的 70% (159MPa), D1F 中间层合金扩散焊接头持久寿命接近 200h, 且断裂发生在母材, 而 D1P 中间层合金扩散焊接头持久寿命为 79~ 147h, 即 D1F 中间层合金扩散焊接头性能明显优于 D1P 中间层合金。结合前述可知, 对于 D1P 中间层合金, 扩散焊接头组织不均匀, 经 4h 扩散接头中仍存在硼化物相, 且有大块光板  $\gamma'$  共晶存在, 而 D1F 中间层合金对应接头组织比较均匀, 扩散 4h 后接头中的硼化物相已经通过扩散而消除, 因此接头持久性能较高。此外, 在 159MPa 应力水平下约 195h 出现了断裂于母材的情况, 与 DD3 母材 980℃/200h/

2.2 短时扩散炉冷工艺对母材组织的影响

图 4 为 DD3 母材在 1250℃下保温 10, 30min, 2, 4h 后炉冷对应  $\gamma'$  相形貌的变化, 可以看出由于冷却速度较慢, 母材  $\gamma'$  相的尺寸较大, 约 1 $\mu$ m, 保温时间从 10min 延长至 4h, 尺寸变化不大, 但边界不规则, 趋于圆化。而正常空冷热处理后未经焊接热循环的母材  $\gamma'$  相尺寸约为 0.3 $\mu$ m 左右, 说明冷速是决定母材  $\gamma'$  相尺寸的关键因素, 而保温时间对母材  $\gamma'$  相尺寸影响并不显著。

201MPa 的性能水平相比, 说明由于扩散连接后为炉冷, 冷却速度慢, 母材析出的  $\gamma'$  相尺寸过大, 使母材的持久性能降低。

表 2 DD3 合金扩散连接接头在 980℃下的持久寿命

Table 2 Stress rupture life of DD3 diffusion bonded joints at 980℃

Filler metal	Bonding process	Stress/MPa	Life/h: min	Failure part
D1P, 0.1mm clearance	1250℃/4h, FC	136	184: 00	Bonding seam
		159	78: 50	Bonding seam
		159	147: 00	Bonding seam
D1F, 40 $\mu$ m in thickness	1250℃/4h, FC	159	76: 00	Bonding seam
		159	181: 30	No failure
		159	194: 30	Substrate

\* After bonding, all specimens were aged under the condition of 870℃/32h, AC.

高 20 倍以上。同时化学镀镍层具有仿形性好, 镀层均匀, 抗热裂性好等优点<sup>[6]</sup>。在进行喷涂时, 聚酰亚胺在高温时发生碳化, 聚合物分解产生的  $\text{CO}_2$  和  $\text{H}_2\text{O}$  成为气泡, 不断从基体溢出, 或残留在涂层中形成大的孔隙及缺陷, 严重影响了涂层与基体的结合。而化学镀镍层与镍铬合金层的存在, 在一定程度上减少了热量流入, 降低了基体材料的脱碳、分解现象, 喷涂过程中起到保护基体的作用。

镀层本身抗氧化性很强, 即使在热震过程中  $400^\circ\text{C}$  加热时发生由非晶态向晶态的转化, 但晶化的镀层在各种环境介质中的耐腐蚀性仍然远高于电镀铬和不锈钢, 而且随时间延长, 晶粒会不断长大, 抗腐蚀性回升, 相同条件下镀层的氧化比 C/PMR15 基体要小很多。

化学镀镍层与金属过渡层及基体间均存在微区的相互扩散, 无论镀层和基体, 还是镀层和金属粘结层, 其结合力都大于粘结层与基体的直接结合。而且随着热震次数增加, 扩散逐渐深入, 界面结合不但没有受到破坏, 反而有所上升, 大幅度提高涂层的抗热震能力, 涂层性能得到改善。

### 3 结论

(1) C/PMR15 上制得的 Ni-Ni/Cr-WC/Co 梯度涂层结构较为致密, 与基体结合较好, 涂层经 300 次热震后基本保持原貌。

(2) Pt-Ni/Cr-WC/Co 梯度涂层结构疏松, 与基体结合力差, 涂层经 273 次热震后完全脱落。

(3) C/PMR15 基体经化学镀镍后喷涂镍铬合金层和钴包碳化钨层效果较好, 主要是因为镀镍层与基体能够通过机械力和原子力结合, 也可以与镍铬合金层通过冶金结合、机械嵌合结合, 同时在缓解涂层应力方面起到重要作用, 从而有效提高了整个梯度涂层的结合强度。

#### 参考文献

- [1] 秦志敬. 耐高温聚酰亚胺的发展状况[J]. 材料工程, 1994, (4): 6-8.
- [2] 谭必恩, 益小苏. 航空发动机用 PMR 聚酰亚胺树脂基复合材料[J]. 航空材料学报, 2001, 21(3): 55-56.
- [3] BAO Y, GAWNE D T. Process modelling of thermal spray deposition of thermosets[J]. Surface Engineering, 1995, 11(3): 216-219.
- [4] LABRONICIM, ISHIDAH. Effect of degree of cure and fiber content on the mechanical and dynamic mechanical properties of carbon fiber reinforced PMR15 polyimide composites[J]. Polymer Composites, 1999, 20(4): 515-523.
- [5] 马壮, 吕广庶, 王富耻, 等. 铝基体化学镀镍对热障涂层抗热震性影响研究[J]. 材料工程, 2003, (1): 21-23.
- [6] YANG S Y, GAO S Q, LI J Z. Short carbon fiber resin forced PMR15 polyimide composites[J]. Society for the Advancement of Material and Process Engineering, 1998, 43(6): 181-189.
- [7] HIRTED. Mechanical properties of inter leaved PMR15 composites[J]. Adv Mater, 1995, 26(2): 48-53.

收稿日期: 2004-08-31; 修订日期: 2004-12-08

作者简介: 黄小婷(1976-), 女, 助教, 硕士研究生, 材料科学与工程专业, 联系地址: 北京理工大学材料科学与工程学院(100081)。

(上接第 6 页)

### 3 结论

(1) 以箔带形式使用的 D1F 中间层合金短时扩散连接接头组织较均匀, 而粉末形式的 D1P 中间层合金短时扩散连接接头从中间层合金流入处到流出端组织差别较大。

(2) 短时扩散 D1F 中间层合金扩散连接接头性能优于 D1P 中间层合金,  $1250^\circ\text{C}$  扩散 4h 对应接头性能超过母材相应性能的 70%。

(3) DD3 合金扩散连接后若采用炉冷的冷速, 会导致母材析出的  $\gamma'$  相尺寸过大, 降低母材的高温持久性能。

#### 参考文献

- [1] 中国航空材料手册编辑委员会. 中国航空材料手册, 第 2 卷 变形高温合金 铸造高温合金[M]. 第 2 版. 北京: 中国标准出版社, 2002. 792-806.
- [2] 李晓红, 钟群鹏, 曹春晓, 等. DD3 单晶合金对开叶片 TLP 扩散连接工艺探索研究[J]. 材料工程, 2003, (6): 3-6.
- [3] 李晓红, 钟群鹏, 曹春晓. DD3 单晶合金瞬时过渡液相扩散焊接接头组织和性能[J]. 航空材料学报, 2003, 23(2): 1-5.

收稿日期: 2004-11-29; 修订日期: 2005-03-23

作者简介: 李晓红(1962-), 男, 硕士, 研究员, 主要从事新型材料的焊接研究工作, 联系地址: 北京 81 信箱院办(100095)。