激光立体成形 Rene88DT 镍基高温合金沉积态组织研究

杨海欧[1a,1b]，赵宇凡[1a,1b]，许建军[1a,1b]，林鑫[1a,1b]，黄卫东[1a,1b]，侯运安[2]

（1. 西北工业大学 a. 凝固技术国家重点实验室；b. 金属高性能增材制造与创新设计工业和信息化部重点实验室，西安 710072；2. 中国航发西安航空发动机有限公司计量中心，西安 710021）

摘要：目的 基于激光立体成形（Laser Solid Forming, LSF）过程中所存在的近快速凝固特性，以 Rene88DT 合金为研究对象，考察激光立体成形 Rene88DT 沉积态微观组织特征和相形成规律。**方法** 通过 LSF 技术制备 Rene88DT 镍基高温合金单道沉积试样，采用光学显微镜（OM）和扫描电子显微镜（SEM）对组织进行观察，并用能谱仪（EDS）对试样中的析出相及微区成分进行分析。**结果** 激光立体成形 Rene88DT 合金沉积态组织主要由沿趋于平行沉积方向生长的 γ 柱状晶组成，由于枝晶偏析的存在，以富 Nb 为主的块状 MC 碳化物以及板条状 η（Ni_3Ti）相于枝晶间区域析出。随着沉积高度的增加，一次枝晶臂间距有所增大，二次枝晶臂逐渐发达，同时，γ'相体积分数和尺寸逐渐减小，沉积层的硬度相应降低。**结论** 尽管激光立体成形熔池凝固已属于近快速凝固范围，熔池凝固过程中，溶质原子同样易于在晶界处形成偏聚，导致晶界弱化，在成形热应力作用下易形成沿晶裂纹。

关键词：激光立体成形（LSF）；增材制造；Rene88DT 合金；组织；相组成

DOI：10.3969/j.issn.1674-6457.2019.04.002

中图分类号：TG146.1 **文献标识码：**A **文章编号：**1674-6457(2019)04-0009-06

AS-Deposited Microstructures of Rene88DT Nickel-base Superalloy by Laser Solid Forming

YANG Hai-ou[1a,1b], *ZHAO Yu-fan*[1a,1b], *XU Jian-jun*[1a,1b], *LIN Xin*[1a,1b], *HUANG Wei-dong*[1a,1b], *HOU Yun-an*[2]

(1. a. State Key Laboratory of Solidification Processing; b. Key Laboratory of Metal High Performance Additive Manufacturing and Innovative Design, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China;
2. Metrology Center, AECC Xi'an Aero-Engine Company Limited, Xi'an 710021, China)

ABSTRACT: Based on the near-fast solidification characteristics in laser solid forming (LSF), this paper aims to investigate the characteristic of microstructures and phase constitution of as-deposited Rene88DT alloy by LSF. As-deposited Rene88DT nickel-base superalloy samples were fabricated by LSF; their microstructures were observed with optical microscope (OM) and scanning electron microscope (SEM); and the precipitated phase and micro-region composition in the specimen were analyzed with energy spectrometer (EDS). It was found that the as-deposited microstructure mainly consisted of predominant γ columnar dendrites epitaxially growing along the deposition direction. The existence of the micro-segregation made the block MC carbide that was mainly rich in Nb and lath-shaped η (Ni_3Ti) phase precipitated from the interdendritic regions. With the increase of the height of samples made by LSF, the primary dendrite arm spacing (λ_1) increased to some extent, and the secondary arms were gradually developed. The volume fraction and size of phase γ' de-

收稿日期：2019-06-28
基金项目：国家重点研发计划（2018YFB1105804）；民用飞机专项科研（MJ-2017-G-63）
作者简介：杨海欧（1976—），男，博士，副研究员，主要研究方向为激光增材制造与修复再制造。

creased gradually and the hardness of the deposited layer decreased accordingly. Although LSF melt pool solidification has been in the near-fast solidification range, the segregation of solute atoms at grain boundaries during LSF might led to grain-boundary weakness. Therefore, the intergranular crack can form in the presence of thermal stress in LSF.

KEY WORDS: laser solid forming (LSF); additive manufacturing; Rene88DT alloy; microstructure; phases constitution

激光立体成形（LSF）是将激光熔覆与快速原型技术结合的一种新型金属近净成形增材制造技术，可制备高致密、高性能以及复杂几何形状的金属零部件[1]。在高能激光束扫描过程中，因熔池尺寸比较小，因此金属凝固的温度梯度以及凝固速率都比较高，可以获得非平衡凝固组织，并且只要保证不同部位沉积的金属粉末化学成分相同，合金化元素的宏观偏析将很大程度上得到抑制[2]。由于高温合金包含多种易偏析元素，所以激光立体成形技术被认为是一种制备高温合金零部件的有效途径，并且受到了越来越多人的重视。

Rene88DT 镍基高温合金是 γ' 相沉淀强化 Ni-Cr-Co 型合金，Al, Ti, W 含量相对较高，使用温度为 750 ℃，具有很高的高温强度和优异的热腐蚀抗性。赵晓明研究了激光立体成形 Rene88DT 合金的组织与性能，发现其裂纹敏感性较高，在成形过程中的热应力作用下易产生微裂纹[3]。而要理解成形过程中微裂纹的形成机理，准确把握 Rene88DT 镍基高温合金激光立体成形过程的组织形成和相的析出特征就显得尤为重要。由于在熔池的近快速非平衡凝固条件下很容易产生亚稳相等非平衡组织，对于成分复杂的 Rene88DT 合金来说，在制备过程中，后续激光熔覆沉积层对已成形部分的循环加热，还可能涉及复杂的固态相变过程。为此，文中采用激光立体成形技术制备了 Rene88DT 镍基高温合金，并对其沉积态组织及相组成特征进行了较为全面的研究，以期为准确理解 Rene88DT 合金激光立体成形过程中的组织及相演化行为奠定基础。

1 实验

激光立体成形 Rene88DT 镍基高温合金的制备是在西北工业大学凝固技术国家重点实验室建立的 LSF-IIIB 型激光立体成形系统上完成的。该系统由 4 kW 的 CO_2 激光器、五轴联动数控工作台、DPSF-2 型送粉器、同轴送粉喷嘴、气氛保护箱等部分组成。激光立体成形工艺参数见表 1。Rene88DT 合金球形粉末粒径约为 150 μm。基材采用 1Crl8Ni9Ti 奥氏体不锈钢。Rene88DT 合金单道成形试样尺寸为 40 mm×3 mm×10 mm，采用电感耦合等离子体发光光谱分析（ICP）测量成形件的成分见表 2。

将单道沉积试样沿垂直于光束扫描方向，用电火花线切割成 10 mm×3 mm×5 mm 的小块试样，并制备成金相试样。试样经 15 mL HF+35 mL HNO_3+75 mL H_2O 溶液腐蚀，用于光学显微镜观察；经 12 mL H_3PO_4+40 mL HNO_3+48 mL H_2SO_4 溶液电解腐蚀，用于扫描电镜观察。采用 OLYMPUS-GX71 型光学显微镜（OM）和 JSM-6460 型场发射扫描电子显微镜（SEM）对组织进行观察，并用能谱仪（EDS）对试样中的析出相及微区成分进行分析，采用 Duramin-A300 维氏硬度计进行硬度测量。

2 结果与讨论

2.1 Rene88DT 合金沉积态微观组织特征

激光立体成形熔池凝固过程中，冷却速率快、温度梯度高，主热流方向基本垂直于基材表面，趋于平行沉积方向。由于熔池中枝晶凝固过程中枝晶臂生长方向会选择与热流方向最为接近的择优取向方向生长[4]，Rene88DT 合金枝晶的择优取向为〈100〉晶向族，这使得激光立体成形 Rene88DT 合金的沉积态组织均具有典型趋于平行沉积方向的定向外延生长柱状晶凝固特征，如图 1 所示。

表 1 激光立体成形工艺参数

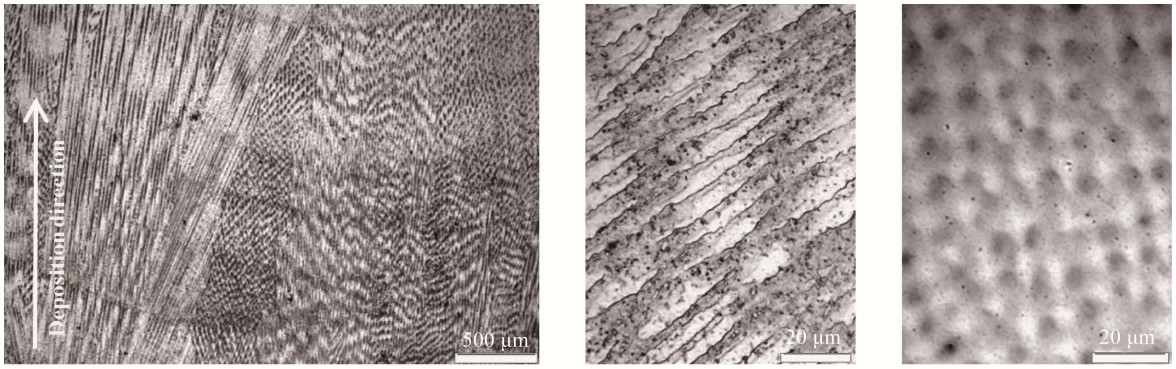
Tab.1 Processing parameters of LSF

激光功率/kW	扫描速度/(mm·s^{-1})	送粉量/(g·min^{-1})	保护气体流量/(L·min^{-1})	光斑直径/mm	搭接率/%	层厚/mm
2 ~ 2.2	6 ~ 8	8 ~ 12	6	3	25 ~ 40	0.3

表 2 激光立体成形 Rene88DT 沉积态化学成分（质量分数）

Tab.2 Chemical compositions of Rene88DT alloy by LSF (mass fraction) %

Cr	Al	Ti	W	Mo	Fe	C	Nb	Co	Ni
16.88	2.232	3.449	3.43	3.92	0.168	0.029	0.58	14.56	52.58

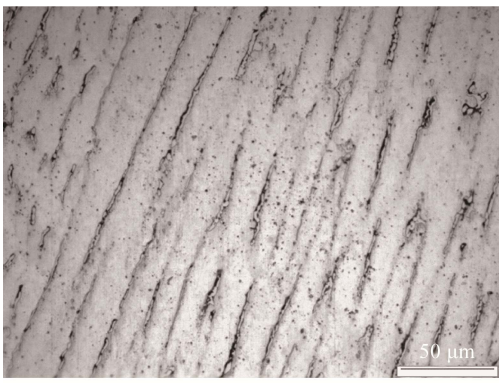


a 定向外延生长特征　　b 垂直于扫描方向　　c 垂直于沉积方向

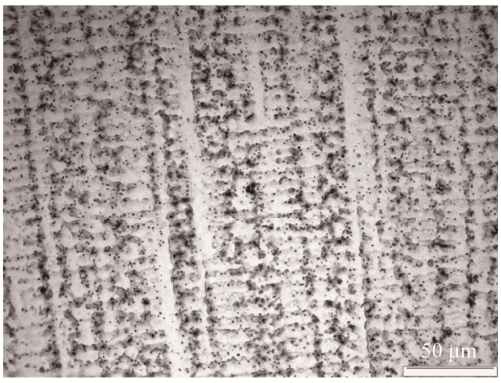
图 1　激光立体成形 Rene88DT 合金沉积态光学金相组织

Fig.1 Optic microscopy images of as-deposited LSFRene88DT alloy by LSF

分别测量单道试样底部、中部及顶部的平均一次枝晶臂间距，结果为 13.21, 18.46, 19.87 μm。由枝晶生长理论可知，平均一次枝晶臂间距（λ_1）与凝固速率（v）以及温度梯度（G）之间存在关系[5]：$\lambda_1 \propto v^{-a}G^{-b}$，$a$ 和 b 为与合金系相关的常数。随着试样沉积高度的增加，激光循环热积累效应使得基材和试样的温度逐渐升高，熔池中的温度梯度减小、冷却速率下降，所以，试样中部的平均一次枝晶间距较底部有所增长。但是经最初几层沉积后，基材和沉积层的吸放热达到平衡，此时熔池的冷却速率达到稳定状态，这使得从中部到顶部的一次枝晶间距变化很小。另外如图 2 所示，在试样底部区域，由于熔池凝固温度梯度（G）较高，组织基本呈胞状枝晶生长，二次枝晶臂受到抑制，而试样顶部由于热积累作用，熔池温度梯度低于底部，同时冷却速率相比熔池底部有所减小，使得枝晶的二次臂将有更长的凝固时间进行生长[6]，因而形成二次枝晶臂相对发达的枝晶组织。



a 底部



b 顶部

图 2　激光立体成形 Rene88DT 合金沉积态 γ 枝晶组织特征

Fig.2 γ dendrite structure of the as-deposited Rene88DT alloy sample by LSF

2.2　Rene88DT 合金沉积态相组成

图 3 所示为 X 射线衍射分析图谱，可见激光立体成形 Rene88DT 合金沉积态主要由 γ 奥氏体相组成，而图 3 中未发现其他相的衍射峰，但实际上，沉积态组织中还存在其他第二相，如图 4 所示。这主要是由于 γ 基体相的体积分数大，同时定向外延生长也使得 γ 基体相的取向性较强，而其他相体积分数较低，衍射峰强度与之相比则过于弱小而无法被观察到[7]。

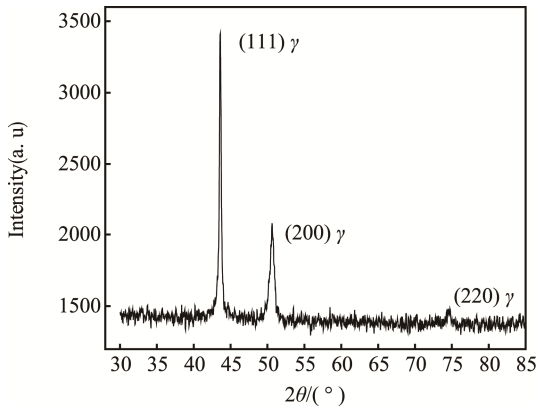
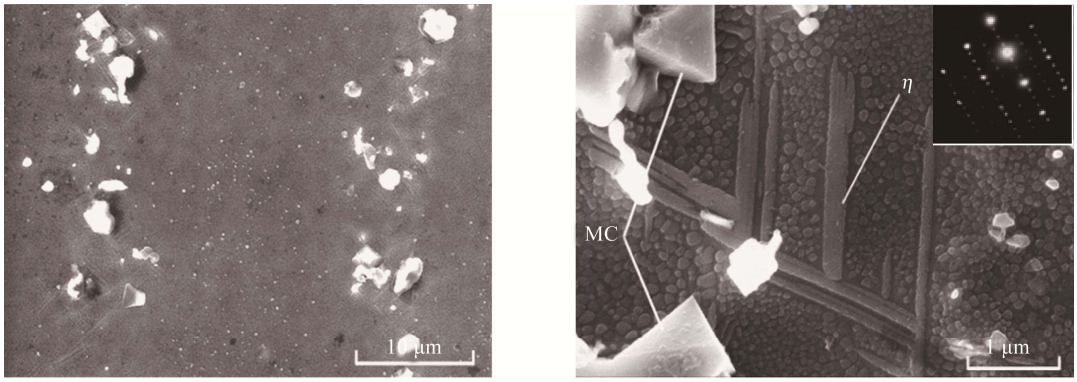


图 3　激光立体成形 Rene88DT 合金沉积态 XRD 相分析结果

Fig.3 XRD phase analysis result of as-deposited Rene88DT sample by LSF

如图 4a 所示，第二相主要沿枝晶间区域分布。在激光立体成形非平衡凝固条件下，由于正偏析元素 Nb, Ti, Al, Mo 等元素在液相与固相中溶解度的差异，已凝固的枝晶干会将这几种元素持续地排出到液相中[8]，合金元素的微观偏析导致第二相于枝晶间形成。



a 第二相分布特征　　b 枝晶间高倍显微照片

图 4　激光立体成形 Rene88DT 合金沉积态组织

Fig.4 SEM morphology of LSFRene88DT as-deposited microstructure

经分析，白色块状物为 MC 碳化物，板条状相为 η-Ni_3Ti 相。Rene88DT 沉积态组织中 MC 碳化物成分见表 3，基于 EDS 能谱成分分析，MC 碳化物富含 Nb 和 Ti。Rene88DT 合金中 Ti 的质量分数为 3.45%，Nb 的质量分数仅为 0.58%，但 MC 碳化物中的 Nb 的质量分数高达 30%左右，且高于其中的 Ti 含量。事实上，Nb 和 C 的结合力要强于 Ti 和 C，且田素贵[9]等在对镍基合金中碳化物析出行为的研究中指出，NbC 的析出温度要高于 TiC 的析出温度。据此观点分析，在 Rene88DT 合金激光立体成形过程中，MC 碳化物从液相中形核，并先捕获 Nb 元素。由于冷却速率相对较快，使得凝固过程偏离平衡，其后续生长过程受到限制，而呈小块状。

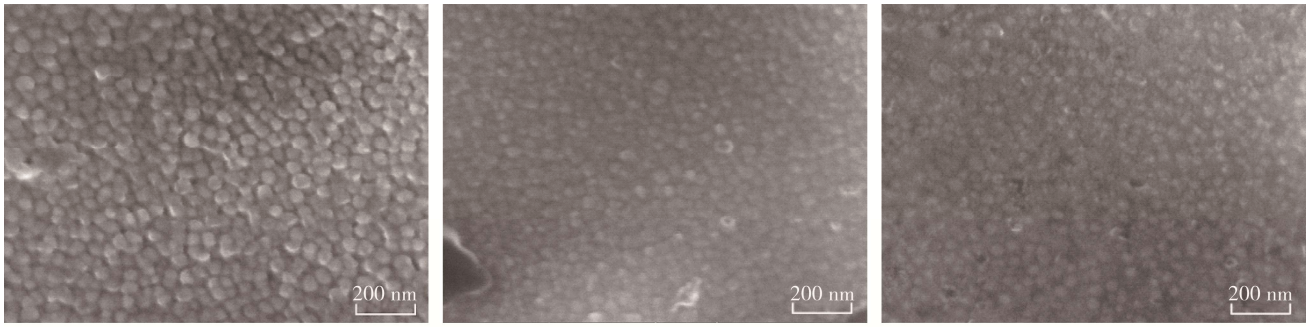
以 γ'相沉淀强化为主的镍基高温合金，由于 Ti 可以代替 γ'-Ni_3 (Al,Ti) 中的 Al，随着 Ti 含量和 Ti/Al 比的增加，γ'相变得不稳定，向 η 相转变趋势增大[10]。EDS 测得 Rene88DT 枝晶间区域 Ti 和 Al 元素质量分数平均为 6.707%和 2.020%，Ti/Al 达到 3.320。实际上，当 Ti/Al 比值大于 2.5，就有利于 η 相的形核和生长。合金化元素对 η 相析出的作用，本质上与基体相以及强化相中元素含量变化对两者晶格常数产生的影响有关，高的(Al+Ti)总量以及 Ti/Al 可使得 Al 和 Ti 在 γ'相中的含量增加，提高 γ'相的晶格常数[11]，而 γ 基体与 γ'相晶格常数关系为 $\alpha_{\gamma'}>\alpha_{\gamma}$，$\gamma'$相晶格常数的增加提高了 γ/γ'两相错配度，γ'相与基体错配度越大就越不稳定，加之 η 相形成元素 Ti 在枝晶间区域的富集，使得在 Rene88DT 合金枝晶间的 $\gamma'\rightarrow\eta$ 转变趋势增大，进而形成了板条状的 η 相。

表 3　Rene88DT 沉积态组织中 MC 碳化物成分

Tab.3 Composition of MC carbides in as-deposited Rene88DT　%

元素	质量百分数	原子数分数
C	33.37	72.79
Al	0.59	0.57
Ti	20.49	11.21
Cr	3.45	1.74
Fe	1.83	0.86
Co	0.86	0.38
Ni	8.19	3.66
Nb	29.52	8.33

激光立体成形骤热急冷的热过程一般会对沉淀强化相的析出起到抑制作用，但 Rene88DT 合金中 γ'相形成元素(Al+Ti)总质量分数（5.68%）相对较高，而且质量分数较高（14.56%）的 Co 元素可降低 Ti 和 Al 在基体中的溶解度，增加 γ'相数量[12]。图 5 所



a 底部　　b 中部　　c 顶部

图 5　激光立体成形 Rene88DT 合金沉积态强化相

Fig.5 Strengthening phase of as-deposited Rene88DT alloy by LSF

示为 Rene88DT 沉积态组织中 γ'强化相形态特征，可见随着沉积高度的增加，γ'相平均尺寸呈减小趋势，分布密集程度也随之降低。这是由于越接近单道试样顶部，材料所经历的后续熔覆对已熔覆层的再加热沉淀析出作用时间越来越少，再加热过程的减弱意味着 γ'相在再加热过程中沉淀析出数量和沉淀机会的减小[12]。这也使得试样的维氏硬度平均值，随沉积层高度的增加，从 HV484 减小到 HV389，如图 6 所示。

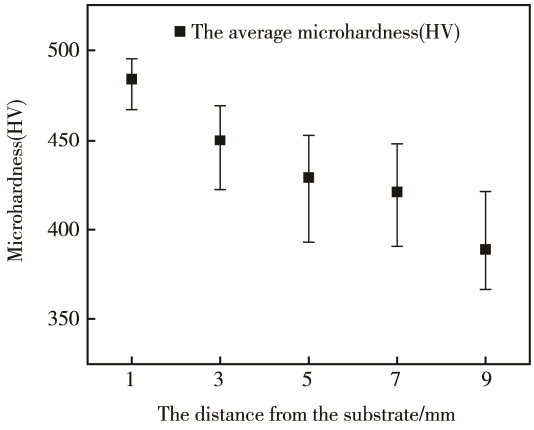


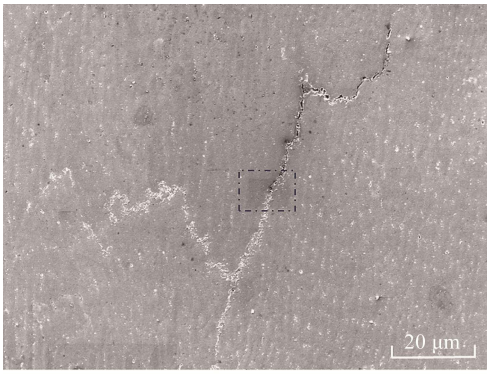
图 6　激光立体成形 Rene88DT 合金沉积态维氏显微硬度
Fig.6 Vickers microhardness (HV) of as-deposited Rene88DT by LSF

2.3　Rene88DT 合金沉积态微裂纹

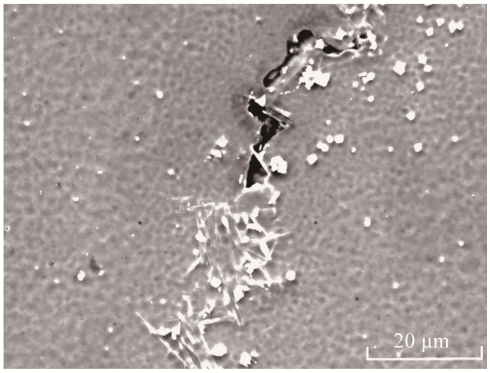
Rene88DT 合金 Al+Ti 的总质量分数超过 4%，具有较强的裂纹敏感性，易于在激光立体成形过程中发生开裂。图 7 所示为沉积态组织中典型的微裂纹特征。低倍组织照片显示，裂纹主要出现在柱状晶晶界处，具有沿晶开裂特征；高倍组织照片显示，沿开裂晶界存在大量析出物，呈连续或半连续分布。

一方面，高的 Al 和 Ti 含量使得 γ'相沉淀析出动力较大，导致熔池在结晶过程中容易产生凝固裂纹[13]。另一方面，合金化元素的偏析在影响裂纹敏感性方面也起着重要作用[14]。利用 EDS 测得沿晶裂纹及其周围基体成分见表 4，对应的测量位置参见图 8。

结果显示，沿晶裂纹中 A 处的 C, Al, Ti, Nb, Mo 的含量均高于晶内 B 处相应的元素含量，这表明在发生开裂的晶界处存在成分偏析。对于 Rene88DT 合金来说，在激光立体成形熔池凝固过程中，凝固界面的快速移动可能使溶质原子在晶界处更易形成偏析，形成了低熔点析出相，导致晶界弱化，增加了合金裂纹敏感性。由图 7 可知，沿开裂晶界分布的析出物与枝晶间析出物种类相同，其差异在于晶界析出物的分布更为密集，析出量更多，说明晶界处元素偏析程度更为严重。沉积当前层时，已经凝固的前一沉积层经受



a　裂纹照片



b　裂纹高倍显微照片

图 7　激光立体成形 Rene88DT 合金与激光扫描方向垂直的截面上的裂纹特征
Fig.7 Crack characteristics on a section vertical to the laser scanning direction of as-deposited Rene88DT alloy by LSF

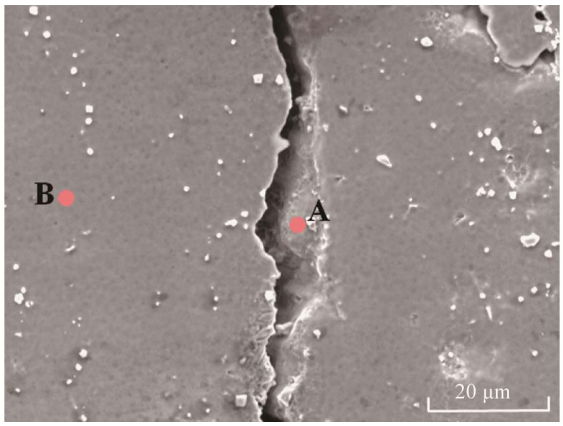


图 8　Rene88DT 合金沿晶裂纹及其周围基体
Fig.8 The intergranular crack and the surrounding matrix

再加热作用，枝晶间和晶界处低熔点相会发生液化形成晶间液膜，由于晶界处析出物的体积分数更大，液膜更厚，在受到垂直于柱状晶生长方向的拉应力作用下，晶间处较厚的液膜更易发生开裂，当熔池凝固无法进行充分补缩时，进而形成沿晶开裂的液化裂纹。这也意味着对 Rene88DT 激光立体成形过程中应力及微观偏析的控制对于控制微裂纹的形成至关重要。

表 4 沿晶裂纹处及其周围基体成分（质量分数）
Tab.4 Composition of intergranular crack and surrounding matrix measured by EDS (mass fraction) %

元素	A处	B处
C	5.39	2.16
Al	2.06	1.48
Ti	6.44	2.84
Cr	14.08	15.65
Fe	1.96	3.66
Co	11.35	12.64
Nb	1.82	0.61
Mo	5.27	4.08
W	2.51	4.67
Ni	54.51	53.22

3 结论

1）激光立体成形 Rene88DT 合金沉积态组织为沿趋于平行沉积方向外延连续生长的 γ 柱状晶组织，且随着沉积高度的增加，一次枝晶臂间距有所增大，二次枝晶臂逐渐发达。

2）在激光立体成形非平衡凝固条件下，由于元素微观偏析的存在，沉积态组织枝晶间区域分布着以富 Nb 为主的块状 MC 碳化物以及板条状 η（Ni_3Ti）相。随着沉积高度的增加，由于后续熔覆层对已熔覆层的再加热过程的减弱，γ'相体积分数和尺寸逐渐减小，沉积层的维氏显微硬度值相应降低。

3）在激光立体成形熔池凝固过程中溶质原子在晶界处形成偏析，形成了低熔点析出相，导致晶界弱化，在成形热应力作用下形成沿晶裂纹。

参考文献：

[1] 黄卫东，李延民，冯莉萍，等. 金属材料激光立体成形技术[J]. 材料工程, 2002, 3(10): 40—43.
HUANG Wei-dong, LI Yan-min, FENG Li-ping, et al. Laser Solid Forming of Metal Powder Materials[J]. Journal of Materials Engineering, 2002, 3(10): 40—43.

[2] 林鑫，杨海欧，陈静，等. 激光快速成形过程中 316L 不锈钢显微组织的演变[J]. 金属学报，2006，42(4): 361—368.
LIN Xin, YANG Hai-ou, CHEN Jing, et al. Microstructure Evolution of 316L Stainless Steel During Laser Rapid Forming[J]. Acta Metallurgica Sinica, 2006, 42(4): 361—368.

[3] 赵晓明. Rene88DT 高温合金激光立体成形的组织与性能研究[D]. 西安: 西北工业大学, 2009.
ZHAO Xiao-ming. The Research of Microstructure and Performance in Laser Solid Forming Rene 88DT Superalloy[D]. Xi'an: Northwestern Polytechnical University, 2009.

[4] 黄卫东，林鑫，陈静，等. 激光立体成形[M]. 西安: 西北工业大学出版社, 2007.
HUANG Wei-dong, LIN Xin, CHEN Jing, et al. Laser Solid Forming[M]. Xi'an: Northwestern Polytechnical University Press, 2007.

[5] KURZ W, FISHER D J. Fundamentals of Solidification[M]. Aedermansdorf: Trans Tech Publications, 1992.

[6] 姜华，汤海波，方艳丽，等. 激光熔化沉积 DZ408 镍基高温合金微细柱晶显微组织及性能[J]. 中国激光, 2012, 39(2): 1—7.
JIANG Hua, TANG Hai-bo, FANG Yan-li, et al. Microstructure and Mechanical Properties of Rapid Solidified Ultra-Fine Columnar Grain Ni-Base Superalloy DZ408 by Laser Melting Deposition Manufacturing[J]. Chinese Journal of Lasers, 2012, 39(2): 1—7.

[7] LIU Fen-cheng, LIN Xin, LENG Han, et al. Microstructural Changes in a Laser Solid Forming Inconel 718 Superalloy Thin Wall in the Deposition Direction[J]. Optics & Laser Technology, 2013, 45: 330—335.

[8] NIE Pu-lin, OJO O A, LI Zhu-guo. Numerical Modeling of Microstructure Evolution during Laser Additive Manufacturing of a Nickel-based Superalloy[J]. Acta Materialia, 2014, 77: 85—95.

[9] 田素贵，谢广亮，谢君. 镍基粉末合金中碳化物的析出行为及热力学分析[J]. 材料热处理学报，2013, 34(7): 187—192.
TIAN Su-gui, XIE Guang-liang, XIE Jun. Precipitating Behavior and Thermodynamic Analysis of Carbides in Powder Nickel-based Superalloy[J]. Transactions of Materials and Heat Treatment, 2013, 34(7): 187—192.

[10] 杨海欧. 激光快速成形功能梯度材料的研究[D]. 西安: 西北工业大学, 2008.
YANG Hai-ou. Fabrication of Functional Gradient Materials by Laser Rapid Forming[D]. Xi'an: Northwestern Polytechnical University, 2008.

[11] 王恺，王俊，康茂东，等. 合金化元素对 K4169 高温合金组织稳定性影响的研究现状[J]. 材料导报，2013, 27(9): 122—126.
WANG Kai, WANG Jun, KANG Mao-dong, et al. Research Status of the Effects of Alloying Elements on Microstructural Stability of K4169 Superalloy[J]. Materials Reports, 2013, 27(9): 122—126.

[12] 孙晓峰，金涛，周亦胄，等. 镍基单晶高温合金研究进展[J]. 中国材料进展, 2012, 31(12): 1—11.
SUN Xiao-feng, JIN Tao, ZHOU Yi-zhou, et al. Research Progress of Nickel-Base Single Crystal Superalloys[J]. Materials China, 2012, 31(12): 1—11.

[13] RICHARDS N L, NAKKALIL R, CHATURVEDI M C. The Influence of Electron-beam Welding Parameters on Heat-affected-zone Microfissuring in INCOLOY 903[J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 1994, 25(8): 1733—1745.

[14] SHANKAR V, GILL T P S, MANNAN S L, et al. Solidification Cracking in Austenitic Stainless Steel Welds[J]. Sadhana, 2003, 28(3/4): 359—382.