

GH4098 合金短时持久性能的研究

袁晓飞, 丁贤飞, 八木晃一, 郑运荣, 冯 强

(北京科技大学 国家材料服役安全科学中心, 北京 100083)

摘 要: 以固溶时效处理后的 GH4098 合金板材为研究对象, 测定其在不同温度 (800~1000 °C)、不同应力 (90~680 MPa) 条件下的短时持久性能 (持久断裂时间 10 min~3 h), 并对其显微组织和断裂特征进行表征。结果表明: GH4098 合金在 800~1000 °C 范围内持久断裂模式均为沿晶塑性断裂。随着温度的升高, GH4098 合金短时持久性能逐渐降低, 但在 1000 °C 持久性能退化程度明显加剧。组织表征结果表明: GH4098 合金晶粒尺寸并未随着温度的升高而变化, 而高温下合金中 γ' 相体积分数的降低以及 γ' 相和晶界碳化物的粗化是合金短时持久性能显著退化的主要原因。同时, 对冷却速度对合金显微组织的影响以及短时蠕变与传统蠕变的异同也进行了讨论。

关键词: GH4098 合金; 持久性能; 显微组织; 断裂

中图分类号: TG146.1¹5; TG113.2

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2015)10-2419-10

高超声速飞行器耐热结构材料承受着高温、高动态发射载荷、飞行中气动载荷和热循环载荷的综合作用, 必须具有耐高温、抗腐蚀、高强度、抗氧化、抗蠕变等特点^[1,2]。另外, 由于高超声速飞行器高速飞行的特性, 当高速空气绕过机体会受到机体表面强烈的压缩和摩擦, 使得机体温度和受载迅速提高^[1]。与普通飞行器耐热结构材料相比, 它所承受的温度更高、应力更大, 而服役时间则非常短(几十分钟到几小时)。因此, 高超声速飞行器耐热结构材料的短时蠕变持久性能成为衡量其高温性能的重要指标之一。

通常蠕变是指材料在高温和低于材料宏观屈服强度的应力下发生的缓慢的塑性变形, 其蠕变断裂时间从几十小时至几百小时甚至上万小时不等^[3]。大量不同材料的传统蠕变行为研究表明: 材料蠕变变形的机制与材料内部组织、结构的变化以及位错的组态与行为是密切相关的, 其主要机制包括位错蠕变、扩散蠕变和晶界滑动蠕变 3 种^[3-6]。通过计算材料的蠕变激活能和应力指数可以为分析蠕变机制提供参考依据^[7-9]。然而, 随着飞行器飞行速度的提高, 其耐热材料在高应力短时间条件下的蠕变持久行为越发值得关注。但是, 针对金属结构材料高应力短时间条件下蠕变持久行为的研究报道却非常有限, 多集中于高分子材料、钨钼合金和钛合金等材料^[10-13]。Merkulov 等人通过研究 OT4 钛合金的短时蠕变行为, 推导得出其短时蠕变方程^[11]。Bukhanovskii 等人对比研究了不同成分钨钨

合金的短时蠕变行为、断裂特征^[10], 并发现在钨合金中引入 HfC 和 HfO₂ 颗粒可以提高合金的短时蠕变性能^[13]。上述研究通过传统蠕变理论分析材料的短时蠕变持久行为, 建立方程并对材料的断裂特征进行分析。但是, 目前针对不同温度应力条件下材料的组织演变对短时持久性能影响规律的系统研究较少。同时, 由于短时蠕变应力明显高于传统蠕变应力且蠕变时间较短、元素扩散不充分, 传统蠕变理论是否适用于高应力短时间条件下的蠕变仍有待进一步研究。

镍基高温合金作为一种应用广泛的高温结构材料, 通过固溶强化、第二相强化和晶界强化等方式提高合金的高温强度, 其显微组织与蠕变持久性能关系的研究一直受到广泛关注^[5, 14-21]。对于变形高温合金而言, 在成分一定的情况下, 晶粒度、晶界析出相尺寸和分布以及基体上分布的 γ' 强化相的体积分数、尺寸和分布对于合金的蠕变持久性能来说至关重要^[5, 22]。一般认为粗大的晶粒、细小弥散的晶界析出相以及较高含量的 γ' 相有利于提高合金的蠕变持久性能^[22]。研究者对高温合金传统蠕变行为进行了许多理论和实验探索。但是, 对镍基高温合金的短时蠕变行为及其组织演化特征的研究却未见报道。

GH4098 合金是我国新研制的仿苏 ϵ П99 的镍基高温合金。该合金含有较高的 W、Mo、Al 和 Ti, 属于典型时效强化加固溶强化镍基难变形高温合金^[23]。由于其具有良好的高温强度、抗氧化性和可焊性而被用

收稿日期: 2014-10-27

基金项目: 国家高技术研究发展计划项目 (2012AA03A513); 教育部支撑技术重点项目 (625010337); 国家重点基础研究发展计划 (2010CB631201)

作者简介: 袁晓飞, 男, 1988 年生, 博士生, 北京科技大学国家材料服役安全科学中心, 北京 100083, 电话: 010-62321017, E-mail: lanfeihong520@gmail.com

于制造航天发动机挡板、隔热屏、加强筋和航天飞行器固定件及其他工作温度达 1000 °C 的经冷冲压和经焊接而成的零部件^[23]。由于 GH4098 合金中合金元素含量较高，合金的热加工抗力大、变形困难^[24]，前人对其研究主要集中于热处理制度和热加工工艺的探索，并探讨不同热处理制度对合金拉伸、持久性能的影响^[25]。但是，针对 GH4098 合金在实际服役温度范围内的短时蠕变持久行为及其与组织演变之间关系的研究未见报道。

针对高温高应力条件下短时服役这一特殊应用背景，本实验以固溶时效处理后的 GH4098 合金板材为研究对象，研究合金在不同温度应力条件下的短时持久性能及其组织演变规律。同时对短时蠕变与传统蠕变行为之间的异同进行探讨。

1 实验

本研究采用北京钢铁研究总院提供的标准热处理后的 GH4098 合金板材为研究对象，其合金成分范围如表 1 所示^[24]。表中 Cr、W、Mo、Co 主要起固溶强化作用，同时也是碳化物的形成元素；Al 和 Ti 则主要通过形成 γ' 相起到沉淀强化作用。合金中还加入了不足 2% 的 Nb 用以提高 γ' 相的稳定性。

板材持久试样按照 HB 5150-96《金属高温拉伸持久试验方法》的规定进行加工，其样品尺寸如图 1 所示。板材持久试样加工完成后用乙醇对其表面进行清洗并使用长春机械科学研究院有限公司 RDJ50 机械式持久试验机测试试样在不同温度（800~1000 °C）、不同应力（90~680 MPa）条件下的短时持久性能。所有持久实验均为到温后保温 1 h 后加载，持久断裂时间控制在 10 min~3 h，持久断裂后的样品均为炉冷，炉冷至室温时间约为 4~5 h。为了研究温度和应力对合金组织的影响，取 800, 900 和 1000 °C 3 种温度下持久寿命均为 1 h 的 3 个断裂后样品，分别切取距离断口 5 和 30 mm 的标距部位与夹头部位对其轴线附近组织进行分析。

本研究中合金组织观察所用侵蚀剂为 HCl:HNO₃:C₃H₈O₃=3:1:1。采用光学显微镜观察合金晶粒度和持久断裂后纵剖面的裂纹形貌。透射薄膜样品采用双喷电解减薄制备，双喷电解液为 10% 高氯酸、60% 正丁醇和 30% 乙醇。采用 ZEISS SUPRA55 型场发射扫描电镜 (FE-SEM) 观察合金热处理及持久断裂后的组织，包括 γ' 相形貌、碳化物形貌和持久断口形貌。利用 JEM FX2000 型透射电子显微镜 (TEM) 观察合金初始组织的 γ' 相形貌。采用 Leica VMHT 30M 型显微硬度计测试上述各类样品的维氏硬度，载荷 2.94 N，加载时

间 15 s。取 6 个不同部位硬度平均值作为最终结果。上述不同状态样品的平均晶粒尺寸均采用 Image Tool 软件进行测量统计，其数值为 3 个不同视场中 300 个晶粒尺寸的平均值； γ' 相和晶界碳化物的平均尺寸采用 Image Pro 软件进行测量，分别选取 300 个 γ' 相和 100 个晶界碳化物进行测算并取其平均值。

2 实验结果

2.1 原始组织

图 2 为本研究的 GH4098 合金板材的初始组织。试验合金的主要组织特征为 γ 基体上分布有初生碳化物和 γ' 强化相，同时在晶界区域有细小链状的次生碳化物。光学金相结果表明：GH4098 合金板材初始组织中横、纵截面均为等轴状晶粒组织，平均晶粒尺寸接近。图 2a 为该合金纵截面的光学显微组织，表明其原始组织为近似等轴晶组织且晶粒大小不均，其平均晶粒尺寸为 $37.7 \pm 6.7 \mu\text{m}$ 。图 2b 为合金初始组织的 SEM 照片，说明在晶内和晶界区域均有碳化物存在；其中晶内初生碳化物呈块状分布，且部分颗粒尺寸较大，如图中箭头所示。次生碳化物在晶界处呈断续链状分布，如图 2c 中箭头所示。图 2d 为合金 γ' 强化相形貌及分布的 TEM 照片，表明 γ' 相呈球形均匀弥散分布于晶内基体中，其尺寸为 $23.0 \pm 3.9 \text{ nm}$ ，体积分数为 $26.6 \pm 3.5\%$ 。

2.2 持久实验前的合金组织

由于本研究持久实验开始前均需要到温后保温 1 h，为了研究合金持久实验开始前的组织特征，分别对试验合金在 800, 900 和 1000 °C 进行了 1 h 的热处理并水淬冷却观察其组织。图 3 为 GH4098 合金经 800, 900 和 1000 °C 热处理 1 h 水淬后纵截面的光学显微组织。

表 1 GH4098 合金的名义成分

Table 1 Nominal compositions of GH4098 alloy^[24] (wt%)

C	Cr	W	Mo	Al	Ti	Co	Nb	Ni
≤0.1	16~20	4~8	2~6	2~4	1~3	4~9	≤2.0	Bal.

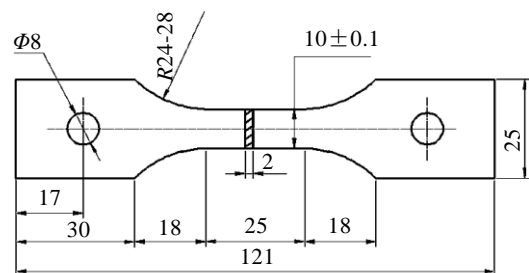


图 1 GH4098 合金板材持久试样示意图

Fig.1 Sketch of the stress rupture specimen for GH4098 alloy

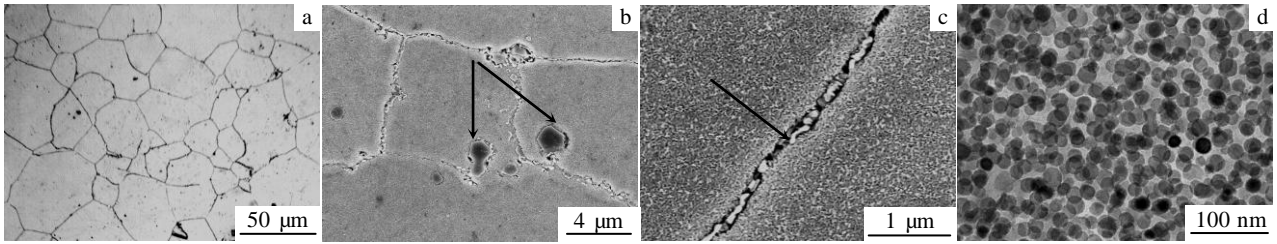


图 2 GH4098 合金板材的初始组织

Fig.2 Typical as-received microstructures of GH4098 alloys: (a) optical microstructure, (b) carbides in grain interiors and grain boundaries (SEM image), (c) carbides along grain boundaries (SEM image), and (d) morphology and distribution of γ' phase (TEM image)

试验合金经过不同温度热处理 1 h 水淬后, 晶粒大小仍然不均匀, 平均晶粒尺寸分别为 (38.4 ± 8.6) 、 (36.0 ± 5.4) 和 (38.8 ± 5.8) μm , 如图 3a、3b 和 3c 所示。与试验合金的初始组织相比, 在设定的实验温度 (800, 900, 1000 $^{\circ}\text{C}$) 下保温后该合金的金相组织与晶粒尺寸没有发生明显变化。图 4 和图 5 分别为 GH4098 合金经不同温度热处理 1 h 并水淬后基体中 γ' 相和晶界碳化物的 SEM 照片。图 4 表明: 随着热处理温度的提高, 合金基体中 γ' 相均呈球形弥散分布, 但其尺寸逐渐增大而体积分数则逐渐降低。其中, γ' 相平均尺寸分别为 (21.0 ± 4.1) 、 (44.5 ± 8.0) 和 (93.4 ± 19.7) nm, 体积分数分别为 $(25.1 \pm 2.1)\%$ 、 $(14.5 \pm 2.6)\%$ 和 $(8.0 \pm 1.1)\%$, 如图 4a、4b 和 4c 所示。图 5 表明: 随着热处理温度的提高, 合金的晶界碳化物形貌逐渐从细小链状转变为粗大分

散状; 其平均截面厚度分别为 (82.6 ± 17.4) 、 (105.5 ± 17.8) 和 (350.3 ± 31.3) nm, 如图 5a、5b 和 5c 所示。表 2 为 GH4098 合金不同温度热处理 1h 并水淬后样品的显微硬度。表中试验合金的初始显微硬度为 3986 MPa。经过 800, 900 和 1000 $^{\circ}\text{C}$ 热处理 1 h 并水淬后样品的显微硬度分别为 4100, 3741 和 2875 MPa。显微硬度结果表明: 1000 $^{\circ}\text{C}$, 1 h 热处理后样品显微硬度明显降低, 这与合金在 1000 $^{\circ}\text{C}$ 热处理 1 h 后 γ' 相大量溶解存在一定的关系。

上述组织观察结果表明: GH4098 试验合金在不同温度热处理 1 h 后组织发生了明显变化。为了明确上述组织演变对合金高载荷条件下的短时持久性能的影响规律, 对试验合金进行了不同温度、高应力条件下的短时持久试验。

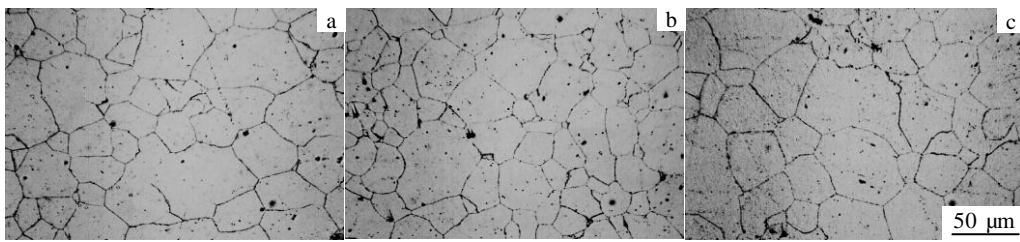


图 3 GH4098 合金经不同温度热处理 1 h 并水淬后的光学显微组织

Fig.3 Optical microstructures of GH4098 alloy after heat treatment at different temperatures for 1 h followed by water quenching: (a) 800 $^{\circ}\text{C}$, (b) 900 $^{\circ}\text{C}$, and (c) 1000 $^{\circ}\text{C}$

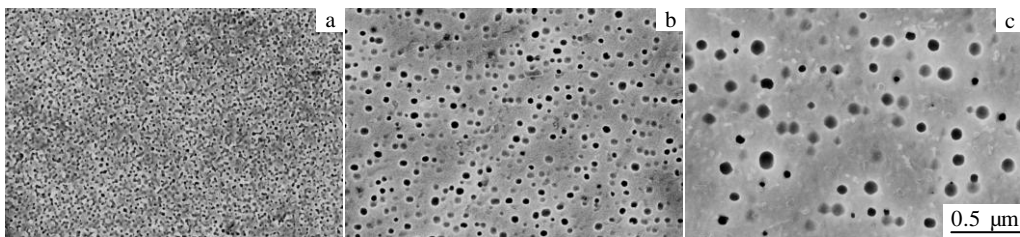


图 4 GH4098 合金经不同温度热处理 1 h 并水淬后基体中 γ' 相的形貌

Fig.4 γ' morphologies in GH4098 alloy after heat treatment at different temperatures for 1 h followed by water quenching: (a) 800 $^{\circ}\text{C}$, (b) 900 $^{\circ}\text{C}$, and (c) 1000 $^{\circ}\text{C}$

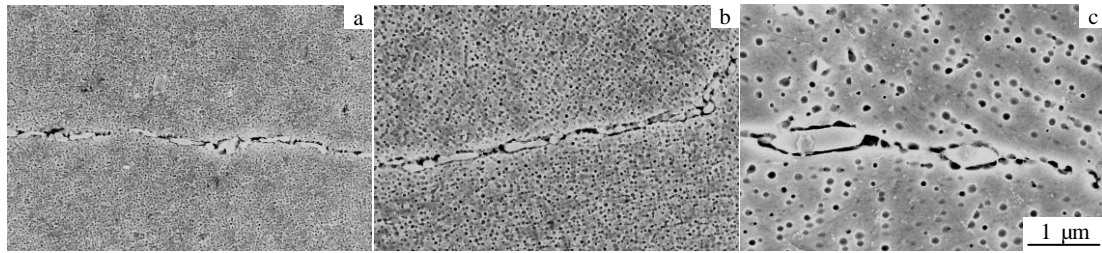


图 5 GH4098 合金经不同温度热处理 1 h 并水淬后晶界碳化物的形貌

Fig.5 Carbide morphologies along grain boundary in GH4098 alloy after heat treatment at different temperatures for 1 h followed by water quenching: (a) 800 °C, (b) 900 °C, and (c) 1000 °C

表 2 GH4098合金的原始样品及经不同温度热处理 1 h后并水淬的样品显微硬度

Table 2 Microhardness of the original sample and the heat-treated samples after heating at different temperatures for 1 h followed by water quenching

Samples	Original sample	800 °C, 1 h	900 °C, 1 h	1000 °C, 1 h
Microhardness / ×10 MPa	398.6±15.6	410.0±10.9	374.1±16.8	287.5±9.2

2.3 短时持久性能

为了对合金的短时持久性能进行分析, 对其短时持久性能数据进行处理。GH4098 合金在 3 种温度下 (800, 900 和 1000 °C) 的持久应力与寿命的关系如图 6a 所示。该图表明: 合金的持久寿命随着温度的升高和应力的增大而下降, 且温度对持久寿命的影响更为明显。当实验温度达到 1000 °C 时, 合金相同持久寿命所对应的应力明显降低。合金在 800, 900 和 1000 °C 持久实验测试 1 h 断裂的持久强度分别为 583, 323 和 102 MPa。

为了确定合金在不同温度下的持久应力指数, 通过如下数学方法对数据进行处理:

稳态蠕变速率与温度和应力的关系如下:

$$\dot{\epsilon} = A \left(\frac{D_{sd} G b}{k T} \right) \left(\frac{\sigma}{G} \right)^n \quad (1)$$

式中, D_{sd} 为点阵自扩散系数, G 为切变模量, b 为柏氏矢量, 将式 (1) 取对数后可以得出:

$$\log \left(\frac{\dot{\epsilon} k T}{D_{sd} G b} \right) = A' + n \log \left(\frac{\sigma}{G} \right) \quad (2)$$

稳态蠕变速率与持久寿命的关系如下:

$$\dot{\epsilon} \cdot t_r = B \quad (3)$$

将式 (3) 代入式 (2)

$$\log \left(\frac{B k T}{t_r D_{sd} G b} \right) = A' + n \log \left(\frac{\sigma}{G} \right) \quad (4)$$

最终可以得到

$$\log \left(\frac{T}{t_r} \right) = n \log \sigma + C \quad (5)$$

将式 (5) 中温度与持久寿命比值与持久应力数据进行拟合, 所得直线斜率即为应力指数 n , 其反映了蠕变速率对应力的敏感程度。将合金在 800, 900 和 1000 °C 持久数据拟合后得出合金在 3 种不同温度下的持久应力指数 n 分别为 12.91, 5.37 和 8.82。

Larson-Miller 曲线通常用来预测合金的持久寿命以及表征合金的持久强度, Larson-Miller 参数 $P = T \times 10^{-3} (\lg t_r + C)$, 其中 T 是绝对温度, t_r 是持久断裂时间, C 是常数, 镍基高温合金中 C 一般取 20^[26]。GH4098 合金的 Larson-Miller 曲线如图 6b 所示, 对合金的持久性能数据进行拟合发现合金在 800, 900 °C 的数据点较好地分布于拟合曲线周围, 但 1000 °C 的持久数据点明显偏离前二者的拟合曲线, 持久性能显著恶化。短时持久性能及表 2 显微硬度测试结果表明 GH4098 合金在 1000 °C 高温力学性能显著退化。

2.4 短时持久后的显微组织

为了进一步确定合金持久断裂的原因, 分别取 800, 900 和 1000 °C 3 种温度下持久寿命均约为 1 h (分别为 1.04, 0.91 和 0.94 h) 的 3 个样品进行组织观察, 持久试样所受应力分别为 590, 320, 100 MPa, 断后延伸率分别为 4.9%, 15.3%, 20.5%。合金在 800, 900 和 1000 °C 下的屈服强度 $\sigma_{0.2}$ 分别为 600, 400 和 130 MPa, 组织观察所选取样品持久应力分别为 $0.98\sigma_{0.2}$, $0.80\sigma_{0.2}$ 和 $0.77\sigma_{0.2}$ 。

由于 GH4098 合金持久断裂后晶粒形貌和晶界碳化物形貌与前述不同温度热处理 1 h 水淬后组织类似, 故仅描述持久断裂后 γ' 相的形貌特征。图 7 所示为实验合金 1 h 持久断裂后距离断口 5 mm 标距部位和距离断口 30 mm 的夹头部位 (视为不受力部位) 纵剖面 γ' 相的形貌特征。如图所示, 随着温度的升高, γ' 相的尺寸逐渐增大, 形状也逐渐从球形向方形转变; 同一温度下, 受应力作用部位与不受应力作用部位组织也

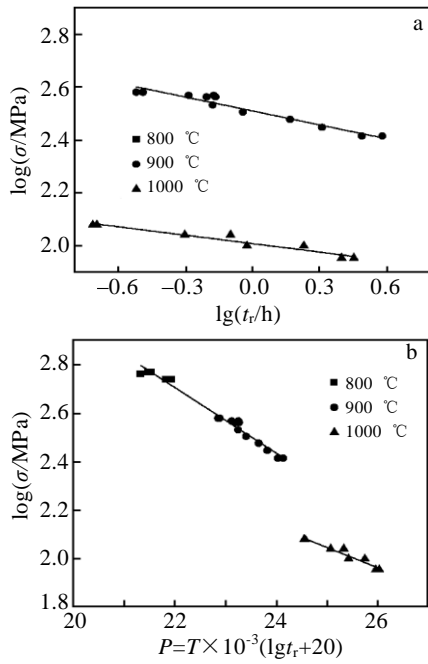


图 6 GH4098 合金持久应力与寿命的关系及 Larson-Miller 曲线
Fig.6 Relationships between rupture stress and rupture time (a) and Larson-Miller curves (b) for GH4098 alloys

存在一定差异。在 800 °C, 590 MPa 下持久测试 1 h 断裂后标距部位与夹头部位组织形貌接近, γ' 相极为细小并呈球形弥散分布, 其平均尺寸分别为 (26.2 ± 4.0) , (26.5 ± 4.0) nm, 体积分数分别为 $(24.0 \pm 3.6)\%$, $(24.2 \pm 2.8)\%$, 如图 7a1 和 7a2 所示。在 900 °C/320 MPa 相同条件测试断裂后标距部位与夹头部位 γ' 相均有所长大且体积分数降低, 其平均尺寸分别为 (48.5 ± 9.8) , (43.0 ± 4.6) nm, 体积分数分别为 $(23.7 \pm 2.2)\%$ 、 $(22.3 \pm 1.5)\%$ 。需要指出的是, 与夹头部位 γ' 相形貌保持球形相比, 标距部位的 γ' 相形貌发生明显的变形而形成近似的椭圆形, 如图 7b1 和 7b2 所示。当持久试验条件为 1000 °C/100 MPa 时, 合金中 γ' 相尺寸明显长大同时体积分数也明显降低。标距部位 γ' 相产生了严重的变形甚至出现碎化现象, 无法统计其尺寸, 其 γ' 相体积分数为 $(17.5 \pm 2.1)\%$; 夹头部位 γ' 相则呈现立方形, 其尺寸为 (115.0 ± 23.1) nm, 体积分数为 $(17.5 \pm 3.3)\%$, 2 个部位均由于炉冷析出部分细小的 γ' 相, 如图 7c1 和 7c2 所示。需要说明的是, 持久实验样品夹头部位温度可能偏离实验温度值, 但通过观察相同温度热模拟后合金显微组织并将其与持久实验样品夹头部位的组织进行对比, 最终证实在本研究中上述影响可以忽略。

2.5 断口形貌

图 8 为 GH4098 合金在不同温度下持久测试 1 h

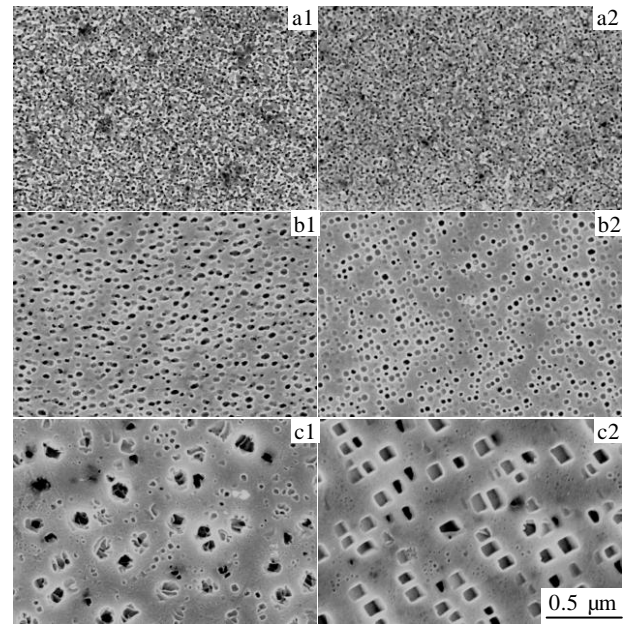


图 7 GH4098 合金在不同温度应力下持久实验测试 1 h 断裂后距离断口 5 mm 标距部位和距离断口 30 mm 夹头部位的显微组织

Fig.7 Microstructures in the gauge length (5 mm away from fracture surface) and in the grip section (30 mm away from fracture surface) of GH4098 alloys after the stress rupture test for 1 h under different temperatures and stresses: (a) 800 °C, 590 MPa, (b) 900 °C, 320 MPa, (c) 1000 °C, 100 MPa; 1-the gauge section, 2-the grip section

断裂后断口纵截面的形貌。如图所示, 随着持久实验温度从 800 °C 提高至 1000 °C, 试样断口纵截面的裂纹数量和长度明显增多。800 °C 持久断裂后断口纵截面仅在局部区域可观察到沿晶裂纹; 900 和 1000 °C 持久断裂后在同一部位观察到大量沿晶裂纹, 并且部分裂纹出现扩展连接的情况, 如图 8a、8b、8c 所示。

图 9 为 GH4098 合金在不同温度下持久测试 1 h 断裂后的断口形貌, 合金在 800, 900 和 1000 °C 持久断裂后断口均呈沿晶塑性断裂特征。不同温度持久断裂后断口晶面存在大量切窝, 如图 9a、9b、9c 箭头所示。

3 分析与讨论

变形高温合金中, 晶粒度、晶界析出相尺寸和分布以及基体上分布的 γ' 强化相的体积分数、尺寸和分布对于合金的蠕变持久性能影响显著^[5, 22]。高温下需合理控制合金的晶粒度, 尽量减少晶界面积以降低晶界滑动的影响; 而晶界析出相和晶内 γ' 强化相的体积分数、尺寸、分布则分别影响合金晶界和基体的强度^[22]。上述因素

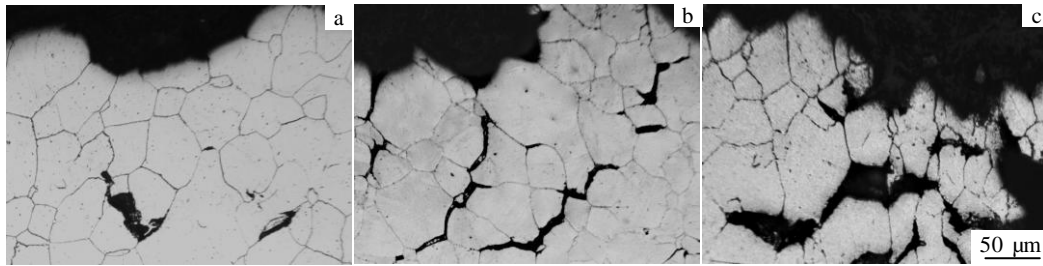


图 8 不同温度应力下持久实验测试 1 h 断裂后 GH4098 合金断口纵剖面金相组织

Fig.8 Optical microstructure in longitudinal section of GH4098 alloys after the stress rupture test at different temperatures and stresses for 1 h: (a) 800 °C, 590 MPa; (b) 900 °C, 320 MPa; (c) 1000 °C, 100 MPa

的综合优化可以显著提高合金的高温力学性能, 以下将结合上述因素对 GH4098 合金的短时持久性能进行讨论和分析。

3.1 GH4098 合金高温短时持久实验的组织损伤与性能退化

本研究中试验合金初始平均晶粒尺寸为 $(37.7 \pm 6.7) \mu\text{m}$, 经过 800, 900 和 1000 °C 热处理 1 h 并水淬后, 合金晶粒大小并无明显变化, 如图 3 所示。其平均晶粒尺寸分别为 $(38.4 \pm 8.6) \mu\text{m}$, $(36.0 \pm 5.4) \mu\text{m}$ 和 $(38.8 \pm 5.8) \mu\text{m}$ 。虽然晶粒尺寸对合金的高温蠕变持久性能有明显影响^[27, 28], 但由于在本研究中 GH4098 合金晶粒尺寸并未随着温度的升高而变化, 不同温度热处理 1 h 后合金晶粒大小基本一致, 因而在本实验中晶粒尺寸并非导致不同温度下合金持久性能差异的主要原因。

在镍基高温合金中 γ' 相作为合金的主要强化相, 对于提高合金的高温力学性能非常重要^[29]。控制 γ' 相的含量、尺寸和分布可以有效地影响合金的屈服强度和蠕变性能^[30]。Chang 等人^[16]研究了 γ' 相含量对 Waspaloy 合金持久性能的影响。结果表明: 提高 γ' 相含量可以有效提高合金的持久性能, γ' 相大量溶入基体会导致合金持久性能显著下降。Buinova 等人^[31]的研究表明: 适当尺寸的第二相粒子细小弥散分布于基体可以有效提高合金的高温强度。Sajjadi 等人^[17]对 Udimet500 合金的研究表明: 减小 γ' 相尺寸可以提高合金的持久寿命, 即使小尺寸的 γ' 相体积分数低于大尺寸的 γ' 相体积分数, 也能提高持久性能。本研究图 4 表明 GH4098 合金在 800 和 900 °C 下保温 (随后水淬冷却), γ' 相平均尺寸分别为 (21.0 ± 4.1) , $(44.5 \pm 8.0) \text{nm}$, 体积分数分别为 $(25.1 \pm 2.1)\%$, $(14.5 \pm 2.6)\%$; 而在 1000 °C 保温 (随后水淬冷却), γ' 相的尺寸明显增大至 $(93.4 \pm 19.7) \text{nm}$, 而体积分数则明显下降至 $(8.0 \pm 1.1)\%$ 。表 2 的维氏显微硬度结果进一步证实了 γ'

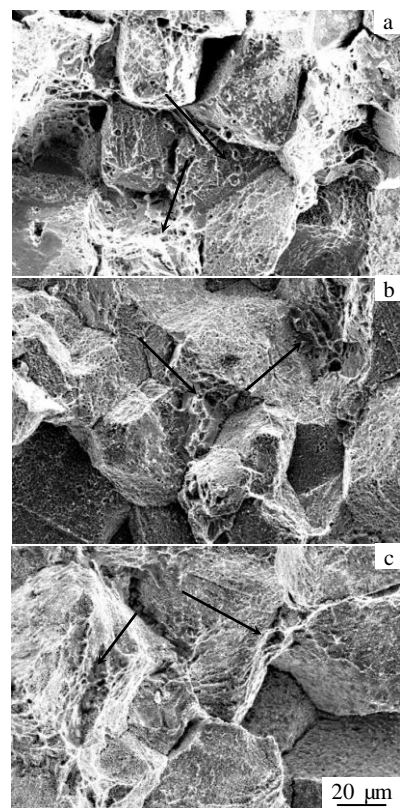


图 9 不同温度及应力下持久实验测试 1 h 断裂后 GH4098 合金断口形貌

Fig.9 Fracture surfaces of GH4098 alloys after the stress rupture test at different temperatures and stresses for 1 h: (a) 800 °C, 590 MPa; (b) 900 °C, 320 MPa; (c) 1000 °C, 100 MPa

相体积分数的降低和尺寸的长大对于合金基体强度的影响。800 °C 保温 1 h 后由于合金中 γ' 相体积分数 (25.1%) 相对于合金初始组织中 γ' 相体积分数 (26.6%) 并无明显变化, 故其显微硬度 (4100 MPa) 与合金初始硬度 (3986 MPa) 接近。在 900 °C 保温 1 h

后合金中 γ' 相体积分数降低 (14.5%), 其显微硬度有一定程度下降 (3741 MPa)。在 1000 °C 保温 1 h 后合金中 γ' 相体积分数明显降低 (8.0%), 其显微硬度迅速降至 2875 MPa。

除了 γ' 相以外, 碳化物作为镍基高温合金的另一强化相, 对于提高合金的高温力学性能也非常重要。关于晶界碳化物对于金属高温力学性能影响的研究报道较多^[5, 15, 19, 20, 32]。一般认为碳化物均匀分布于晶界上可以减少晶界的自由滑动距离, 支持晶界上的弛豫应力, 阻止空穴的串联长大, 对提高合金的蠕变持久性能具有重要的作用^[33]。Tanaka^[32]等对奥氏体不锈钢的研究表明: 晶界碳化物的溶解加快了晶界滑动以及裂纹萌生, 持久强度与晶界碳化物的密度和稳定性有关。Yang 等人^[19]对 IN792 合金拉伸及持久性能的研究表明晶间碳化物可以阻碍晶界孔洞的形成以及裂纹的扩展。这是由于晶界碳化物一般在晶界起钉扎作用, 因而可以有效阻碍晶界滑动和微裂纹的形成^[20]。图 5 显示短时持久实验开始之前, 合金在 800, 900 °C 热处理 1 h 水淬后晶界碳化物均呈细小链状分布于晶界, 而 1000 °C 热处理后碳化物尺寸出现明显突变, 粗大的碳化物呈现分散状分布, 相邻碳化物之间间距较大。碳化物尺寸影响晶界形成孔洞的能力, 大的碳化物更易产生应力集中^[34]。另外部分小尺寸碳化物溶解以及碳化物之间间距增大则造成碳化物对晶界的钉扎作用减弱, 导致晶界裂纹的萌生和扩展。

综上所述, 在本研究中随着持久实验温度的提高, 合金 γ' 相的体积分数逐渐降低, 同时 γ' 相和晶界碳化物逐渐粗化, 相邻碳化物间距增大。上述组织演变一方面造成 γ' 相对基体的强化作用降低; 另一方面造成碳化物更易产生应力集中同时对晶界滑动的阻碍作用下降。二者是导致 GH4098 合金短时持久性能随温度升高而逐渐降低并在 1000 °C 短时持久性能显著恶化的主要原因。

3.2 短时持久实验条件对断后组织的影响

为了反映合金高温下的组织特征, 采用水淬冷却方式得到如图 4 所示的组织; 而受制于持久实验条件, 持久实验测试断裂后试样均为随炉冷却, 其组织如图 7 所示, 二者组织存在一定程度差异。为了明确上述组织差异的原因, 考虑到短时持久实验过程包括 1 h 保温和 1 h 持久实验测试, 因而本实验对合金在 800~1000 °C 保温 2 h 后分别进行水淬冷却和随炉冷却实验, 结果表明: 不同温度保温 2 h 水淬冷却后合金中 γ' 相的形貌均呈球形, 其体积分数与尺寸与前述不同温度保温 1 h 水淬冷却后合金中 γ' 相接近。不同温度保温 2 h 随炉冷却后合金中 γ'

相的体积分数、尺寸和形貌则与前述持久实验测试 1 h 断裂后试样夹头部位 γ' 相组织演变规律接近。需要说明的是, 由于篇幅有限, 此处并未列出具体图片。通过上述对比分析研究认为图 4 和图 7 的组织差异源于不同的冷却速度。

首先, 冷却速度对 γ' 相析出量和尺寸有一定影响。Mao 等人的研究表明: 将 U720LI 合金在 1175 °C 保温 5 min 后控温冷却, 当冷却速度从 171.6 °C/min 降低至 11.0 °C/min 后, 合金的 γ' 相体积分数从 33.3% 提高至 44.1%, γ' 相尺寸则从 166 长大至 440 nm^[35]。本研究在 800 °C/590 MPa 持久实验测试 1 h 断裂后, 合金夹头部位 γ' 相体积分数和尺寸较持久实验前无明显变化 (图 4a 和图 7a2)。但是, 900 °C/320 MPa 和 1000 °C/100 MPa 相同条件断裂后合金夹头部位 γ' 相体积分数从持久实验前的 14.5% 和 8.0% 分别提高至 22.3% 和 17.5%; 与相同温度持久实验前水淬组织相比, 持久断裂后合金夹头部位 γ' 相尺寸在 900 °C 亦未发生明显变化, 但在 1000 °C γ' 相尺寸从持久实验前的 93.4 nm 提高至 115.0 nm (图 4b 和图 7b2 与图 4c 和图 7c2)。这主要是因为实验温度显著提高, 炉冷冷却时间较长, Al、Ti 等合金元素扩散性提高且有时间充分扩散, 促进了 γ' 相的析出长大^[36]。此外, 冷却速度对于 γ' 相的形貌也有一定影响。 γ' 相形貌变化主要取决于界面能和晶格错配引起的应变能。Behrouzghaemi 等人研究表明: γ' 相由球形转变为立方状需要粗化到一个临界尺寸^[37]。为了使其固态相变过程中界面能和应变能的总和最小, 当 γ' 相尺寸低于临界尺寸时, γ' 相呈球形长大; 而当 γ' 相尺寸高于临界尺寸后, 则以立方状长大^[6, 37, 38]。本研究中 800 °C/590 MPa、900 °C/320 MPa 持久实验测试 1 h 断裂炉冷后合金夹头部位 γ' 相呈现球形分布 (图 7a2 和 7b2), 而 1000 °C/100 MPa 同样条件下合金夹头部位 γ' 相则呈现为立方状 (图 7c2)。上述结果表明: 在 800 和 900 °C 下, 与相同温度保温 1 h 水冷后样品相比, 尽管炉冷过程为 Al、Ti 等 γ' 相形成元素向 γ' 相中扩散提供了额外的时间, 但是由于 γ' 相没有达到临界尺寸, 因此其形貌呈球形分布。在 1000 °C 下, 由于测试温度很高使得 γ' 相在炉冷过程中长大到临界尺寸, 并由于 Al、Ti 等元素在高温下扩散显著增加了 γ' 相与基体的错配度, 但同时相应的界面能也要降低, 故其形貌呈立方状分布。

图 7 同时表明应力状态对于合金 γ' 相形貌也有一定影响。如前所述, 组织观察所选取样品在 800, 900 和 1000 °C 的持久应力分别为 $0.98\sigma_{0.2}$ 、 $0.80\sigma_{0.2}$ 和 $0.77\sigma_{0.2}$ 。800 °C/590 MPa 持久实验测试 1 h 断裂并炉

冷后由于温度较低, 标距部位 γ' 相形貌与夹头部位类似, 未发生明显变化(图 7a1)。但是, 900 °C/320 MPa 和 1000 °C/100 MPa 相同条件下合金标距部位 γ' 相则分别呈椭圆形和碎化状分布(图 7b1 和图 7c1)。上述结果表明: 在短时持久实验过程中, 在高温下如此高的应力直接促使 γ' 相呈椭圆形和碎化状分布, 这与低应力、低 γ' 相体积分数的变形高温合金中 γ' 相形貌不受应力影响的报道有所不同^[39]。

3.3 GH4098 合金短时持久行为与传统持久行为的异同

蠕变一般是指材料在高温和低于材料宏观屈服强度的应力下发生的缓慢的塑性变形^[3], 蠕变温度通常高于 $0.5T_m$, 蠕变应力通常远低于 $0.5\sigma_{0.2}$, 持久寿命 t_r 一般从几十小时至几百小时甚至上万小时不等^[23]。本研究的短时蠕变, 其蠕变温度介于 $0.65T_m \sim 0.77T_m$, 但蠕变应力高达 $0.65\sigma_{0.2} \sim 0.98\sigma_{0.2}$, 而持久寿命仅为 10 min~3 h。与传统蠕变不同的是, 其蠕变应力极高而持久寿命极低, 元素扩散过程非常不充分。

通常用一定温度下的 $\lg\sigma\text{-}\lg t_r$ 双对数曲线和考虑温度时间综合参数的 Larson-Miller 曲线来处理持久性能数据。传统蠕变研究认为持久寿命的对数与持久应力的对数呈直线关系, 而 Larson-Miller 曲线的数据点则应较好地分布于拟合曲线周围^[3, 23]。本研究通过上述方法对 GH4098 合金的短时持久性能进行分析。结果表明: GH4098 合金在 800, 900 和 1000 °C 3 种温度下, 持久应力和持久寿命均符合双对数线性关系(图 6a)。图 6a 表明: 在高温高应力的条件下, 也可以通过 $\lg\sigma\text{-}\lg t_r$ 双对数处理法对合金不同温度一定应力条件下的短时持久寿命或不同温度一定断裂时间条件下的持久强度进行预测。同时, 对合金的持久性能数据进行 Larson-Miller 曲线拟合发现合金在 800 和 900 °C 的数据点较好地分布于拟合曲线周围, 但在 1000 °C 的持久数据点明显偏离前二者的拟合曲线(图 6b)。这与高温合金手册中合金传统蠕变持久行为存在明显差异^[23]。产生上述差异的原因除了与短时蠕变应力非常大、断裂时间非常短、元素扩散不充分密切相关外, 也应与前面提到的 γ' 相体积分数的显著降低, γ' 相和晶界碳化物的粗化等组织退化因素有关。

传统蠕变理论认为晶体的蠕变分为位错蠕变、扩散蠕变和晶界滑动蠕变 3 种^[6]。在高于 $0.4T_m$ 的温度下, 由于晶界上的原子容易扩散, 受力后晶界两侧晶体易发生相对运动, 即晶界滑动, 但晶界滑动对蠕变的贡献并不大, 其主要起协调晶内变形的作用^[40]。Crossman 和 Ashby^[41]的研究表明: 在高应力(低于 $0.5\sigma_{0.2}$)下, 多晶体蠕变速率与晶内蠕变速率相同, 几乎不发生晶界滑动; 而在低应力下晶界滑动对多晶

体蠕变速率的贡献较大。高温和高应力(低于 $0.5\sigma_{0.2}$)作用下, 由于应变速率较大, 位错滑移占重要地位, 若位错滑移受阻则通过攀移或者交滑移到邻近的滑移面继续滑移, 即位错蠕变^[6]。当温度很高($0.9T_m$)和应力很低时, 变形由高温应力作用下的空位移动造成, 即扩散蠕变^[6]。发生扩散蠕变的条件是应力足够低, 使得晶体内位错密度很低; 而温度足够高, 使得原子扩散速度很快^[3]。如前所述, 为了获得 10 min~3 h 的短时持久性能数据, 本研究在 800, 900 和 1000 °C 下选取的持久应力均较大, 非常接近合金的屈服强度, 其变形条件介于传统蠕变和高温拉伸之间。但是, 考虑到位错运动机制也是材料高温拉伸的主要变形机制, 并综合上述讨论, 认为本研究中 GH4098 合金的短时蠕变变形机制应为位错蠕变机制。

镍基固溶合金蠕变过程中, 位错越过 γ' 相粒子的方式主要包括: 切割机制、绕过机制、攀移机制和位错带动溶质原子的粘滞运动^[4, 7, 42]。利用式(5)对温度与持久寿命比值与持久应力数据进行拟合可得出应力因子(n 值), 其反映了蠕变速率对应力的敏感程度。通常认为上述后 2 种位错机制所对应的 n 值较低, 位错切割机制和绕越机制对应的 n 值相对较高, 但对其数值范围还很难界定^[7, 43]。目前, 一般认为在某一特定温度存在一临界应力, 当施加应力大于临界应力, 即高应力范围(通常低于 $0.5\sigma_{0.2}$), γ' 相沉淀强化的高温合金的蠕变机制为位错切割机制或 Orowan 绕越机制, 此时应力指数 n 较大(通常大于 10)。当施加应力不足以开动这两种机制时, 即在施加应力小于临界应力时(低应力范围), 位错只能通过热激活攀移机制克服 γ' 相障碍, 此时应力指数 n 较小(通常介于 3~7)^[8, 9, 42]。本实验将温度与持久寿命比值与持久应力数据进行拟合, 计算得出合金在 800、900 和 1000 °C 下的持久应力指数 n 分别为 12.91, 5.37 和 8.82。如前所述, 为了获得 10 min~3 h 的短时持久性能数据, 本研究在 800, 900 和 1000 °C 下选取的持久应力均较大($0.65\sigma_{0.2} \sim 0.98\sigma_{0.2}$), 远高于相同温度条件下类似合金长时蠕变所加载的应力(低于 $0.5\sigma_{0.2}$)。但是合金 900 和 1000 °C 下的持久应力指数却较低(分别为 5.37 和 8.82), 这与传统蠕变理论不相吻合。如前所述, 与 800 °C 热处理 1 h 水淬后合金组织相比, 当温度升高至 900 和 1000 °C 后, 相同条件下合金 γ' 相的体积分数降低, 同时 γ' 相和晶界碳化物粗化, 高温下合金短时持久抗力显著下降; 加之合金蠕变应力很高且持久寿命很低造成其蠕变过程的不充分。另外, 在这一温度区间内, 由位错运动引起的短时蠕变变形机制也会有所不同。上述因素的综合作用造成 GH4098 合金在高温

高应力下的持久应力指数偏低。合金在高温高应力作用下短时位错蠕变机制还有待进一步研究。

4 结 论

1) 在所研究的温度范围内, GH4098 合金的短时持久寿命随着温度和应力的提高而下降, 且温度对短时持久寿命的影响更为明显。

2) GH4098 合金在 3 种不同温度下短时持久应力和断裂寿命均符合双对数线性关系。合金在 800, 900 和 1000 °C 持久实验测试 1 h 断裂的持久强度分别为 583, 323 和 102 MPa, 短时持久应力指数 n 分别为 12.91, 5.37 和 8.82。

3) GH4098 合金在所研究的温度范围内短时持久断裂模式均为沿晶塑性断裂, 断口晶面出现大量韧窝。

4) 在 1000 °C 时, 合金的短时持久性能数据明显偏离 Larson-Miller 曲线, 持久性能显著降低。随着温度的提高, GH4098 合金晶粒度无明显变化, 而 γ' 相体积分数的降低以及 γ' 相和晶界碳化物的粗化是合金短时持久性能显著退化的主要原因。

参考文献 References

- [1] Shen Juan(沈娟), Li Jian(李舰). *Aerodynamic Missile Journal*(飞航导弹)[J], 2013(01): 86
- [2] Ma Li(马丽), Yang Jianjun(杨建军), Zhang Weigang(张维刚). *Aerodynamic Missile Journal*(飞航导弹)[J], 2012(06): 22
- [3] Zhang Junshan(张俊善). *High Temperature Deformation and Fracture of Materials*(材料的高温变形与断裂)[M]. Beijing: Science Press, 2007: 205
- [4] Tawancy H M. *J Mater Sci Lett*[J], 1995, 14(20): 1421
- [5] Xu Y L, Jin Q M, Xiao X S *et al. Mater Sci Eng A*[J], 2011, 528(13-14): 4600
- [6] Hu Gengxiang(胡赓祥), Cai Xun(蔡珣), Rong Yonghua(戎咏华). *Fundamentals of Materials Science*(材料科学基础)[M]. Shanghai: Shanghai Jiaotong University Press, 2006: 216
- [7] Hou Jieshan(侯介山), Zhang Yulong(张玉龙), Guo Jianting(郭建亭) *et al. Acta Metallurgica Sinica*(金属学报)[J], 2004, 40(06): 579
- [8] Guo Jianting(郭建亭), Yuan Chao(袁超), Hou Jieshan(侯介山). *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*(中国有色金属学报)[J], 2011, 21(03): 487
- [9] Guo Jianting(郭建亭). *Acta Metallurgica Sinica*(金属学报)[J], 2010, 46(11): 1303
- [10] Bukhanovskii V V, Kharchenko V K, Kravchenko V S *et al. Strength Mater*[J], 1990, 22(5): 671
- [11] Merkulov V N, Kotov P I, Lebedev V M. *Strength Mater*[J], 1972, 4(11): 1346
- [12] Bertilsson H, Delin M, Kubá J *et al. Rheol Acta*[J], 1993, 32(4): 361
- [13] Bukhanovskii V V, Kharchenko V K, Povarova K B *et al. Strength Mater*[J], 1987, 19(9): 1216
- [14] Torster F, Baumeister G, Albrecht J *et al. Mater Sci Eng A*[J], 1997, 234-236: 189
- [15] He L Z, Zheng Q, Sun X F *et al. Mater Sci Eng A*[J], 2005, 397: 297
- [16] Chang K M, Liu X B. *Mater Sci Eng A*[J], 2001, 308: 1
- [17] Sajjadi S A, Elahifar H R, Farhangi H. *J Alloy Compd*[J], 2008, 455: 215
- [18] Kakehi K. *Mater Sci Eng A*[J], 2000, 278: 135
- [19] Yang J X, Zheng Q, Ji M Q *et al. Mater Sci Eng A*[J], 2011, 528: 1534
- [20] Chen Q Z, Jones C N, Knowles D M. *Mater Sci Eng A*[J], 2004, 385: 402
- [21] Ohsaki S, Takahashi T, Imano S *et al. Advances in Materials Technology for Fossil Power Plants-Proceedings from the 6th International Conference*[C]. Santa Fe: ASM International, 2011: 361
- [22] Chen Guoliang(陈国良). *Study of Superalloy*(高温合金学)[M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 1988: 8
- [23] High Temperature Materials Branch of Chinese Metals Society(中国金属学会高温材料分会). *China Superalloys Handbook*(中国高温合金手册)[M]. Beijing: Standards Press of China, 2012: 592
- [24] Meng Zhaobin(蒙肇斌), Wang Yanqing(王延庆), Yin Fajie(尹法杰) *et al. Journal of Iron and Steel Research*(钢铁研究学报)[J], 2003, 15(6): 54
- [25] Sun Kuiping(孙魁平), Zhou Yiling(周一玲), Yang Zhe(杨喆) *et al. Journal of Iron and Steel Research*(钢铁研究学报)[J], 2003, 15(7): 45
- [26] Koul A K, Castillo R, Willett K. *Mater Sci Eng*[J], 1984, 66: 213
- [27] Wilshire B, Palmer C J. *Scripta Mater*[J], 2002, 46(7): 483
- [28] Sherby O D, Taleff E M. *Mater Sci Eng A*[J], 2002, 322: 89
- [29] Ecob R C, Ricks R A, Porter A J. *Scripta Metall*[J], 1982, 16(09): 1085
- [30] Yao Zhihao(姚志浩), Dong Jianxin(董建新), Zhang Maicang(张麦仓) *et al. Transactions of Materials and Heat Treatment*(材料热处理学报)[J], 2011, 32(07): 44
- [31] Buinova L N, Pushin V G, Gornostyrev Y N *et al. Nanostruct Mater*[J], 1998, 10(03): 397
- [32] Tanaka H, Murata M, Abe F *et al. Mater Sci Eng A*[J], 1997, 234-236: 1049

- [33] Yan Minggao(颜鸣皋), Chen Xueyin(陈学印). *Acta Metallurgica Sinica*(金属学报)[J], 1964, 7(03): 307
- [34] Cocks A C F. *Acta Metall*[J], 1985, 33(01): 129
- [35] Mao J, Chang K M, Yang W H *et al.* *Metall Mater Trans A*[J], 2001, 32(10): 2441
- [36] Mitchell R J, Preuss M, Tin S *et al.* *Mater Sci Eng A*[J], 2008, 473: 158
- [37] Behrouzghaemi S, Mitchell R J. *Mater Sci Eng A*[J], 2008, 498: 266
- [38] Liang Yongchun(梁永纯), Yuan Chao(袁超), Guo Jianting(郭建亭) *et al.* *Proceeding of the 11th Chinese Symposium on Superalloys*(第十一届中国高温合金年会论文集)[C]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2007: 232
- [39] Sims C T, Stoloff N S, Hagel W C. *Superalloys II*[M]. New York: John Wiley & Sons, Inc, 1987: 110
- [40] Yang Wangyue(杨王玥), Qiang Wenjiang(强文江). *Mechanical Behavior of Materials*(材料力学行为)[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2009: 165
- [41] Crossman F W, Ashby M F. *Acta Metall*[J], 1975, 23(04): 425
- [42] Yuan Chao(袁超), Guo Jianting(郭建亭), Yang Hongcai(杨洪才). *Acta Metallurgica Sinica*(金属学报)[J], 2002, 38(11): 1149
- [43] Hou Jieshan(侯介山), Guo Jianting(郭建亭), Zhou Lanzhang(周兰章) *et al.* *Proceeding of the 11th Chinese Symposium on Superalloys*(第十一届中国高温合金年会论文集)[C]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2007: 326

Short Time Stress Rupture Property in GH4098 Alloy

Yuan Xiaofei, Ding Xianfei, Yagi Koichi, Zheng Yunrong, Feng Qiang

(National Centre for Materials Service Safety, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

Abstract: Short time stress rupture properties (10 min~3 h) of GH4098 alloy have been investigated at different temperatures (800~1000 °C) and stresses (90~680 MPa) after solution and aging treatment, combined with the characterization of microstructures and fracture features. The results show that fracture features of GH4098 alloy are ductile and intergranular in all temperature range. Short time stress rupture properties of the alloy degrade gradually with increasing the testing temperature, but they are significantly worse at 1000 °C. Microstructural characterization indicates that there is little change in grain size with increasing the temperature. The deterioration of short time stress rupture properties at higher temperature is ascribed to the reduction of γ' volume fraction as well as the coarsening of γ' precipitates and grain boundary carbides. In addition, the influence of cooling rate on microstructures as well as the differences between short time creep and traditional creep was also discussed.

Key words: GH4098 alloy; stress rupture property; microstructure; fracture

Corresponding author: Feng Qiang, Professor, National Centre for Materials Service Safety, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, P. R. China, Tel/Fax: 0086-10-62333584/62329915, E-mail: qfeng@skl.ustb.edu.cn