DOI: 10.12442/j.issn.1002-185X.20230380

GH5188 高温合金 TLP 接头等温凝固过程数值计算

滕俊飞¹,伍大为²,李家豪²,周惠焱²,周嘉禾³,林铁松⁴,黄永德²

(1. 中国航空制造技术研究院 航空焊接与连接航空科技重点实验室,北京 100024)

(2. 南昌航空大学 航空制造工程学院, 江西 南昌 330063)

(3. 浙江工业大学 化工机械设计研究所,浙江 杭州 310014)

(4. 哈尔滨工业大学 先进焊接与连接国家重点实验室, 黑龙江 哈尔滨 150001)

摘 要:瞬间液相扩散焊接过程中一个重要的参数是完全等温凝固所需的时间,本研究选用自主研制的 KCo10 钴基中间层进行试验,在1130、1150 和 1180 ℃(1403、1423 和 1453 K)的温度下进行了不同保温时间的焊接。以共晶液相两侧的固溶体作为边界,测量平均非等温凝固区域快速凝固区(ASZ)尺寸。通过测量 ASZ 的尺寸随焊接时间的平方根变化的情况,采用数据拟合的方式得出 ASZ 尺寸与结合时间的线性关系,然后基于菲克第二定律随时间变化的扩散方程建立等温凝固过程的数学模型,对等温凝固时间 *t*_{IS} 进行模拟求解,从而预测等温凝固所需时间,并经过实验验证了数学模型预测等温凝固时间的准确性。

关键词:瞬间液相扩散焊;等温凝固过程;GH5188;菲克第二定律
中图法分类号:TG454 文献标识码:A 文章编号:1002-185X(2024)08-2217-06

瞬间液相扩散焊(transient liquid phase bonding, TLP)技术充分结合了钎焊和扩散焊的优点,是实现难 焊金属的高质量、高强度、低变形连接的先进焊接方式, 广泛用于航空航天领域高温合金的连接^[1-2]。TLP 扩散 焊通过在待焊件之间添加特殊成分的中间层合金,加热 至一定温度并保温,使得中间层熔化并伴随着中间层合 金中降熔元素向基体扩散,从而发生等温凝固实现母材 的焊接^[3-4]。区别于钎焊的降温凝固,TLP 扩散焊过程 中发生等温凝固是其主要特征同时也是获得高质量接 头的关键。

通过对 TLP 扩散焊过程的研究表明,一个典型的 TLP 扩散焊接头的形成主要分为 4 个阶段:中间层熔 化、降熔元素扩散、等温凝固、成分均匀化^[5],其中 等温凝固阶段的完成程度决定着接头质量,当焊接保 温时间不足以支撑焊缝金属完全等温凝固则焊缝中心 存在非等温凝固组织,成为接头的薄弱环节。TLP 接 头的力学性能与非等温凝固区或快速凝固区 (athermally solidified zone, ASZ)宽度成反比,ASZ 区主要出现在保温时间过短的焊接接头,且能够直接 说明焊缝尚未完全等温凝固的行为^[5]。由于热传导作 用,焊缝内的液态金属逐渐由母材两侧向焊缝中心推 移,最终凝固部位位于焊缝中心,故 ASZ 区始终位于 焊缝中心位置。ASZ 区主要出现在连接温度较低或保 温时间过短的 TLP 接头中,此条件下接头等温凝固尚 未进行完全。因此对于等温凝固时间的预估,可通过 对 ASZ 区宽度的变化来进行模拟计算,通过 ASZ 区 宽度的变化对扩散激活能 Q、扩散系数 D 进行数据上 的求解分析。为了进一步获取优质接头,需保证焊缝 中心形成完整的固溶体结构,焊缝宽度达到最大值,因 此 TLP 扩散焊过程中等温凝固时间的预测非常重要^[5]。

GH5188 高温合金是一种 Co-Ni-Cr 基固溶强化型 变形高温合金,该合金具有较好的冷热加工塑性及焊 接等工艺性能,用于制作航空发动机燃烧室火焰筒、 导向叶片等高温部件^[6]。本实验以 GH5188 高温合金 为研究对象,采用自主研制的 KCo10 钴基中间层进行 TLP 结合过程中完全等温凝固时间的预测理论,通过 菲克第二定律随时间变化的扩散方程进行计算,并与 实验结果对比,准确地预测了等温凝固时间。

1 实 验

为了研究焊接参数对等温凝固过程的影响规律, 以 GH5188 高温合金作为研究对象,选用自主研制的

作者简介: 滕俊飞, 男, 1982 年生, 博士生, 研究员, 中国航空制造技术研究院, 北京 100024, E-mail: tengjunfei@163.com

收稿日期: 2023-08-29

基金项目:国防科技重大专项(J2019-Ⅶ-0012);国家自然科学基金(52065048);先进焊接与连接国家重点实验室开放课题研究基金(AWJ-22Z02)

KCo10 钴基中间层进行试验。焊前对待焊件表面进行 处理,先用无水乙醇浸泡超声清洗试件,除去表面油 污,然后将待连接面用 1200#、1500#、2000#水砂纸 逐级打磨,随后再用无水乙醇浸泡在超声波清洗机里 清洗 5 min。最后在 HCl:HNO₃:H₂O=1:1:1 的酸洗液 中浸泡 10 min 后用大量清水冲洗干净。

将试件在 1130、1150 和 1180 °C(1403、1423 和 1453 K)的温度下进行不同保温时间的焊接,焊接后的试件沿垂直于焊接方向切开,制备成金相试样。使用扫描电子显微镜(SEM)结合能谱仪(EDS)检测焊接接头的微观结构和化学成分,以共晶液相两侧的固溶体作为边界,测量平均 ASZ 尺寸。通过 ASZ 的宽度随连接时间的平方根变化的情况可以看出,由于降熔元素(melting point depressant elements, MPD)更多地扩散进入母材中,ASZ 的宽度随着焊接温度和保温时间的增加而减小。其中,ASZ 宽度与连接时间的平方根之间的线性关系也表明等温凝固过程受固态扩散所制约,因此 TLP 连接时等温凝固过程可基于菲克第二定律来建模,对等温凝固时间 t_{IS} 进行模拟求解,从而预测等温凝固所需时间^[7-11]。

2 等温凝固时间预测方案

本实验方案假定所有的标准模型 TLP 过程阶段是 连续的,不可能同时发生。根据这些模型,MPD 元素 的固态扩散是在局部平衡下发生的,当溶解阶段完成 后,在固/液界面上建立了平衡。这意味着在等温凝固 过程中,液相和固相的化学成分在 *C*_L(结合温度下液 体的平衡成分)和 *C*_s(结合温度下固体的平衡成分) 保持不变。

由于溶解和等温凝固阶段同时发生,在这种情况下,从初始厚度和浓度分别为 W₀和 C_{FM}(中间层中的 MPD 浓度)的源扩散的菲克第二定律的分析解可以表示为:

$$C(x,t) = C_{\rm BM} + \frac{1}{2}(C_{\rm FM} - C_{\rm BM}) \left\{ \operatorname{erf}\left[\frac{x + \frac{W_0}{2}}{(4Dt)^{\frac{1}{2}}}\right] - \operatorname{erf}\left[\frac{x - \frac{W_0}{2}}{(4Dt)^{\frac{1}{2}}}\right] \right\}$$

(1)

其中, C_{BM} 是母材中的 MPD 浓度, $Dt^{1/2}$ 表示扩散到半 无限固体母材中的距离顺序。当 MPD 浓度达到 C_S 时, 就会发生等温凝固。第一个经历等温固化的位置是固/ 液界面 ($x=1/2W_0$)。当接头中间 (x=0)的 MPD 浓度 降低到 C_S 时,等温凝固就会完成。因此,将 x=0 处的 $C(x, t)=C_S$ 代入公式 (1),可以得到以下公式来估计完 成等温固化所需的时间 t_{IS} 。

$$\frac{C_{\rm s} - C_{\rm BM}}{C_{\rm FM} - C_{\rm BM}} = \operatorname{erf}\left[\frac{W_0}{4(Dt_{\rm IS})^2}\right]$$
(2)

根据误差函数的泰勒级数,可以考虑对误差函数的近似计算,因此当 *Cs*<<*C*_{FM},方程(2)可简化为:

$$t_{\rm IS} = \frac{W_0^2}{4\pi D} \left(\frac{C_{\rm FM} - C_{\rm BM}}{C_{\rm s} - C_{\rm BM}}\right)^2 \tag{3}$$

用于预测 *t*_{IS}的热力学数据,在表1中给出。计算 *t*_{IS}时,需要 GH5188 中硼元素的扩散系数。该公式主 要依托 ASZ 大小的曲线斜率相对于结合时间 *m* 的平 方根和结合温度 *T* 之间的关系。

$$\ln m = A - \frac{Q}{2RT} \tag{4}$$

其中,A是一个常数参数,可以用如下公式进行表述:

$$A = \ln \left[\frac{4C_{\rm s}}{\pi^{\frac{1}{2}}} (C_{\rm L} - C_{\rm S})^{-1} \right] + \frac{1}{2} \ln D_0$$
 (5)

因此, B 元素扩散激活能 Q 可以用 lnm 对温度的 倒数 T¹的斜率来计算。

$$D = D_0 \text{exf}\left(-\frac{Q}{RT}\right) \tag{6}$$

结合公式(5)、(6)可以拟合出频率因子 D₀与扩 散激活能 Q,从而结合焊缝宽度 W₀对等温凝固时间 t_{1s}进行模拟求解,从而预测等温凝固大致所需时间。

3 B元素浓度分布规律

利用相关的计算软件绘制出 1130 ℃下的 B 元素 浓度变化云图,如图 1 所示。从图中可以看出,在接 头保温过程的最初 1~10 s 内,接头中心的 B 元素浓度 下降速率较快。然而,到了第 20 s 时,接头中的 B 元 素浓度下降到了一定值,且扩散层的范围也有所扩展, 但与母材相比仍然存在明显的差异,表明扩散还需要 更多时间才能实现均匀化。

对于不同的焊接温度下接头中的 B 元素浓度进行 计算,获得了不同时间的浓度分布曲线,如图 2 所示。

表 1 等温凝固时间 t_{IS} 预测所需数据

Table 1 Data required for prediction of isothermal solidification

time $t_{\rm IS}$	
Parameters	Source
Cs =0.25at%B	Co-B phase diagram ^[12]
$C_{\rm L}$ =14at%B	Liquid phase composition of the interlayer of Co-Cr-B ^[13]
$C_{\rm BM}$ =0.087at%B	B element content of GH5188 chemical composition
$C_{\rm FM}$ =15.81at%B	Element B content of original interlayer components





Fig.1 Cloud plot of element B concentration distribution for different holding time: (a) 1 s, (b) 5 s, (c) 10 s, and (d) 20 s



图 2 不同焊接温度下 B 元素浓度分布随时间的变化规律

Fig.2 B element concentration distribution change with the time at different welding temperatures: (a) 1130 °C, (b) 1150 °C, and (c) 1180 °C

从图中可以发现,接头中心的 B 元素浓度在保温时 间初期下降速率较快,但到了 10 s 之后,浓度下降 速率减缓。此外,在观察第 1、2、5 s 接头中心的 B 元素浓度时,可以发现,随着焊接温度的升高,接头 中的 B 元素浓度下降速率越快; 然而,随着中间层 初始宽度的增加,接头中的 B 元素浓度下降速率降 低。结果表明,在接头中心区域的 B 元素扩散过程 中,温度和中间层初始宽度对扩散速率和均匀度都具 有重要的影响。

4 等温凝固时间 t_{IS} 的数据拟合

选用 KCo10 钴基中间层进行试验,在 1130、1150 和 1180 ℃(1403、1423 和 1453 K)的温度下进行了 不同保温时间的焊接。在所选用的中间层中,B 作为 主要的降熔元素,在保温过程中降熔元素 B 向基体扩 散是发生等温凝固的关键。由上述 B 元素浓度分布规 律可知,经过一定的保温时间后,焊缝中心处的 B 含 量最高,当 B 元素扩散不充分时,在焊缝中心处易存 在残余岛状低熔共晶组织。Ghahferokhi^[1]等利用 BNi-2 中间层对 GTD-111 与 IN-718 两种镍基合金进行 TLP 扩散连接时,同样发现在焊缝中心处存在少量岛状相 且表明 ASZ 区主要由岛状硼化物共晶构成。此外, V. Jalilvand^[14]等采用 AMS 4777 填充合金对 IN-738LC 镍 基高温合金进行 TLP 扩散连接,在 1050 ℃保温 15 min 的条件下获得未完全等温凝固的焊缝组织,且表明焊 缝中心的岛状共晶为富 Ni、Cr 的硼化物。因此在每个 保温时间结束时,以岛状共晶组织两侧的固溶体为边 界,测量平均 ASZ 尺寸,详细见图 3。

根据上述 ASZ 区平均宽度的测量,可以对以上 9 个点进行拟合,按照 3 个不同焊接温度进行划分,对 3 条曲线分别拟合出相对应的斜率与截距,如图 4 所 示,ASZ 大小相对于保温时间的平方根的变化。可以 看出,由于降熔元素(MPD)更多地扩散到基体金属 中,ASZ 尺寸会随着焊接温度和保温时间的增加而减 小。ASZ 尺寸会随着焊接温度和保温时间的增加而减 小。ASZ 尺寸与保温时间的平方根之间的线性关系(表 2)表明等温凝固过程受固态扩散控制。而本图中的斜 率经过单位转化后,可以近似看作扩散速率,因此下 一步主要通过对 ASZ 区域平均宽度与保温时间平方 根的斜率进行相对应的讨论,得出激活能 Q、频率因 子 D₀的具体数值。



图 3 不同焊接参数下 ASZ 区平均宽度

Fig.3 Average width of the ASZ zone with different welding parameters: (a) 1130 °C, 5 min; (b) 1130 °C, 10 min; (c) 1130 °C, 20 min; (d) 1150 °C, 5 min; (e) 1150 °C, 10 min; (f) 1150 °C, 20 min; (g) 1180 °C, 5 min; (h) 1180 °C, 10 min; and (i) 1180 °C, 15 min



图 4 在 1130、1150 和 1180 ℃焊接温度下接头的 ASZ 区域尺 寸与保温时间的平方根的线性关系

Fig.4 Linear relationship between ASZ zone size and square root of holding time for joints at welding temperatures of 1130, 1150, and 1180 $\,^\circ\!\mathrm{C}$

表 2 不同焊接温度下 ASZ 区域尺寸与保温时间线性关系

 Table 2
 Linear relationship between ASZ zone size and holding time at different welding temperatures

notating time at ante	rent werding temperatures
Welding temperature/K	Linear relationship
1403	<i>y</i> =25.7614+0.44547 <i>x</i>
1423	<i>y</i> =22.83298+0.432075 <i>x</i>
1453	y=21.58726+0.46288x

由 3 条曲线的斜率,可以进行大致扩散速率的预 估,因此对 3 条曲线的斜率取对数并建立温度倒数之 间的联系,目的是为了求出扩散激活能 Q 与频率因子 D₀的数值,根据公式(4)与图 5 的关系,显然可知 本图中的斜率为 Q/2R,由图 5 中数据所拟合出直线方 (7)

程式为:

$$\ln m = -6.1038 - 10000T^{-1}$$

由此可知 Q 与 2R 比值为 10000, 其中 R 为气体 扩散常数,取值约 8.314 J·mol⁻¹·K⁻¹,得出扩散激活能 Q 值为 166.28 kJ·mol⁻¹。

结合公式(4)、(5)、(7)及表 2,可以求出频 率因子 D_0 的具体值, $D_0=0.00297 \text{ m}^2/\text{s}$,进而根据阿 伦尼斯公式(Arrhenius equation),即公式(6),结 合相应温度 T 可以求出对应扩散系数 D,根据公式 (3)可知,得到扩散系数 D 后,选择相应的焊接温 度 T与相应焊缝宽度 W_0 可以得到完成等温凝固所需 大致时间 t_{1S} ,表 3 为不同焊接参数的接头等温凝固 结束时间预测结果,根据表格可知,扩散系数 D 取 决于温度的选取,且扩散系数 D与焊缝宽度 W_0 是影 响等温凝固的 2 个重要因素。且当初始宽度为 105 μ m 时 B 在 1130、1150 和 1180 °C (1403、1423、1453 K) 的 扩 散 系 数 分 别 为 2.023×10⁻⁹、2.468×10⁻⁹ 和 3.029×10⁻⁹。

5 实验验证

对于厚度为105 µm 中间层在1130、1150、1180 ℃ (1403、1423、1453 K)下接头等温凝固所需要的时 间分别为67.4、55.2、45.1 min,根据实际情况,设计 3 个验证试验,试验中将 3 个温度下的测试时间(67.4、 55.2、45.1 min)调整为68、56、46 min,图 6~图 8



图 5 $\ln m 与 T^1$ 的关系

Fig.5 Relationship between $\ln m$ and T^1

表 3 不同焊接参数接头等温凝固结束时间预测

Table 3 Parameters of joint isothermal solidification end

time at uniterent werding parameters	time a	t different	welding	parameters
--------------------------------------	--------	-------------	---------	------------

Welding temperature/K	Weld width/µm	Diffusion coefficient	Expected isothermal solidification time/min
1403	105	2.023×10 ⁻⁹	67.4
1423	105	2.468×10 ⁻⁹	55.2
1453	105	3.029×10 ⁻⁹	45.1

为 3 个接头在对应温度与时间下的等温凝固行为结 果。从图中可知,仅在 1130 ℃时,等温凝固预测发 现偏差,出现非等温凝固区,宽度约 6.32 µm,而在 1150 与 1180 ℃的接头等温凝固已经基本完成,说明 上述等温凝固预测时间较为准确,但在较低温度



图 6 焊接温度 1130 ℃, 保温 68 min 接头形貌

Fig.6 Morphologies of joint under welding temperature 1130 °C and holding 68 min: (a) overall shape of the joint and (b) enlarged image of area I







图 8 焊接温度 1180 ℃,保温 46 min 接头形貌

Fig.8 Morphologies of joint under welding temperature 1180 °C and holding 46 min: (a) overall shape of the joint and (b) enlarged image of area III 段,如1150 ℃下,可以相对增长 5~10 min 保温时间,确保实际工艺时不形成非晶组织,在焊缝中心形成完 全钴基固溶体,焊缝完全等温凝固。

6 结 论

1)通过计算得出焊缝初始宽度和焊接温度对 B 元素的扩散有重要影响,且当初始宽度为 105 μm 时 B 在 1130、1150 和 1180 ℃(1403、1423、1453 K)的 扩散系数分别为 2.023×10⁻⁹、2.468×10⁻⁹ 和 3.029×10⁻⁹。

2)焊缝中心 ASZ 区尺寸与保温时间的平方根之间 存在线性关系,即焊接的等温凝固过程受固态扩散控制。

3)经试验验证,基于焊接过程中 B 元素的扩散 建立等温凝固完成时间的数学模型可以较为准确地预 测 TLP 扩散焊过程中的等温凝固完成时间。

参考文献 References

- Ghahferokhi Ali Izadi, Kasiri-Asgarani Masoud, Ebrahimikahrizsangi Reza et al. Journal of Materials Research and Technology[J], 2022, 21: 2178
- [2] Amiri Danesh, Kamyabi-gol Ata, Sajjadi Seyed Abdolkarim. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2022, 32(1): 192
- [3] Wang Feisen(王非森), Chen Sijie(陈思杰), Gao Zeng(高 增).
 Electric Welding Machine(电焊机)[J], 2009, 39(9): 38
- [4] Zhang Yongzhi(张永志), Zhang Hongkui(张红魁), Chen Jieshi

(陈捷狮) et al. Welding(焊接)[J], 2019, 555(9): 32

- [5] Pouranvari M, Ekrami A, Kokabi A H. Canadian Metallurgical Quarterly[J], 2014, 53(1): 38
- [6] Pouranvari M, Ekrami A,Ekrami A H. Journal of Alloys and Compounds[J], 2008, 461(1/2): 641
- [7] Zou Zhichao(邹志超), Zhang Xiaofeng(张小枫). Electric Welding Machines(电焊机)[J], 2021, 51(8): 171
- [8] Zhang Zhiqiang(张志强), Teng Junfei(腾俊飞), Yang Wenjing (杨文静) et al. Welding(焊接)[J], 2022, 6(9): 42
- [9] Qi Huilin(戚慧琳), Jiang Shichuan(蒋世川), Guo Xulong (郭 续龙). Metal Heat Treatment(金属热处理)[J], 2023, 48(2):
 150
- [10] Liu Luolin(刘罗林), Huang Bensheng(黄本生), Li Tianning (李天宁) et al. Transactions of Materials and Heat Treatment (材料热处理学报)[J], 2023, 44(1): 172
- [11] Zhang Guifeng(张贵锋), Zhang Jianxun(张建勋), Wang Shiyuan(王士元) et al. Journal of Welding(焊接学报)[J], 2002(6): 92
- [12] Faria M I S T, Leonardi T, Coelho G C et al. Materials Characterization[J], 2007, 58: 358
- [13] Lugscheider E, Knotek O, Battenfeld K H. Welding Journal[J], 1976, 55(10): 319
- [14] Jalilvand V, Omidvar H, Shakeri H R et al. Materials Characterization[J], 2013, 75: 20

Numerical Calculation of Isothermal Solidification Process of GH5188 High Temperature Alloy TLP Joints

Teng Junfei¹, Wu Dawei², Li Jiahao², Zhou Huiyan², Zhou Jiahe³, Lin Tiesong⁴, Huang Yongde²

(1. Aeronautical Key Laboratory for Welding and Joining Technologies, AVIC Manufacturing Technology Institute, Beijing 100024, China)
 (2. School of Aeronautical Manufacturing Engineering, Nanchang Hangkong University, Nanchang 330063, China)

(3. Institute of Process Equipment and Control Engineering, Zhejiang University of Technology, Hangzhou 310014, China)

(4. State Key Laboratory of Advanced Welding and Joining, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China)

Abstract: An important parameter in the TLP welding process is the time required for complete isothermal solidification. In this study, KCo10 intermediate layer was used for the tests, which were carried out at temperatures of 1130, 1150 and 1180 °C (1403, 1423 and 1453 K) for different holding time. The average athermally solidified zone (ASZ) size was measured using the solid solution on both sides of the eutectic liquid phase as the boundary. By measuring the size variation of the ASZ with the square root of the welding time, data fitting was used to derive a linear relationship between the ASZ size and the bonding time. And then a mathematical model of the isothermal solidification process was established based on Fick's Second Law of diffusion equation with time, and the isothermal solidification time $t_{\rm IS}$ was simulated and solved so as to predict the approximate time required for isothermal solidification. Finally, the accuracy of the mathematical model in predicting the isothermal solidification time was verified experimentally.

Key words: TLP; isothermal solidification process; GH5188; Fick's Second Law

Corresponding author: Huang Yongde, Ph. D., Professor, Nanchang Hangkong University, Nanchang 330063, P. R. China, E-mail: huangydhm@nchu.edu.cn