

X 射线衍射法测量单晶高温合金的取向

赵新宝, 刘 林, 余竹焕, 刘 刚, 傅恒志

(西北工业大学 凝固技术国家重点实验室, 陕西 西安 710072)

摘 要: 以镍基单晶高温合金 AM3 为研究对象, 介绍一种 X 射线衍射法测量单晶体取向的原理。该方法采用 X 射线 θ 扫描与试样自转相结合, 使晶面法线多次通过衍射面来获得晶体晶面与试样外表面的夹角关系。通过实例计算与实验结果相比较验证了该方法的可靠性, 说明高温合金单晶取向性及判定的方法。该方法操作简单、结果精确, 是确定单晶高温合金取向的有效途径。

关键词: X 射线衍射; 取向偏离角; 单晶高温合金

中图法分类号: O722

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2009)07-1280-04

单晶高温合金具有良好的高温持久性能和蠕变强度, 在航空发动机叶片和地面燃气机中有较多的应用, 但单晶高温合金具有显著的各向异性, 其取向性大大地影响了其力学性能。因此, 对单晶高温合金要精确控制其取向, 在制备和使用中要确定晶体的宏观表面、轴线等与晶体位向的关系, 需要大量测量取向。

目前, 测量晶体取向的方法主要有劳埃照相法、四圆衍射仪法、电子背散射衍射(EBSD)等。劳埃法是测量晶体取向较常用的一种方法^[1,2], 采用连续的 X 射线照射单晶, 但如果试样中存在残余应力, 可能影响劳埃斑点的分布, 且需要借助吴氏网来测量晶体的空间取向, 冲洗底片麻烦, 周期长, 对大量测量取向不太适用^[3]。四圆衍射仪法需逐点收集衍射数据, 速度慢且灵敏度低。电子背散射衍射可进行不同晶粒取向的测量, 对微区进行织构分析, 并能得到取向在显微组织中的分布^[4], 但是目前国内大专院校和研究院所应用的还不是很多, 且使用费用昂贵。本研究采用的是一种改进的 X 射线衍射法^[5], 具有速度快、成本低、测量精确等特点, 能精确测定单晶高温合金的取向。

1 实 验

实验采用 AM3 镍基单晶高温合金, 其化学成分为: Cr7.82, Co5.34, Mo2.25, W4.88, Al6.02, Ti1.94, Ta3.49, C0.006, Ni 余量。通过深过冷凝固的方法获得晶粒只有十几个微米大小的多晶, 利用籽晶法在定向凝固装置上制备单晶。将试样进行细磨、抛光, 然后用成分为: $\text{FeCl}_3(8 \text{ g})+14 \text{ mL HCL}+21 \text{ mL H}_2\text{O}$ 腐蚀

剂进行腐蚀。晶体取向的测定在日本理学 X 射线衍射仪(D/MAX-2400)上进行, 采用 Cu 靶辐射, 其射线波长是 0.154 06 nm 。

2 结果及分析

2.1 晶体取向的测定

图 1 是 AM3 合金多晶和单晶的显微组织。对于面心立方点阵结构的晶体, 只有晶面指数 h 、 k 、 l 全为奇数或者偶数时, 才能产生衍射^[6]。AM3 镍基单晶高温合金是一种面心立方多元多相的固溶体, 因此可能发生衍射的晶面为(111)、(200)、(220)等。

图 2a 为对 AM3 合金多晶试样在 $30\sim 100^\circ$ 进行 $\theta\sim 2\theta$ 联动扫描的 XRD 图谱。结果发现, (111)、(200)和(220)晶面衍射时 $2\theta_{(hkl)}$ 分别为 44.10° , 51.38° 和 75.64° ($\theta_{(hkl)}$ 为晶面发生衍射时 X 射线与晶面(hkl)的夹角)。

对未知取向单晶的测量, 需要把衍射仪的接受器探头分别置于这些角度, 从小角度开始依次进行 θ 扫描, 同时试样绕此被测表面法线轴进行自转, 依次验证可能出现的晶面。结果发现, 接受器探头在 44.10° 和 51.38° 值时, 看不到明显的衍射峰, 在 75.64° 位置时, 出现了一对衍射峰, θ_1 、 θ_2 的值分别是 16.60° 和 58.48° (如图 2b 所示)。由此说明与此晶体被侧面最接近的晶面不是(111)和(200), 而是(220)。由式(1)和(2):

$$\phi = \frac{\theta_1 - \theta_2}{2} \quad (1)$$

$$\theta_{(hkl)} = \frac{\theta_2 + \theta_1}{2} \quad (2)$$

收稿日期: 2008-06-23

基金项目: 国家自然科学基金(50771081, 50395102)

作者简介: 赵新宝, 男, 1982 年生, 博士生, 西北工业大学 凝固技术国家重点实验室, 陕西 西安 710072, 电话: 029-88494080, E-mail: zhxb001@163.com

可得 ϕ 为 20.94° , $\theta_{(220)}$ 为 37.54° , 说明(220)晶面与该表面的夹角是 20.94° , 该合金(220)的衍射角是 37.54° 。另外发现 θ_1 和 θ_2 之和为 75.08° , 略小于 2θ 值, 在误差范围之内(衍射峰宽化, 可造成 θ_1 和 θ_2 取值误差)。用此方法在另外的 AM3 合金单晶实验过程中, 发现

有的晶体表面在不同衍射角处均可发生衍射, 如图 2c 所示, 此表面与(200)的夹角为 21.16° , 与(220)面夹角为 33.00° 左右。晶体的取向是指与该端面法线最近的方向, 因此该端面的晶面是(200)。

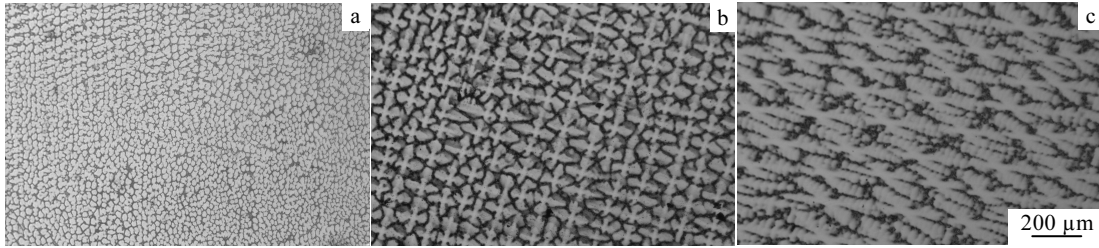


图1 AM3 合金的微观组织

Fig.1 Microstructure of AM3 superalloys: (a) multi-alloy; (b) transverse section of single crystal; and (c) longitudinal section of single crystal

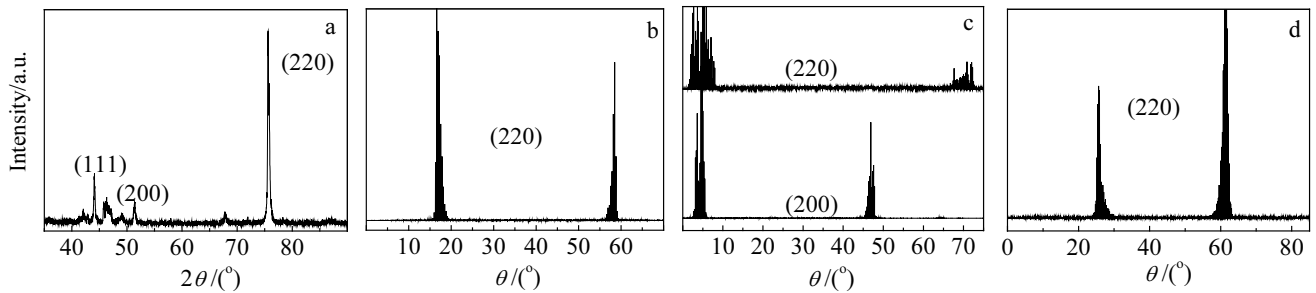


图2 试样的 XRD 图谱

Fig. 2 XRD patterns of samples: (a) multi-alloy AM3; (b, c) single crystal AM3; and (d) single crystal Mo

2.2 测定原理分析

入射 X 射线照射在单晶试样表面, 如果晶面(hkl)与试样被测外表面完全重合, 则只能在某一特定的位置角 θ (X 射线入射线与外表面的夹角)处发生衍射, 且衍射仪的接受器探头只能接受到 1 个衍射峰。如果晶面与外表面存在一定夹角 ϕ , 则该晶体的取向与外表面轴向的偏角也是 ϕ 。如图 3a 所示, 在某一初始位置进行 X 射线衍射时, 如果 X 射线入射线与外表面的夹角 θ 大于 $\theta_{(hkl)}$, 若要得到此晶面的衍射峰, 则要对 θ 角进行调整, 使接受器的探头置于 $2\theta_{(hkl)}$ 处。在衍射仪上进行 θ 扫描, 探头旋转到 $2\theta_{(hkl)}$ 时发生衍射, 位置关系如图 3b 所示, 得到晶面夹角与衍射角的关系为式(3):

$$\theta_1 = \theta_{(hkl)} - \phi \quad (3)$$

若在初始位置 X 射线入射线与外表面的夹角 θ 小于 $\theta_{(hkl)}$, 在进行 θ 扫描时候的同时, 探头同样要调整到 $2\theta_{(hkl)}$, 位置分别如图 3c 和 3d 所示, 此时晶面夹角与衍射角的关系为式(4):

$$\theta_2 = \theta_{(hkl)} + \phi \quad (4)$$

联立式(3)和式(4)得到晶面(hkl)的衍射角以及与

被测表面的夹角, 如公式(1)和(2)。

在实际单晶体中为得到相应 θ_1 和 θ_2 的值, 需要使试样不断的自转, 且自转的速度远远大于试样绕测角仪转速, 这样晶面法线就有多次通过衍射面的机会^[5,7]。

2.3 结果的准确性分析

对 AM3 合金多晶试样测得(200)的衍射角 $\theta_{(220)}$ 为 37.82° , 而计算出的值为 37.54° , 误差很小。试样表面在切割磨光过程中造成表面的不平整, 以及在衍射仪上的安放位置、仪器精度等, 均可造成上面的误差。Cu 靶特征谱波长 λ 也已知, 由晶格常数与晶面指数、晶面衍射角公式关系:

$$a = \frac{\lambda \sqrt{h_1^2 + k_1^2 + l_1^2}}{2 \sin \theta_1} = \frac{\lambda \sqrt{h_2^2 + k_2^2 + l_2^2}}{2 \sin \theta_2} \quad (5)$$

$$\sqrt{3}a = 4R \quad (6)$$

(式中 a 为晶格常数)可推出(111)和(200)的晶面衍射角^[6], 分别计算得出(111)和(200)的 $\theta_{(111)}$ 、 $\theta_{(200)}$ 为 21.91° 和 25.52° , 与 XRD 测试多晶的结果相近, 说明此方法的可靠性。

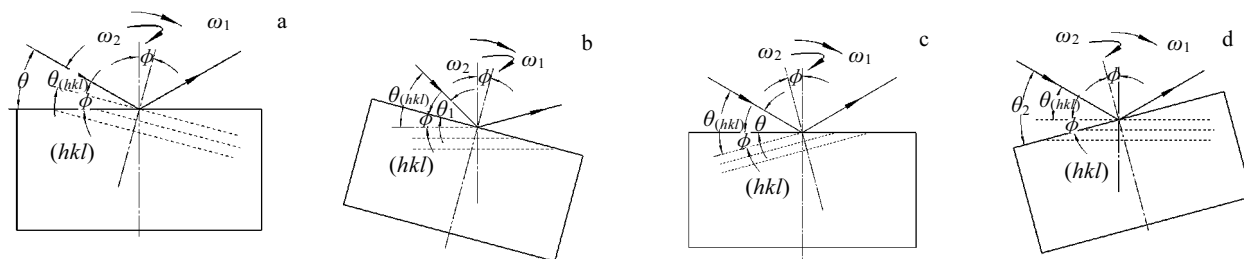


图 3 衍射时晶面与晶体外表面的关系

Fig.3 Relationship between (hkl) and surface of the sample at the diffraction positions

同时对体心立方单相 Mo 单晶进行了 X 射线衍射取向测定, 其衍射图谱如图 2d 所示, θ_1 和 θ_2 的值分别为 25.44° 和 61.38° , 得出晶面与测量端面的夹角为 17.97° 。Mo 的原子半径 r 为 0.1363 nm , 由式(5)和式(6)计算得出其(220)的 $\theta_{(220)}$ 值是 43.79° , 实验测出的 $\theta_{(220)}$ 为 43.66° , 试验结果基本与理论计算相符合, 同样说明了这种试验方法的可靠性, 可以推广到一般单晶的定向。

2.4 单晶判定及取向性分析

对 AM3 合金单晶进行取向测定的时候, 发现其衍射图谱的包络线是阶梯状的, 并不是平滑的, 且有一定程度的宽化; 甚至有的试样衍射图出现了两对衍射峰(图 4a), 从而可能误认为此试样为多晶。镍基单晶高温合金是具有嵌镶结构的晶体, 由大量的胞、枝晶等亚结构组成, 存在较多的亚晶界、第二相等, 且亚晶粒间存在一定的位向差。X 射线衍射仪所用的 X 光为准平行 X 光^[8], 均有几分到几度的分散度, X 光照射晶体时可能不止一个亚晶粒发生衍射, 因此可能

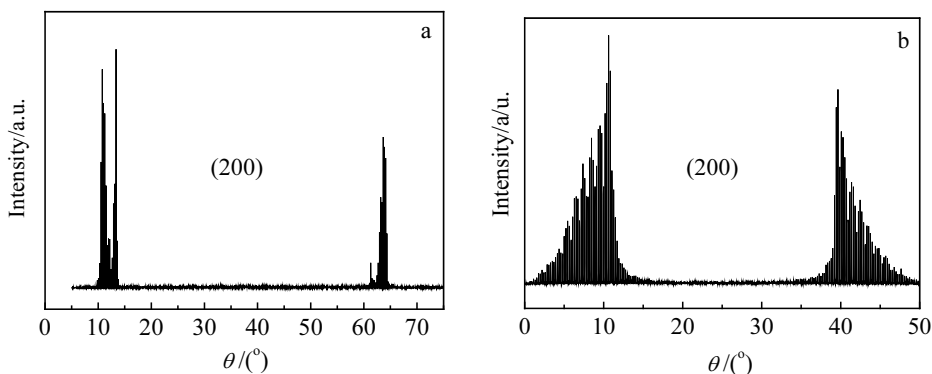


图 4 AM3 合金的 XRD 图谱

Fig.4 XRD patterns of AM3 alloy: (a) two pairs of symmetry peaks and (b) wide symmetry peaks

出现两对峰或者多对峰, 这时需要与试样的金相组织相结合, 观察枝晶排列是否规整, 是否存在明显晶界等条件综合来判定^[9]。准平行 X 光与嵌镶结构相结合, 造成了宽化的阶梯状的包络线, 同时实验发现, 若单晶中的枝晶组织比较粗大, 其宽化程度会加重。取向分散度往往用阶梯包络线的半宽高来表示, 较好单晶的半宽高应控制在很小范围之内。图 4b 中的衍射图谱, 其包络线半宽高明显宽大, 说明该晶体取向分散, 晶体质量不高。

3 结 论

1) 根据 X 射线衍射仪法来测定单晶高温合金取向的原理, 利用该 X 射线衍射仪法测定镍基单晶高温合金的晶体取向, 得到镍基单晶高温合金(200)和(220)面与晶体轴向的偏离角: 其 θ 扫描曲线是一一对称的衍射峰, 峰宽越小取向性越好。

2) 利用 X 射线衍射仪法来测定单晶高温合金的取向, 在出现多对衍射峰时需要与其金相组织相结和来综合判定其是否为单晶。

参考文献 References

[1] Li Shutang(李树棠) *et al.* X Diffraction Experimental

- Method(X 射线衍射实验方法)[M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 1993: 74
- [2] Stanford N, Djakovic A *et al.* *Scripta Materialia*[J], 2004, 50: 159
- [3] Liang Zhide(梁志德), Wang Fu(王 福). *Modern Physical Testing Technology*(现代物理测试技术)[M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2003: 83
- [4] Zhang Shoulu (张寿禄). *Journal of Chinese Electron Microscopy Society*(电子显微学报)[J], 2002, 21(5): 703
- [5] Ma Shengli(马胜利) *et al.* *Journal of Xi'an University of Technology*(西安理工大学学报)[J], 1996, 12(4): 303
- [6] Zhou Yu(周 玉) *et al.* *Analysis Methods for Materials*(材料分析方法)[M]. Beijing: China Machine Press, 2003: 52
- [7] Guo Zhenqi(郭振琪) *et al.* *Journal of Inorganic Materials*(无机材料学报)[J], 2002, 17(3): 460
- [8] Wang Huaying(王华英) *et al.* *Basic Theory of X Diffraction Technology*(X 光衍射技术基础)[M]. Beijing: Atomic Energy Press, 1993: 150
- [9] Lei Xinying(雷新颖), Guo Rangmin(郭让民) *et al.* *Physical Testing and Chemical Analysis Part A: Physical Testing*(理化检验-物理分册)[J], 2003, 39(6): 295

A XRD Method to Measure Orientation of Single Crystal Superalloys

Zhao Xinbao, Liu Lin, Yu Zhuhuan, Liu Gang, Fu Hengzhi

(State Key Laboratory of Solidification Processing, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

Abstract: A method to determine preferred orientation of Ni-base single crystal superalloys AM3 is presented by use of X-ray diffractometer. By rotating a sample along its surface axis during θ -scanning process to ensure the normal axis of the crystal plane to across the diffraction plane multiply, the relationship between the crystal plan and the surface is obtained. The credibility is discussed by comparing the results of calculation and experiments. The identification of single crystal superalloys and dispersion degree of crystal orientation are elucidated. It is found that this method is simple and accurate for identifying single crystal superalloys.

Key words: X-ray diffraction; deviation angle of orientation; single crystal superalloy

Biography: Zhao Xinbao, Candidate for Ph. D., State Key Laboratory of Solidification Processing, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, P. R. China, Tel: 0086-29-88494080, E-mail: zhxb001@163.com