

一种第二代镍基单晶高温合金短时高应力蠕变研究

张 镇^{1, 2, 3}, 谷阿山⁴, Natasha Vermaak³, 楼琅洪¹, 张 健¹

(1. 中国科学院金属研究所 高温结构材料研究部, 辽宁沈阳 110016; 2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 理海大学 力学与机械工程系, 美国宾夕法尼亚州 18015; 4. 中国航发贵州黎阳航空动力有限公司, 贵州贵阳 550014)

摘要: 为了评估镍基单晶高温合金在诸如高超音速飞行器等有限寿命应用中高温弹塑性安定设计的使用情况, 在600 °C和900 °C下进行了短时高应力蠕变试验。结果表明, 在900 °C/350 MPa (屈服应力的52%) 条件下测试的试样产生的蠕变应变比600 °C/900 MPa (屈服应力的99%) 时更高。由于热激活效应, 在900 °C/350 MPa下发现 γ '相出现筏化。在900 °C/350 MPa时, a [110]和a [100]两种超位错都切入了 γ '相, 而在600 °C/900 MPa时, 只有a [100]一种超位错切入 γ '相。

关键词: 镍基单晶高温合金; 短时蠕变行为; 变形机制; 位错组态

在载荷加载的初始周期里, 结构的塑性变形趋于稳定, 逐步形成一个有利的残余应力分布, 使得后续的加载周期里, 结构的塑性应变保持恒定或者以渐进增加的方式变化, 于是结构的后续性能为弹性响应, 如此则称结构处于安定状态。对诸如高超音速飞行器等有限寿命应用的研究发现, 通过利用弹塑性状态并允许安定性发生, 能够更深入地挖掘材料的服役潜能, 并可以为结构设计、优化减重提供载荷管理的标准^[1-4]。因此, 安定性分析在核工业、机械、海洋等领域被广泛应用。虽然镍基单晶高温合金由于其优异的高温稳定性、抗蠕变、抗氧化性和疲劳性能, 被广泛地应用于航空发动机和工业燃气轮机中^[5-6], 但单晶高温合金的安定性研究目前仍是空白。

安定性理论的基本假设中, 不考虑与时间相关的因素, 因此单晶高温合金安定性实验中, 排除蠕变行为的干扰至关重要^[7-9], 寻找屈服应力附近蠕变变形速率接近零的蠕变条件(温度、应力)是开展单晶合金安定性实验的基础。

单晶高温合金在高温服役时, 会出现蠕变行为^[10-13], 即实验材料在恒定载荷下发生持续塑性变形累积的现象, 具有时间相关性。目前针对镍基单晶高温合金蠕变行为的研究中, γ '相的定向粗化(筏化), γ/γ' 界面位错网的形成, 以及超位错切割 γ '相是镍基单晶高温合金的蠕变行为最主要的变形机制^[10-16]。目前在高温、接近屈服极限应力水平时的蠕变行为尚未见公开报道。因此, 本文开展单晶高温合金高温、高应力、短时蠕变试验研究, 一方面为单晶高温合金高温安定性研究奠定基础, 同时也通过变形机制的相关研究进一步拓宽对单晶高温合金蠕变行为和机理的认知。

1 试验材料与方法

选用中国科学院金属研究所自主研发的一种无Re第二代镍基单晶高温合金DD425作为试验材料, 该合金化学成分如表1所示。采用液态金属冷却法(LMC)进行定向凝固, 并采用螺旋选晶法制备沿[001]取向生长的单晶板, 如图1所示。利用背散射电子衍射(EBSD)技术测定单晶板的晶体学取向, 确保偏离[001]取向10°以内。随后对单晶板进行标准热处理, 制度为: 固溶处理1 275 °C/6 h, 空冷; 一级时

作者简介:

张 镇(1991-), 男, 博士, 研究方向为单晶高温合金的性能。电话: 17610629889, E-mail: 694790783@qq.com

中图分类号: TG132.3⁺2

文献标识码: A

文章编号: 1001-4977(2021)07-0813-06

基金项目:

国家自然科学基金(51631008、91860201、51871210、51671196)。

收稿日期:

2021-04-03 收到初稿,

2021-04-16 收到修订稿。

效1 100 °C/4 h, 空冷; 二级时效850 °C/24 h, 空冷。

在短时蠕变试验前, 首先开展DD425单晶高温合金在600 °C和900 °C下沿 [001] 取向的单轴拉伸试验, 并且每个温度都有三组平行试验, 以获取其屈服极限, 并以此作为选取短时蠕变试验应力条件的参考。

随后, 按照图2所示的尺寸沿 [001] 取向机械加工出蠕变试样。短时蠕变试验选取600 °C和900 °C两种温度, 不同于传统的蠕变试验, 短时蠕变试验在5小时终止。

在蠕变试验结束后, 切取蠕变试样的纵截面 (图1), 使用砂纸对样品进行打磨, 而后抛光, 并使用80 mL H₂O、100 mL HCl和20 g CuSO₄配置的溶液腐蚀, 使用场发射电子枪扫描电镜 (FSEM) 研究蠕变样品 γ/γ' 的显微结构。最后, 切取蠕变试样的横截面制备透射样品 (图1), 然后在25 V和-25 °C条件下用10%高氯酸乙醇溶液进行双喷, 加上离子减薄步骤, 最后通过JEM-2100透射电子显微镜 (TEM) 观察蠕变样品的位错结构。

2 试验结果

2.1 高温拉伸试验结果

DD425单晶高温合金在600 °C时沿 [001] 取向的屈服极限为901.3 MPa, 在900 °C时沿 [001] 取向的屈服极限为677.0 MPa。基于以往文献中对于单晶高温合金高温条件下蠕变行为的认识, 温度越高, 则产生明显蠕变现象所需的应力相对越低, 因此, 在选取高温短时蠕变试验所采用的应力时, 本研究探索性地选取了600 °C/810 MPa, 600 °C/900 MPa, 900 °C/200 MPa, 900 °C/300 MPa和900 °C/350 MPa这一系列条件。其中, 600 °C时应力水平分别为此温度下屈服极限的90%和99%, 900 °C时应力水平分别为此温度下屈服极限的30%、44%和52%。

2.2 短时蠕变试验结果

短时蠕变试验的结果如图3所示, 图3a的结果表明, 在900 °C时, 仅仅当载荷达到300 MPa (屈服极限的44%) 时, 试样的蠕变应变已经出现可见的累积,

并且增长速度保持稳定, 这正是稳态蠕变阶段的典型特征。于是, 在更高的载荷下 (350 MPa, 屈服极限的52%) 进行的试验中, 可以发现更严重的蠕变应变积累。然而, 对于600 °C时的短时蠕变试验, 图3b的结果表明, 在810 MPa (屈服极限的90%), 甚至900 MPa (屈服的99%) 应力条件时, 蠕变应变在5小时内没有任何增长。

3 分析与讨论

3.1 扫描电镜组织观察分析

为了阐明600 °C和900 °C时DD425单晶高温合金蠕变的不同变形机制, 首先通过扫描电子显微镜观察了样品纵截面的 γ/γ' 微观结构 (图4)。

与未加载过的试样组织形貌相比, 在600 °C/810 MPa, 600 °C/900 MPa, 900 °C/200 MPa和900 °C/300 MPa试验条件下的试样组织中可以发现 γ' 相发生了轻微的扭曲, 但总体来看 γ' 相仍然能保持立方体形态, 并且没有观察到滑移带。但是, 在900 °C/350 MPa条件下的试

表1 试验用DD425合金的名义化学成分
Table 1 Nominal chemical composition of DD425 superalloy

superalloy							$w_B / \%$
Al	Co	Cr	W	Ta	Ti	Mo	Ni
5.2	9.5	7.5	7.5	3.5	2.0	1.5	余量

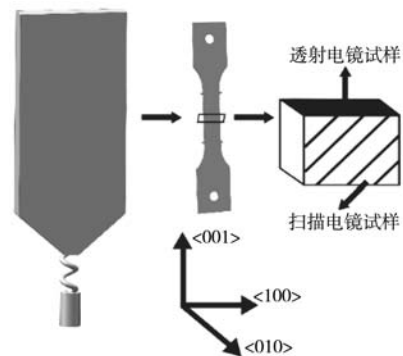


图1 制备蠕变试样、扫描电镜试样和透射电镜试样的示意图
Fig. 1 Schematic of preparation of creep specimens, SEM specimens and TEM foils

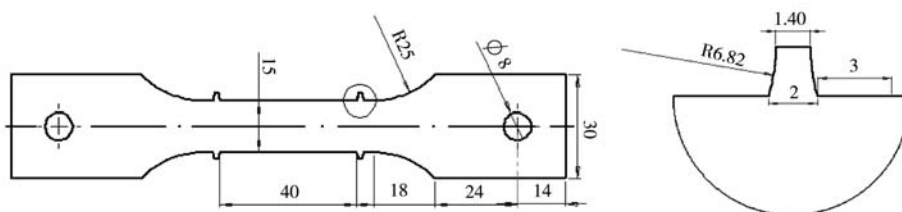


图2 短时蠕变试样尺寸图

Fig. 2 Geometry and dimensions of short-term creep test specimen

样组织中可以明显地看到 γ' 相沿着垂直于加载轴的方向产生定向粗化，这也通常被认定为单晶高温合金中所谓的“N型筏化”^[5]。通过对比600 °C与900 °C时的应力水平，可以推断出温度起到更为重要的作用。事实上，由于热激活作用，更高的温度下元素定向扩散会加剧，从而促进了 γ' 相产生筏化。

随后，使用图像处理软件Image-Pro-Plus对各样品中的水平 γ 基体通道的宽度进行测量统计，结果如表2所示。统计结果表明，在900 °C/350 MPa条件下测试的试样中， γ 基体通道的宽度最大。Pollock等^[10]的研究工作中提到，筏化过程会导致 γ 基体通道的宽度不断

增加，在这种情况下位错穿过 γ 基体时，只需要克服较低的Orowan阻力，因此相较于900 °C，600 °C时更窄的 γ 基体通道对位错运动更强的阻力导致了其抗蠕变性能更好。

3.2 透射电镜组织观察分析

为了更深入地探究DD425单晶高温合金在两种温度下变形机制的区别，选择在900 °C/350 MPa和600 °C/900 MPa条件下的样品，使用透射电子显微镜进行位错结构分析，结果分别如图5和图6所示。

图5所示为在900 °C/350 MPa条件下样品的位错结

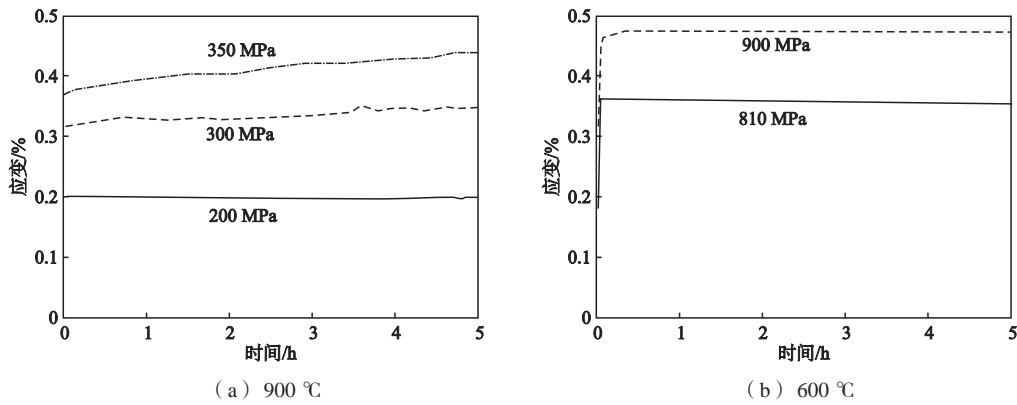
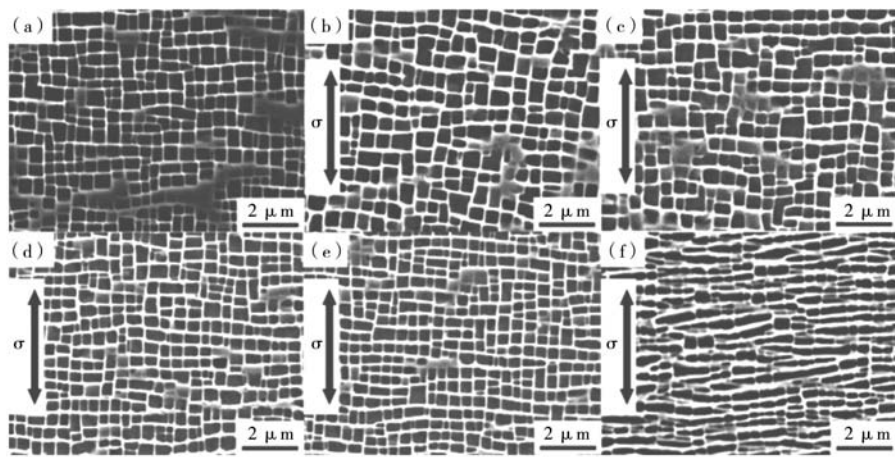


图3 DD425合金不同温度下短时蠕变试验结果

Fig. 3 Creep curves of DD425 alloy at different temperatures



(a) 标准热处理后未加载荷；(b) 600 °C/810 MPa；(c) 600 °C/900 MPa；(d) 900 °C/200 MPa；(e) 900 °C/300 MPa；(f) 900 °C/350 MPa

图4 DD425合金的 γ/γ' 组织扫描电镜照片

Fig. 4 γ/γ' microstructure of DD425 alloy at different temperature-stress conditions

表2 图4中各样品的水平 γ 通道宽度的统计结果

Table 2 Average width of horizontal γ matrix of specimens measured in Fig.4

	未加载	600 °C/810 MPa	600 °C/900 MPa	900 °C/200 MPa	900 °C/300 MPa	900 °C/350 MPa
	89	145	165	140	144	182

nm

构, 操作适量的选取是基于单晶高温合金具有面心立方结构, 加上制备的透射样品属于{001}平面族综合考量而来的。由图5可以观察到, 在 γ/γ' 界面形成了大量的位错网络。此外, 还可以观察发现尽管处在蠕变非常早的时期(5 h), 也能发现有不同形态的超位错切入 γ' 相。总的来说, γ' 相中出现了两种超位错形态: ①“短线段”型超位错, 以黑色实心三角形标识出来; ②“长直线段”型超位错, 编号为1-3, 并在图中标识出来。

接下来, 为了确定图5中出现的超位错的Burgers矢量, 通过双束干涉法对不同操作矢量下的超位错进行了衍射对比分析, 结果见表3。根据 $g \cdot b = 0$ 准则, 位错1的Burgers矢量可以确定为 $a [01\bar{1}]$, 而位错3的Burgers矢量可以确定为 $a [011]$ 。位错1和3都源自于错配应力和空位渗透力驱动的界面位错网络。此外, 位错2的Burgers矢量是 $a [010]$ 。此类位错可以由两个位错的反应而形成, 如:

$$a/2 [01\bar{1}] + a/2 [011] = a [010] \quad (1)$$

反应方程式与位错1和位错3的Burgers矢量吻合较好, 表明位错2可能由位错1和位错3的反应形成。类似的超位错在单晶高温合金[001]取向^[11-12, 17]和[011]取向^[18]的蠕变实验中也有过报道。然而, 在先前的文献中, 这种构型是在数十小时后的稳态蠕变阶段发现的, 而本文中这种超位错被证实可以出现在蠕变非常早期的阶段。

另一种由黑色实心三角形标记的超位错, 其位错线主要平行于[010]方向。此外, 在 γ' 相中还发现了

位错对, 用双黑实心三角形表示。以往的研究工作^[19-20]中提到, 当基体位错扩展到一定程度时, 两个具有不同Burgers矢量的 γ 基体位错将共同切割 γ' 相, 并在通道的另一侧遇到符号相反的位错, 最终湮灭。在这种类型的切割过程中, 位错通过滑移和攀移的组合进行运动。

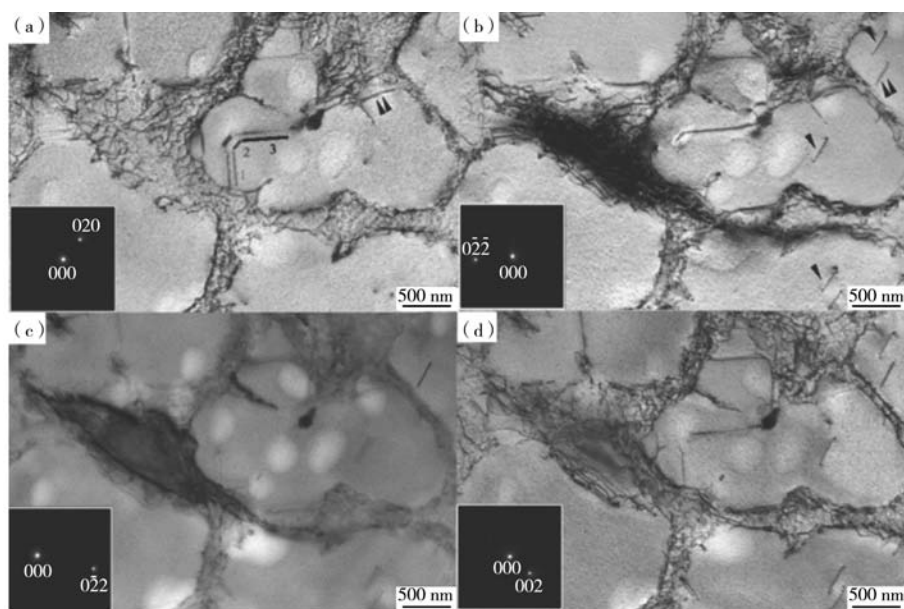
总的来说, 在 γ/γ' 显微组织中, 上述两种具有代表性的超位错切割 γ' 相是在900 °C时蠕变的主要变形机制。

而对于在600 °C/900 MPa条件下的蠕变试样, 同样通过透射电子显微镜观察了位错网络和超位错, 如图6所示。蠕变试样同样出现了密集的界面位错网络; 在 γ' 相中同样也观察到了“短线段”型 $a [010]$ 超位错。但是, 600 °C/900 MPa条件下的试样的总位错密度明显低于900 °C/350 MPa条件下的总位错密度。此外, 与在900 °C/350 MPa条件下进行蠕变试验的试样相比, 在600 °C/900 MPa条件下的样品中并没有发现“长直线段”型的 $a [110]$ 超位错。

以上结果表明, 在短时蠕变试验中, 相较于应

表3 图5中超位错的衍射对比分析
Table 3 Diffraction contrast analysis of superdislocations observed in Fig.5

超位错	$g_1=020$	$g_2=0\bar{2}\bar{2}$	$g_3=0\bar{2}2$	$g_4=002$	Deduced b
1	可见	消光	可见	可见	$a [01\bar{1}]$
2	可见	可见	残余	消光	$a [010]$
3	可见	可见	消光	可见	$a [011]$



(a) $g_1=020$; (b) $g_2=0\bar{2}\bar{2}$; (c) $g_3=0\bar{2}2$; (d) $g_4=002$

图5 对900 °C/350 MPa条件下蠕变样品使用双束干涉法观察位错网和超位错

Fig. 5 Dislocation networks and superdislocations viewed under typical two-beam conditions of foils from specimens tested at 900 °C/350 MPa

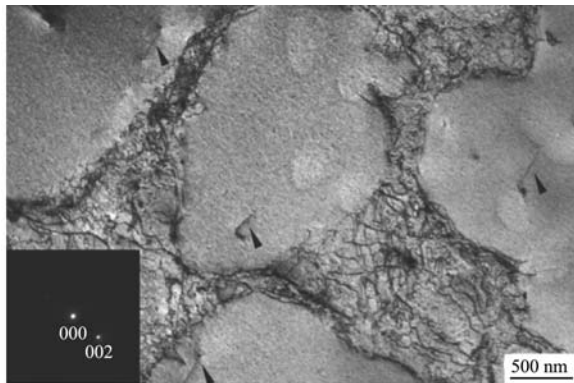


图6 在600 °C/900 MPa条件下蠕变样品的位错网和超位错
Fig. 6 Dislocation networks and superdislocations viewed from specimen tested at 600 °C/900 MPa

力，温度对于蠕变起到更重要的作用。一方面，温度的升高有利于合金元素的扩散，高温有利于 γ '相的筏化，而筏化导致了 γ 基体通道变宽，对位错运动的阻力减小，最终导致了抗蠕变性能下降。另一方面，在蠕变变形过程中， a [110]超位错在每一个温度下都有一个对应的切入 γ '相所需的临界剪切应力，而临界剪切应力随温度的升高而减小，于是在600 °C时，位错主要局限于 γ/γ' 界面，并只有一些 a [010]型超位错进入了 γ '相^[17]。因此，整体来看600 °C时的组织形貌结果与短时蠕变试样的宏观观察结果一致，即在600 °C/900 MPa的条件下，没有明显的蠕变应变累积。

参考文献:

- [1] VERMAAK N, VALDEVIT L, EVANS A G, et al. Implications of shakedown for design of actively cooled thermostructural panels [J]. *Journal of Mechanics of Materials & Structures*, 2012, 6 (6): 1313-1327.
- [2] VERMAAK N, BOISSIER M, VALDEVIT L, et al. Some graphical interpretations of melan's theorem for shakedown design [M]. Springer, 2018.
- [3] BOISSIER M, ALLAIRE G, TOURNIER C. Additive manufacturing scanning paths optimization using shape optimization tools [J]. *Structural and Multidisciplinary Optimization*, 2020, 61: 1-30.
- [4] ZHANG Z, CINOGLU I S, CHARBAL A, et al. Cyclic inelastic behavior and shakedown response of a 2nd generation nickel-base single crystal superalloy under tension-torsion loadings: Experiments and simulations [J]. *European Journal of Mechanics A/Solids*, 2020, 80.
- [5] REED R C. *The Superalloys: Fundamentals and Applications* [M]. New York: Cambridge University Press, 2006.
- [6] POLLOCK T M, TIN S. Nickel-based superalloys for advanced turbine engines: chemistry, microstructure and properties [J]. *Journal of Propulsion & Power*, 2006, 22: 361-374.
- [7] CINOGLU I S, CHARBAL A, VERMAAK N. Inelastic design for type 316L stainless steel at ambient and 600 °C under uniaxial loading [J]. *International Journal of Pressure Vessels and Piping*, 2020, 181: 104063.
- [8] CHARBAL A, CINOGLU I S, VERMAAK N. Ambient multiaxial creep: shakedown analysis of structures using stereo digital image correlation [J]. *SN Applied Sciences*, 2020, 2 (12).
- [9] TALEB L, CAILLETAUD G. Cyclic accumulation of the inelastic strain in the 304L SS under stress control at room temperature: Ratcheting or creep [J]. *International Journal of Plasticity*, 2011, 27 (12): 1936-1958.
- [10] POLLOCK T M, ARGON A S. Creep resistance of CMSX-3 nickel base superalloy single crystals [J]. *Acta Metallurgica et Materialia*, 1992, 40: 1-30.
- [11] LINK T. <100> Dislocations in nickel-base superalloys: Formation and role in creep deformation [J]. *Materials Science and Engineering: A*,

4 结论

(1) 在600 °C开展短时蠕变试验时，即使应力水平接近此温度下合金屈服极限的99%时，也没有明显的蠕变应变累积，但是在900 °C开展短时蠕变试验时，当应力水平接近此温度下合金屈服极限的50%，就能观察到明显的蠕变应变累积。

(2) 900 °C/350 MPa条件下的蠕变试样中，通过扫描电子显微镜观察到 γ '相发生筏化，并测量统计到了最宽的 γ 基体通道；通过透射电子显微镜观察到了在 γ/γ' 相界面形成了浓密的位错网络，并同时发现了“短线段”型的 a [010]超位错，和“长直线段”型的 a [110]超位错。

(3) 600 °C/900 MPa条件下的蠕变试样中，未观察到 γ '相发生筏化，测量统计到相对较小 γ 基体通道的宽度相对较小；通过透射电子显微镜观察到了在 γ/γ' 相界面形成了浓密的位错网络，但是仅发现了“短线段”型的 a [010]超位错。

(4) 造成两种温度下结果差异以及变形机制差异的原因主要是：热激活效应促进了合金元素的扩散，促进了 γ '相的筏化，而筏化导致了 γ 基体通道变宽，从而对位错运动的阻力减小，导致了抗蠕变性能下降。此外，超位错切入 γ '相所必需的临界剪切应力随温度的升高而减小。

- 2005, 405: 254–265.
- [12] SAROSI P M, SRINIVASAN R, EGGELER G F, et al. Observations of $a\langle 010 \rangle$ dislocations during the high-temperature creep of Ni-based superalloy single crystals deformed along the [001] orientation [J]. *Acta Materialia*, 2007, 55 (7): 2509–2518.
- [13] LI Y F, WANG L, ZHANG G, et al. Observation of a [100] dislocations in γ' phase in a [011]-oriented nickel-base single crystal superalloy during high temperature creep [J]. *Metallurgical And Materials Transactions A*. 2019, 50 (11): 4965–4969.
- [14] BRUNNER M, BENSCH M, VÖLKL R, et al. Thickness influence on creep properties for Ni-based superalloy M247LC SX [J]. *Materials Science & Engineering A*, 2012, 550: 254–262.
- [15] GRAVEREND J, PETTINARI-STURMEL F, CORMIER J, et al. Mechanical twinning in Ni-based single crystal superalloys during multiaxial creep at 1 050 °C [J]. *Materials Science and Engineering A*, 2018, 722: 76–87.
- [16] WANG X G, LIU J L, JIN T, et al. Deformation mechanisms of a nickel-based single-crystal superalloy during low-cycle fatigue at different temperatures [J]. *Scripta Materialia*, 2015, 99: 57–60.
- [17] ZHUO L. Core structure of a superdislocations in a single crystal superalloy during high-temperature and low-stress creep [J]. *Philosophical Magazine Letters*, 2015, 95 (10): 1–8.
- [18] LI Y F, WANG L, ZHANG G, et al. Anisotropic stress rupture properties of a 3rd-generation nickel-based single-crystal superalloy at 1 100 °C/150 MPa [J]. *Acta Metallurgica Sinica (English Letters)*, 2020, 33 (3): 446–458.
- [19] SRINIVASAN R, EGGELER G F, MILLS M J. γ' -cutting as rate-controlling recovery process during high-temperature and low-stress creep of superalloy single crystals - ScienceDirect [J]. *Acta Materialia*, 2000, 48 (20): 4867–4878.

Short-Term High-Stress Creep Behavior of a Second Generation Nickel-Base Single Crystal Superalloy

ZHANG Zhen^{1,2,3}, GU A-shan⁴, Natasha Vermaak³, LOU Lang-hong¹, ZHANG Jian¹

(1. Shi-changxu Innovation Center for Advanced Materials, Institute of Metal Research, Chinese Academy of Sciences, Shenyang 110016, Liaoning, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. Department of Mechanical Engineering and Mechanics, Lehigh University, Bethlehem, PA 18015, United States; 4. AECC Guizhou Liyang Aviation Power Co., Ltd., Guiyang 550014, Guizhou, China)

Abstract:

In order to evaluate the use of a nickel-base single crystal superalloy for elastoplastic shakedown design at elevated temperatures in limited-life applications like hypersonic vehicles, short-term high-stress creep tests were conducted at 600 °C and 900 °C, respectively. The results revealed that more severe creep strain was derived on specimens tested at 900 °C /350 MPa (52% of yield stress) than 600 °C /900 MPa (99% of yield stress). Due to thermally activated effects, rafting of γ' phase was found at 900 °C /350 MPa. TEM analysis revealed that both $a[110]$ and $a[100]$ superdislocations occurred at 900 °C /350 MPa, while only $a[100]$ superdislocations occurred at 600 °C /900 MPa.

Key words:

nickel-base single crystal superalloy; short-term creep behavior; deformation mechanism; superdislocation configuration