

Ni 基单晶高温合金取向测定方法的研究

A Study of Determination of Orientation of Ni based Single Crystal Superalloy

方建锋¹, 田志凌², 燕平³, 张晋远¹, 郑毅¹

(1 钢铁研究总院粉末冶金研究室, 北京 100081; 2 钢铁研究总院

结构材料研究所, 北京 100081; 3 钢铁研究总院高温材料研究所, 北京 100081)

FANG Jian-feng¹, TIAN Zhi-ling², YAN Ping³, ZHANG Jin-yuan¹, ZHENG Yi¹

(1 Department of Powder Metallurgy, Central Iron and

Steel Research Institute, Beijing 100081, China; 2 Institute for

Structural Materials, Central Iron and Steel Research Institute, Beijing 100081, China;

3 Department of superalloys, Central Iron and Steel Research Institute, Beijing 100081, China)

摘要: 论述了在普通的多晶衍射仪上, 利用固定 2θ 角, 进行 Ω 扫描的非对称 X 射线衍射方法来测定 Ni 基单晶高温合金 [001] 取向的原理, 对三个具有不同取向角度的 Ni 基单晶高温合金进行了取向测定, 讨论了该方法可测试的单晶体偏差角的范围和进一步扩大测试范围的可能解决方法, 以及测试中应注意的问题。利用带有偏差角的非对称扫描方法得到了单晶的 (002) 晶面的衍射线, 讨论了得到该衍射线的意义。

关键词: Ni 基单晶, 取向测定, 非对称 X 射线衍射

中图分类号: TG115.22⁺2 文献标识码: A 文章编号: 1001-4381(2008)03-0049-05

Abstract: A principle for determining the orientation of [001] crystal direction of Ni-based single crystal superalloy has been explained by asymmetrical X-ray diffraction technique in common diffractometers. It is based on Ω (which is the angle between the incidence X-ray beam and the surface of the sample tested) scanning while the 2θ angle keeps constant. Three [001]-oriented Ni-base superalloys which have different orientation angles have been tested by the method developed in this work. The range of orientation angle in Ni-based single crystal which can be tested by this method and the possible way to extend the range are discussed. The diffraction line of (002) crystal plane of Ni-based single crystal has been attained by asymmetrical diffraction technique with certain offset angle. The significance to attain the diffraction line is evaluated.

Key words: Ni-based single crystal, orientation determination, asymmetrical X-ray diffraction

在航空工业中, 自 20 世纪 60 年代开始应用定向结晶技术制备涡轮叶片, 得到的柱状晶叶片较先前的等轴晶叶片性能有很大提高, 采用柱状晶的目的是想尽可能地消除横向晶界, 因为横向晶界是涡轮叶片的薄弱环节。定向凝固过程中 $\langle 001 \rangle$ 方向择优生长, 形成柱状晶组织, 基本消除了垂直于主应力轴的横向晶界, 明显提高了涡轮叶片的纵向力学性能。随着合金设计理论不断发展, 成份的不断改进, 工艺技术的持续进步, 人们又研制出了耐高温能力更高的单晶高温合金。目前, 几乎所有的先进航空发动机都采用了单晶高温合金^[1,2]。

大量的实验研究和理论分析表明, [001] 取向的 Ni 基单晶高温合金具有最优的综合性能^[3-5], 故目前

的单晶涡轮叶片均采用 [001] 取向。但由于制造工艺条件的限制, 很难得到十分精确的 [001] 取向的单晶叶片, [001] 取向多少会偏离人们预定的方向, 实际生产中控制 [001] 取向偏离轴向一定角度 (如 10° 或 15°) 以内即为取向合格产品; 另外, [001] 取向角度的大小对材料的性能也有重要的影响^[6,7], 这使得对 [001] 取向偏离角度的测定变得十分重要。目前常用的测定方法是 X 射线 Laue 背衍射法、四圆衍射仪法等。Laue 法过程复杂、周期长, 不能满足大量单晶取向检测的需要; 四圆衍射仪法虽然是一种先进快速的单晶取向测定方法, 但这种仪器昂贵, 检测费用也很高。还有研究者开发出了基于金相图像的迹线分析法, 来测定高温合金的取向^[8,9], 但该方法步骤较多, 并需要专门的分

析程序。鉴于这种情况, 以及目前的多晶 X 射线衍射仪向多功能的方向发展, 已有在多晶衍射仪上测定单晶取向方法的研究, 如在文献[10, 11]中, 研究了利用 θ 扫描旋转(样品)法来进行单晶取向的测定, 该方法的不足之处是: 第一, 需要样品台能绕其表面法线快速的旋转(在扫描的每一步间隔之内, 样品要沿其表面法线方向转一周), 对某些设备可能不具备这样的功能; 第二, 其得到的衍射峰是由阶梯线组成的, 而不是通常的平滑的曲线。应该说如果在衍射仪中有织构分析附件或有三维旋转的样品台, 则很容易进行单晶取向的测定工作, 但如果在没有这些功能的多晶衍射仪上进行单晶取向测定, 则并不是一种常规的测定方法, 测定方法与多晶衍射仪本身的功能及配置有很大的关系。也就是说在不同的衍射仪上, 测定的方法是不相同, 但原理是相同的, 即在单晶中我们所关心的某一晶面上发生了 Bragg 衍射。

本文阐述了在没有织构分析附件和三维旋转样品台的多晶衍射仪上, 进行 Ni 基单晶高温合金取向测定的原理, 对三种不同取向的 Ni 基单晶高温合金在本实验中所用的多晶衍射仪的配置下进行了取向测定, 并讨论了该方法可测试的单晶偏差角的范围和进一步扩大测试范围的可能解决方法, 以及测试中应注意的问题。

1 测定原理

所谓单晶取向是指单晶中我们所关心的晶面或晶向与试样外形某一方向的夹角。通过选晶法制取的 Ni 基单晶高温合金为 [001] 取向的单晶。对于用来测定单晶高温合金力学性能的试样(为圆柱体试棒)来说, 取向测定即测定单晶 [001] 晶向偏离圆柱体端面法线(试棒轴线)的角度。由于 Ni 基高温合金为面心立方结构, 其中 [001] 晶向也是 (001) 晶面的法线方向, 这样, 当测定了 (001) 晶面(衍射实验中得到是 (002) 晶面的衍射线) 偏离圆柱体轴线的方向, 也就得到了 [001] 晶向偏离的角度。

如果将单晶高温合金圆柱体试样放入多晶衍射仪中进行普通的衍射实验, 得不到任何衍射峰, 因为普通的衍射实验得到的是那些平行于样品表面的晶面的衍射信息, 如图 1 中晶粒 1 的衍射信息, 但在单晶高温合金中其晶面一般不平行于圆柱体的端面, 即在图 1 中只有晶粒 2, 不存在晶粒 1。但当进行非对称的衍射实验, 即图 1 中虚线所示的衍射情况, 晶粒 2 可以产生衍射信息。为了能得到衍射信息, 首先要将试样沿其端面法线(即 Z 轴方向)进行旋转, 以使 [001] 晶向(也就是 (001) 晶面的法线方向) 处于衍射平面, 如图 2 所示,

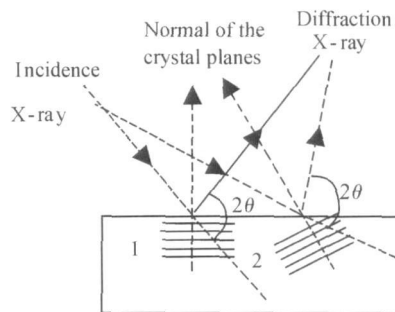


图 1 不同取向的晶面发生衍射的位置

Fig. 1 Diffraction from different oriented crystal planes

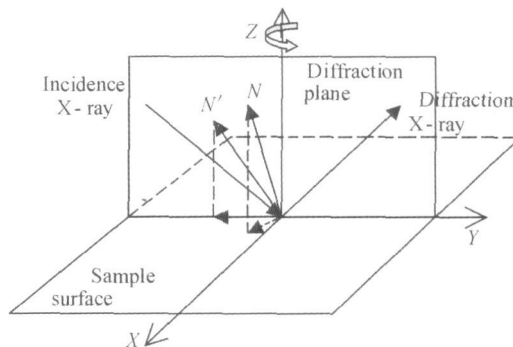


图 2 衍射平面、样品表面及衍射晶面法线相对位置图

Fig. 2 Sketch of diffraction plane, sample surface and the normal of diffraction crystal plane

其中的 N, N' 表示 [001] 晶面的法线。一开始 [001] 晶向处于空间某一方向, 该方向并不一定处于衍射平面内, 如法线 N 的方向。当经过一定的旋转后, [001] 晶向转到 N' 位置, 即处于衍射平面内, 这时进行非对称的扫描, 即保持 2θ 角不变(即衍射线和入射线的夹角不变), 固定在该单晶合金 (002) 晶面的衍射角度, 而使入射角(在本实验中称为 Ω 角, 即入射线与样品表面的夹角)在一定范围内扫描(对于 θ/θ 扫描模式的衍射仪, 此时探测器则以与 X 射线管相反的方向扫描, 以保持 2θ 角不变; 对于 $\theta/2\theta$ 扫描模式的衍射仪, 则是 X 射线管和探测器均固定不动, 而样品进行 θ 扫描), 当入射角扫描到一定的位置, 即入射线和衍射线对称地处于该单晶的 (002) 晶面法线的两边时, 即满足了布拉格衍射的条件, 该晶面发生衍射。根据得到衍射峰时入射角的角度, 记为 Ω 角, 以及该晶面发生衍射的 2θ 角, 即可计算出该晶面的偏离角 δ (参考图 1):

$$\begin{aligned} \delta &= 2\theta/2 - \Omega & (\text{当 } \Omega < 2\theta/2) \\ \text{或 } \delta &= \Omega - 2\theta/2 & (\text{当 } \Omega > 2\theta/2) \end{aligned} \quad (1)$$

这样就得到了该晶面(及相应晶向)偏离圆柱体端面法线(即圆柱体轴线)的角度, 即得到了该单晶体的

取向。

应该说这样得到的衍射峰是该晶面的摇摆曲线,而不是该晶面真实的衍射线,为了得到该晶面的衍射线,可以进行固定入射线和衍射线之间偏差角度的扫描,偏差角度应为 δ , 这样即可得到该晶面的衍射线。从该衍射线的位置(2 θ 角度)可以判断该晶面确为 Ni 基单晶高温合金(002)晶面的衍射线,还可以计算出该晶体近似的点阵常数;另外,衍射线型中包含了丰富的晶体微观结构的信息。通过该衍射线的线型进行分析,可以得到该单晶许多微观结构的信息,比如,当单晶结晶很完整时,其衍射线将很锋锐,反之,其衍射线将宽化。

2 实验材料及设备

利用选晶法得到三种具有不同[001]取向偏差角的铸态 Ni 基单晶高温合金试棒,其直径为 8mm,长度为 40mm,其末端直径约 3mm,将末端用线切割切成平面,并进行腐蚀,作为进行取向分析的平面。

本实验所用衍射仪为荷兰 Panalytical 公司生产的 X'Pert Pro MPD 衍射仪,配有多功能样品台,该样品台不能旋转,但可以放较大的样品。Cu 靶,工作电流电压分别为 40mA, 40kV。

3 实验结果及讨论

3.1 晶体取向的测定

图 3 是 1[#] Ni 基单晶的实验曲线,图 4、5 分别为 2[#]、3[#] Ni 基单晶高温合金的实验曲线,根据(1)式,各单晶取向的计算结果列于表 1 中。

图 3 是固定 2 θ 角(50.8°,为 Ni₃Al(002)晶面的 2 θ 角)进行 Ω 扫描得到的实验曲线。根据第 1 部分中所述的原理,为了避免文献[10, 11]方法中的阶梯峰,可以不让样品绕其法线方向连续转动,而是按如下步骤进行:首先对样品在一定 Ω 角范围内进行一次固定 2 θ 角的 Ω 扫描,如果没有衍射峰,如图 3 中曲线 1,则将样品沿其端面法线方向转动一定角度后(如果样品台不能旋转,可以人为转动样品),再扫描,直到有衍射峰出现,如图 3 中曲线 2、3。一开始样品转动的角度可以很大,比如 45°,扫描的速度也可以很快,目的是能得到一个衍射峰;因为单晶的衍射线很强,并不是一定要衍射晶面的法线完全处于衍射平面时,才有衍射线出现,而是当该晶面的法线靠近衍射平面时即可出现衍射线,只是此时的衍射线强度较低。当得到衍射峰后就可以以较小的角度来转动样品,并扫描,目的是得到一个最强的衍射峰,如图 5 中曲线

4,当得到最强的衍射峰时,则说明此时衍射晶面的法线方向恰好处于衍射平面内,然后,再以较慢的速度进行一次固定 2 θ 角的 Ω 扫描,以得到衍射峰准确的 Ω 角,从而得到准确的晶体取向。

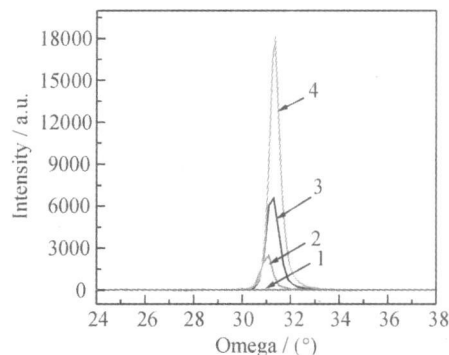


图 3 1[#]样品沿其端面法线旋转不同角度时(002)晶面的摇摆曲线

Fig. 3 Rocking curves of (002) crystal plane at different rotating angles along the normal of surface of 1[#] sample

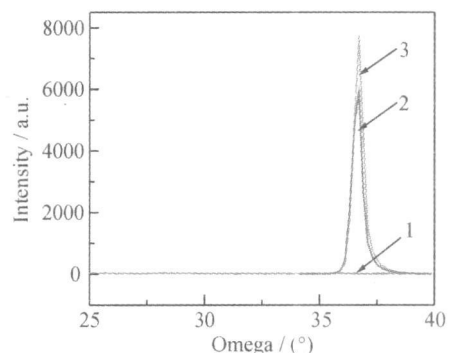


图 4 2[#]样品沿其端面法线旋转不同角度时(002)晶面的摇摆曲线

Fig. 4 Rocking curves of (002) crystal plane at different rotating angles along the normal of surface of 2[#] sample

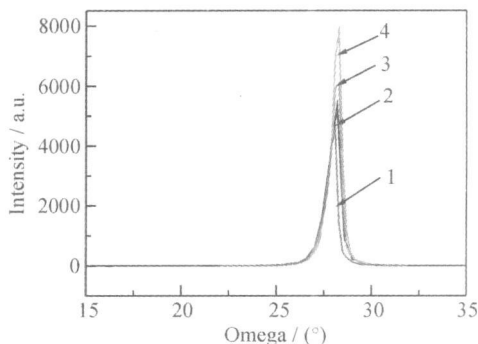


图 5 3[#]样品沿其端面法线旋转不同角度时(002)晶面的摇摆曲线

Fig. 5 Rocking curves of (002) crystal plane at different rotating angles along the normal of surface of 3[#] sample

表 1 三个 Ni 基单晶高温合金的取向测定结果

Table 1 Results of orientation determination of three [001]-oriented Ni-based single crystal superalloys

| Samples | 1# | 2# | 3# |
|--------------------------|------|------|------|
| Omega angles/(°) | 31.3 | 36.7 | 28.1 |
| Orientation angles δ/(°) | 5.9 | 11.3 | 2.7 |

3.2 (002) 晶面衍射线的获取

在 3.1 中得到的衍射峰实际上是单晶 (002) 晶面的摇摆曲线, 而不是该晶面常规意义上的衍射线, 为了得到该晶面的衍射线, 需要进行带有偏差角 (offset 角) 模式的扫描, 在该仪器中其扫描模式是 2Theta-Omega 扫描, 也就是在扫描中, 2θ/2 角和 Omega 角之间始终保持一固定的偏差角度, 而不像常规的扫描, 其中 Omega 角始终等于 2θ/2 角, 该偏差角应等于该晶面的取向角度 δ。图 6 是 1# 样品带有不同偏差角度的扫描曲线, 从该图可以看出: 第一, 该衍射峰的位置在 2θ = 50.8°, 确为该 Ni 基单晶的 (002) 晶面的衍射线, 第二, 只有当偏差角等于该晶面的取向角度 δ, 即 5.9° 时其衍射峰最强, 而偏差角小于或大于该角度时, 衍射峰均会降低, 如图 6 中的同时给出偏差角 (offset 角) 为 5.7° 和 6.1° 时该晶面的衍射线。这也说明了该方法测定的晶体取向偏差角度具有很高的准确度。得到该晶面衍射线的重要性在于衍射线型中包含了丰富的晶体微观结构的信息。

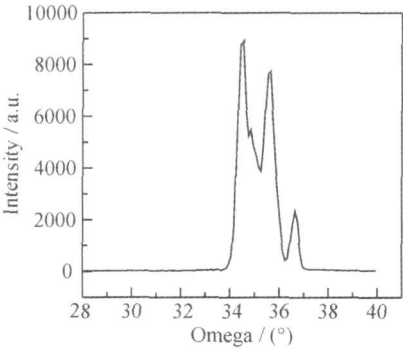


图 6 1# 样品 (002) 晶面在不同偏差角的衍射线
Fig. 6 Diffraction lines of (002) crystal planes of 1# sample at different offset angles

3.3 该方法测定单晶取向的精度

本实验中衍射仪的角度精度很高, 测角仪的精度可以达到 0.001°, 所以由于衍射仪产生的单晶取向角度测定的误差很小。误差主要来自于放置样品时, 样品的轴线是否能保持垂直于水平面, 如果样品的放置不当, 使得其轴线对铅锤方向有很小的偏离, 则会使测量的偏差角度产生误差, 但只要仔细操作, 该误差对于高温合金取向的测定来说很小, 可以忽略。

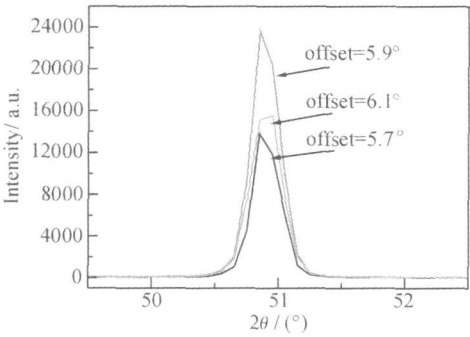


图 7 3 个不同取向的晶粒 (002) 晶面的摇摆曲线
Fig. 7 Rocking curves of (002) crystal planes of three different oriented grains

3.4 该方法的测试范围

由第 1 部分中测试原理的叙述中可以看出, 该方法所能测试的最大的单晶取向偏差角度 δ 应小于 2θ/2 (2θ 角为所测晶面的衍射角), 因为要满足 Omega 大于 0° 的条件, 也就是说, 如果单晶的取向偏差角度大于 2θ/2 度, 则用该方法就不能测出其偏差角度的大小。如果要扩大该方法可测量的单晶偏差角的范围, 可以采用更长波长的靶, 如采用 Co 靶, 则根据布拉格衍射方程: 2d sinθ = λ。由于单晶某一晶面的面间距 d 值不变, 由于波长变大, 其衍射线的位置 2θ 角就会变大, 从而可以测量的最大的单晶取向度 δ 的范围也就变大。

3.5 其他几个相关问题

(1) 如果该单晶的取向不是 [001] 取向, 则转一周也得不到衍射峰, 则应考虑其它晶面 (如 (011) 或 (111) 晶面) 的衍射线, 也就是说要固定 2θ 角在其它晶面发生衍射时的 2θ 角的位置进行 Omega 扫描, 这是该方法的一个缺点。

(2) 如果在单晶中有杂晶, 由于该方法中照射的面积较大, 可以发现, 如图 7 中, 在 Omega 扫描时有三个峰出现, 这说明在该单晶中有取向不同的三种晶粒, 但劳厄法由于其点光源的直径仅有 0.5~1.0mm, 可能发现不了。

(3) 单晶的衍射线很强, 在实验中当得到衍射峰后, 要加入适当的衰减片或降低衍射仪的工作电流, 以避免损坏探测器。

4 结论

(1) 阐述了在普通的衍射仪上 (没有织构附件和三维旋转样品台) 进行单晶取向测定的原理, 并对三个 [001] 取向的 Ni 基单晶高温合金进行了取向测定。

(2) 利用带有偏差角 (offset 角) 的扫描模式, 得到

了Ni基单晶高温合金(002)晶面的衍射线。得到该晶面衍射线的重要性在于通过对该衍射线型的分析,可以得到单晶的微观结构信息。

(3)讨论了该方法可以测定的单晶的取向角度的范围,以及扩大该范围的方法。

参考文献

- [1] 陈荣章,王罗宝,李建华. 铸造高温合金发展的回顾与展望[J]. 航空材料学报, 2000, 20(1): 55- 61.
- [2] 孟南. 定向凝固及单晶高温合金的发展与研究[J]. 金属材料研究, 2005, 31(3): 46- 54.
- [3] 李影, 苏彬. DD6 单晶合金的高温低周疲劳机制[J]. 航空动力学报, 2003, 18(6): 732- 736.
- [4] SASS V, GLATZEL U, FELLER-KNIEPMEIER M. Anisotropic Creep Properties of the Nickel-Base Superalloy CMSX-4[J]. Acta mater. 1996, 44(5): 1967- 1977.
- [5] OSTERLE W, BETTGE D, FEDELICH B, et al. Modeling the Orientation and Direction Dependence of The Critical Resolved Shear Stress of Nickel-Base Superalloy Single Crystals[J]. Acta mater. 2000, 48: 689- 700.

(上接第31页)

浇口方案1和浇口方案2,充模时间在在0.6~0.8s左右;对于浇口方案3-浇口方案5,充模时间在0.2s左右。)

4 结论

(1)通过模拟,可以直观的得到熔体的充模过程,观察微制件熔接缝与浇注系统之间的关系,以防止熔接缝对微制件性能的影响。

(2)浇注系统设计对熔接缝数量和形成过程有影响,但是,对于微制件成型最重要的是浇注系统凝料的清理,所以浇注系统设计应该方便清理。

(3)成型温度的应该高于传统的成型温度。为保证聚合物熔体充模的顺利进行,成型温度设置较高,从而使熔体在较低的粘度下充模,保证制品质量,也有利于熔接缝的质量改进。

(4)模具温度设定高,模具温度高于 T_g 以上。这是微注射成型于传统注射成型最重要的区别。因此,微注射的模具加热和模具冷却系统的设计是非常重要的设计。要提供成型过程中模具的升温 and 冷却。

参考文献

- [1] GEIGER M, KLEINER M, ECKSTEIN R, et al. Microforming [J]. Annals of the CIRP, 2001 50(2): 445- 462.
- [2] MICHAELI W, SPENNEAMAN A. A new injection molding technology for micro parts [J]. Journal of Polymer Engineering,

- [6] GUNTURI S S K, MACLACHLAN D W, KNOWLES D M. Anisotropic creep in CMSX-4 in orientations distant from <001> [J]. Materials Science and Engineering 2000, A289: 289- 298.
- [7] 岳珠峰, 吕震宙, 杨治国, 等. 晶体取向的偏差和随机性对镍基单晶叶片强度与蠕变寿命的影响[J]. 航空动力学报, 2003, 18(4): 477- 480.
- [8] 任遥遥, 彭志方, 梅青松, 等. 根据枝晶优先生长方向计算铸造合金的晶体位向[J]. 材料科学与工程, 2000, 18(4): 78- 87.
- [9] 任遥遥, 彭志方, 于洋洋. 一种测算单晶铸造合金取向的程序及其应用[J]. 理化检验-物理分册, 2003, 39(5): 240- 245.
- [10] 马胜利, 郭振琪, 井晓天. $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 单晶体的X射线衍射仪分析[J]. 西安理工大学学报, 1996, 12(4): 303- 306.
- [11] 郭振琪, 付涛, 王宁, 等. 一种测定晶体取向及其分布的简便XRD方法[J]. 无机材料学报, 2002, 17(3): 460- 464.

收稿日期: 2007-07-09; 修订日期: 2007-11-10

作者简介: 方建锋(1975—), 男, 工程师, 硕士, 主要从事材料结构的X射线分析工作, 联系地址: 钢铁研究总院 北京海淀区学院南路76号(100081)。E-mail: jf.fang@263.net

2001, 21(2-3): 87- 98.

- [3] HO C M, TAI Y C. Micro-electro-mechanical systems (MEMS) and fluid flows [J]. Annual Review of Fluid Mechanics, 1998 30: 579- 612.
- [4] HILL S D J. Computer modeling for micro-injection molding[R]. LIGA News Third Issue, 1995, 9.
- [5] SHEN Y K, WU W Y. An analysis of the three dimensional micro-injection mold[J]. International Communications in Heat and Mass Transfer, 2002, 29(3): 423- 431.
- [6] YAO D, KIM B. Simulation of the filling process in micro channels for polymer material[J]. Journal of Micromechanics and Microengineering, 2002, 12: 604- 610.
- [7] PIOTTER V, MUELLER K. Performance and simulation of thermoplastic micro injection molding[J]. Microsystem Technologies, 2002, 8: 387- 390.
- [8] HU B H, TONG K K, NIU X P, et al. Design and optimization of runner and gating systems for the die casting of thin walled magnesium telecommunication parts through numerical simulation[J]. Journal of Materials Processing Technology, 2000, 105: 128- 133.
- [9] 唐志玉. 塑料模流变学设计[M]. 北京: 国防工业出版社, 1991. 5- 8.

基金项目: 江苏省自然科学基金【创新人才】(BK2006551)

收稿日期: 2007-04-06; 修订日期: 2007-08-15

作者简介: 戴亚春(1969—), 男, 硕士, 研究方向: 模具 CAD/CAE/CAM、模具优化设计、微成形研究等. 联系地址: 江苏大学机械学院机械系(212013)。E-mail: yc69@tom.com