Hastelloy C-276 合金热变形动态再结晶模型研究

杜 彬¹,李德富¹,郭胜利¹,刘贤钙¹,冯 策¹,谢 伟²

(1. 北京有色金属研究总院,北京 100088)(2. 宝钢集团特种材料有限公司,上海 201900)

摘 要:采用 Gleeble-3500 热模拟试验机研究了 Hastelloy C-276 镍基合金在不同变形条件下的热压缩流变应力曲线, 热变形过程中发生了动态再结晶行为。利用加工硬化率-应力关系曲线确定了动态再结晶临界条件,采用 Johnson-Mehl-Avrami (JMA)方程计算再结晶体积分数实验值,建立了 C-276 合金动态再结晶体积分数和晶粒尺寸预测 模型。结果表明: C-276 合金动态再结晶体积分数随着应变量的增加,呈现典型的"S型"曲线;获得临界应变条件表 达式: $\ln \varepsilon_c = 0.144 \ln Z - 7.17$;动态再结晶体积分数表达式 $X_{drx} = 1 - \exp\{-1.4034[(\varepsilon - \varepsilon_c)/\varepsilon_{0.5}]^{258384}\}$,预测值和实验值 的平均误差为 2.16%;晶粒长大表达式 $d_{drx} = 6.58 \times 10^3 Z^{-0.168}$,预测值和实验值的平均误差为 6.63%。 关键词: Hastelloy C-276 合金;动态再结晶;组织演变模型 中图法分类号: TG146.1⁺5 文献标识码: A 文章编号: 1002-185X(2016)02-0381-06

Hastelloy C-276 合金是典型的 Ni-Cr-Mo(-W)型镍 基耐蚀合金,不仅在诸多工业腐蚀环境中具有优异的抗 腐蚀性能^[1, 2],而且兼有强度高、塑韧性好等力学性能 及可冶炼、铸造、冷/热变形和焊接等加工性能,被广 泛应用于能源、海洋、石油化工、造纸、烟气脱硫等工 业领域^[3,4]。

C-276 合金构件不易通过冷加工来成形,热加工是 其制备应用的必经过程,故有必要对该合金的热变形组 织演变规律进行研究。目前,国内关于 Hastelloy C-276 合金的研究报道主要集中于材料的组织和力学性能、成 形工艺及其应用等方面,Akhter 等^[5]研究了 C-276 合金 时效处理过程 Mo、W 元素的偏析对其硬度和冲击性能 的影响;孙万田^[6]研究了 C-276 合金管材 GTAW 焊接 工艺;焦少阳^[7]等研究了热处理工艺对 C-276 合金中碳 化物析出和晶界 Mo 元素偏析规律。而对于该合金的热 变形行为及动态再结晶行为的研究报道还比较少。本实 验利用 Gleeble D-3500 热模拟试验机对 C-276 合金的热 变形行为进行研究,分析该合金的动态再结晶行为。

1 实 验

实验材料选用上海宝钢特材分公司提供的 Φ100 mm 的 Hastelloy C-276 镍基耐蚀合金锻棒,主要的化学 成分 (质量分数,%)如下: Mo 16.87, W 4.17, Fe 4.26, Mn<0.01, P<0.005, Si 0.057, Cr 15.97, C 0.0032,

S 0.0005, Co≤2.5, Ni 余量。

合金锻棒在 1200 ℃温度下进行 2.5 h 固溶处理, 以保证原始组织的均匀性。然后,沿锻棒纵向切取 Ø8 mm×12 mm 的圆柱形试样(表面粗糙度 R_a=1.6 µm)用 于高温恒温压缩实验,其显微组织为均匀的等轴晶,晶 粒内部有孪晶存在,如图 1 所示。

在 Gleeble-3500 热模拟试验机上进行 C-276 合金的 高温恒温压缩实验。变形前在试样端面与夹头之间添加 润滑剂(钽片+润滑剂+石墨片)以减小试样端面的摩 擦,试样以 10 ℃/s 的速度升温至变形温度,保温 3 min 使试样受热均匀,然后进行压缩实验。设计的热变形实 验方案如下:预设变形温度为 1000, 1050, 1100, 1150,



图 1 C-276 合金固溶处理后的显微组织

Fig.1 Microstructure of Hastelloy C-276 alloy after solution treatment

收稿日期: 2014-12-18

基金项目:国家自然科学基金(50834008)

作者简介: 杜 彬, 男, 1989年生, 硕士, 北京有色金属研究总院有色金属加工事业部, 北京 100088, E-mail: dubin0327wat@126.com

1200, 1250 ℃; 应变速率为 0.01, 0.1, 1.0, 10.0 s⁻¹; 应变 量为 0.1, 0.3, 0.5, 0.7, 0.9 及 1.2。

试样经热变形后立即水冷至室温,沿压缩方向切开制备金相试样,试样经研磨抛光后利用 10 mL H₂SO₄+100 mLHCl+10 g无水 CuSO₄粉末配制成的混合 溶液进行腐蚀,在 Axiovert200MAT 光学金相显微镜上 观测合金的变形组织。

2 结果与分析

2.1 Hastelloy C-276 合金流变应力曲线

Hastelloy C-276 合金在应变速率 $\dot{\epsilon}$ =10.0 s⁻¹及不同温度下的真实流变应力曲线,如图 2 所示,图中箭头所示为临界应变值。由图 2 可知,在同一应变速率下,流变应力随变形温度的升高而减小。*T*=1000 °C时,流变应力表现出"波动"式增加,随变形温度的升高(*T*=1050,1100 °C),曲线的波动逐渐减小且应力峰值向低应变方向移动;当温度升高至 *T*≥1150 °C时,随应变量的增加,应力达到峰值后,逐渐降低或缓慢的达到某一稳定值,应力-应变曲线呈现出稳态流变特征。可见,C-276 合金流变应力曲线表现出明显的动态再结晶特征,符合低层错能金属热加工过程中动态再结晶软化的特征。

通过以上分析及文献[8]可知 Hastelloy C-276 合金在塑性变形过程中发生了动态再结晶行为。E. I. Poliak 和 J. J. Jonas 通过热力学不可逆原理提出,动态再结晶临界条件可以根据加工硬化率 $\theta-\sigma$ 关系来确定^[9,10]:

$$\frac{\partial}{\partial\sigma} \left(-\frac{\partial\theta}{\partial\sigma} \right) = 0 \tag{1}$$

其中







$$\theta = \left(\frac{\partial \sigma}{\partial \varepsilon}\right)_{\dot{\varepsilon},T} \tag{2}$$

利用上述式(1)和式(2)对不同变形条件下获得的 高温压缩流变应力数据进行运算,获得热变形加工硬 化率 θ - σ 和 $(-\partial\theta/\partial\sigma)$ - σ 关系曲线如图3所示。结 合式(1)及图3可知, Hastelloy C-276 合金发生动态再

结晶的临界应力对应于图 $3a + \theta - \sigma$ 曲线的拐点位置和图 $3b + (-\partial \theta / \partial \sigma) - \sigma$ 曲线的最低点。利用式(1)求解

不同变形条件下的再结晶临界应变值,由图 3b 可知, 应变速率为 0.01 s⁻¹时,变形温度为 1000, 1050, 1100, 1150, 1200 和 1250℃时发生动态再结晶的临界应变量 分别为 0.174, 0.144, 0.10, 0.103, 0.09 和 0.077。然后线 性回归得出 C-276 合金动态再结晶临界应变 ε_c 和对应 的 Z 参数之间的关系如下所示:

$$\ln \varepsilon_{\rm c} = 0.144 \ln Z - 7.173 \tag{3}$$

2.2 组织演变

图 4 所示为 Hastelloy C-276 合金在变形温度 $T=1150 \ C, 应变速率为 0.01 \ s^{-1}$ 时不同变形程度下的显 微组织。应变量 $\epsilon=0.1$ 时,原始晶粒的晶界发生不规则 的弯曲,从而成为动态再结晶核心;同时原始晶粒内部 出现变形孪晶,再结晶在孪晶界上少量形核,如



图 3 应变速率为 0.01 s⁻¹时不同温度下的应变硬化率 Fig.3 Strain hardening rate at different temperatures and strain rate of 0.01 s⁻¹: (a) θ-σ and (b) (-∂θ/∂σ)-σ

图 4a 所示。可见,晶界凸起形核是 C-276 合金动态再 结晶形核的主要方式。当 ε =0.3 时,原始晶界附近有 大量的细小再结晶晶粒出现,形成典型的"项链"状 组织,如图 4b 所示。当变形量增加到 ε =0.7 时,基本 上获得了完全动态再结晶组织,图 4c。而在图 4d 中, 应变量 ε =1.2 时的动态再结晶晶粒尺寸相比 ε =0.7 时 明显增大,这是由于动态再结晶过程完成后,发生了 再结晶晶粒的长大过程,随着应变量的继续增大,还 有可能发生了重复再结晶现象。

2.3 动态再结晶模型的建立

动态再结晶动力学模型对材料在热变形过程中的 组织演变过程做出了定量的描述。目前,比较成熟且广 泛使用的是 Johnson-Mehl -Avrami (JMA)方程^[11],故本 研究采用 JMA 方程来表示 C-276 合金的再结晶过程:

$$f_{\rm dyn} = 1 - \exp(-bt^n) \tag{4}$$

式中, *f*_{dyn} 为动态再结晶体积分数, *n* 和 *b* 随变形条件的变化而变化,可以用含有 *Z* 参数的函数来表示,则 JMA 方程可以改写为:

$$f_{\rm dyn} = 1 - \exp\left(-b(Z)t^{n(Z)}\right) \tag{5}$$

假定达到临界应变 ε_c时试样的再结晶体积分数为 0.5%,稳态应变 ε_s对应的再结晶体积分数为 99%,则 式(5)可改写为

$$f_1 = 0.005 = 1 - \exp\left(-b(Z)t_c^{n(Z)}\right) \tag{6}$$

$$f_{2} = 0.99 = 1 - \exp(-b(Z)t_{s}^{n(Z)})$$
(7)

$$\pm \vec{x}_{s}(6), (7)\vec{y} = 0.99 = 1 - \exp(-b(Z)t_{s}^{n(Z)})$$

$$n(Z) = -6.823 / \ln\left(\frac{t_c}{t_s}\right) \tag{8}$$

$$b(Z) = 0.005 / t_c^{n(Z)}$$
⁽⁹⁾

式中: $t_{\rm c} = \varepsilon_{\rm c} / \dot{\varepsilon}; \quad t_{\rm s} = \varepsilon_{\rm s} / \dot{\varepsilon}$ 。

由式(8)和式(9)得到不同变形条件时 n(Z)和 b(Z) 的值,代入式(5)便可得到 C-276 合金不同变形条件 下的动态再结晶动力学方程。

Hastelloy C-276 合金在所有的变形条件下均发生 了动态再结晶,只是在不同变形条件下变形量达到 ε=0.7 时的再结晶分数不同。金属学理论认为变形量 和变形温度对再结晶量满足线性关系,而应变速率的 影响则比较复杂^[12]。根据式(5)所示的 JMA 方程求 解不同变形条件下的再结晶体积分数,可以绘制再结 晶体积分数-应变量关系曲线,图 5 中细实线所示为部 分条件下的再结晶体积分数-应变量关系。

2.3.1 C-276 合金动态再结晶体积分数模型

(1) 再结晶体积分数为 50% 时 *ε*0.5 表达式

由图 5 可知, C-276 合金再结晶体积分数曲线为 典型的"S"型曲线。对得到的再结晶体积分数-应变 量关系曲线进行插值运算,得到再结晶体积分数为 50%时所对应的应变量 $\varepsilon_{0.5}$,如表 1 所示。

C-276 合金热变形过程中再结晶体积分数为 50% 时所对应的应变量 ε_{0.5} 与应变速率及变形温度之间存 在如下关系式:

$$\varepsilon_{0.5} = k_1 \dot{\varepsilon}^{k_2} \exp\left(\frac{Q}{RT}\right) \tag{10}$$

式中, k₁、k₂为常数。

根据测得的不同变形条件下再结晶体积分数为 50%时的应变值,分别对 $\ln \varepsilon_{0.5} - \ln \dot{\varepsilon} \ln \ln \varepsilon_{0.5} - 10^4/T$ 关系进行线性拟合,线性回归得到 k_2 的平均值为 0.10886, $\left[\partial \ln \varepsilon_{0.5} / \partial \left(10^4/T \right) \right] = 15.2375$,则 Q = 126.6846 kJ/mol。

将 k₂ 和 Q 值代入(10) 可得到 k₁ 的平均值为 0.144×10⁻⁴。故再结晶体积分数为 50%时的应变与应变 速率、变形温度之间关系可表示为:

$$\varepsilon_{0.5} = 0.144 \times 10^{-4} \dot{\varepsilon}^{0.10886} \cdot \exp\left(\frac{126684.6}{RT}\right) (11)$$

(2) 再结晶体积分数模型

目前,各国学者普遍采用 Avrami 方程^[11, 13]来描述材料动态再结晶体积分数与应变量之间的关系, Avrami 方程表达式如式(12)所示:



图 4 C-276 合金不同变形程度下的显微组织

Fig.4 Deformed microstructures under different strains (T=1150 °C, $\dot{\varepsilon}=0.01$ s⁻¹): (a) $\varepsilon=0.1$, (b) $\varepsilon=0.3$, (c) $\varepsilon=0.7$, and (d) $\varepsilon=1.2$



图 5 C-276 合金动态再结晶体积分数-应变量关系曲线

Fig.5 Relationships between dynamic recrystallization volume fraction and strain of C-276 alloy: (a) $\dot{\varepsilon} = 0.01 \text{ s}^{-1}$, (b) $\dot{\varepsilon} = 0.1 \text{ s}^{-1}$, (c) $\dot{\varepsilon} = 1.0 \text{ s}^{-1}$, and (d) $\dot{\varepsilon} = 10.0 \text{ s}^{-1}$

$$X_{\rm drx} = 1 - \exp\left[-k\left(\frac{\varepsilon - \varepsilon_{\rm c}}{\varepsilon_{0.5}}\right)^n\right]$$
(12)

表 1 C-276 合金不同变形条件下的 ε0.5 值

Table 1 $\varepsilon_{0.5}$ values of C-276 alloy under different deformation conditions

T /°C	$\dot{\mathcal{E}}$ /s ⁻¹				
	0.01	0.1	1.0	10.0	
1150	0.36349	0.52289	0.60146	0.39129	
1200	0.27875	0.36301	0.50507	0.24509	
1250	0.15492	0.29941	0.22973	0.19559	

式中, X_{drx} 为合金动态再结晶分数, ε 为真应变量, ε_c 为合金动态再结晶的临界应变量, $\varepsilon_{0.5}$ 为合金发生 50%动态再结晶时的应变量。

将式(12)两边取双对数可得:

$$\ln\left[-\ln\left(1-X_{drx}\right)\right] = \ln k + n\ln\left[\left(\varepsilon-\varepsilon_{c}\right)/\varepsilon_{0.5}\right] \quad (13)$$

从而得到:

$$n = \frac{\partial \left(\ln \left[-\ln \left(1 - X_{drx} \right) \right] \right)}{\partial \ln \left[\left(\varepsilon - \varepsilon_{c} \right) / \varepsilon_{0.5} \right]}$$
(14)

根据实验数据对 $\ln[-\ln(1-X_{dx})] - \ln[(\varepsilon - \varepsilon_c)/\varepsilon_{0.5}]$ 关系进行线性回归, 如图 6 所示, 进而求得 k 值和 n 值 分别为 n =2.58384, k =1.4034。将求得的 k 值和 n 值 代入式(12), 即可得到 Hastelloy C-276 合金动态再结 晶体积分数与应变量关系式为:

$$X_{\rm drx} = 1 - \exp\left[-1.4034 \left(\frac{\varepsilon - \varepsilon_{\rm c}}{\varepsilon_{0.5}}\right)^{2.58384}\right] \quad (15)$$

根据式(15)得到的 Hastelloy C-276 合金的动态再 结晶体积分数模型预测不同变形条件下 C-276 合金的 动态再结晶体积分数动力学曲线,如图 5 中点线图所 示为再结晶模型预测值。从图中可以看出,预测值与 实验值的吻合度较高。

表 2 所示为不同变形温度、应变速率下,变形程



图 6 $\ln[-\ln(1-X_{drx})]-\ln[(\varepsilon-\varepsilon_c)/\varepsilon_{0.5}]$ 关系曲线 Fig.6 Relationships between $\ln[-\ln(1-X_{drx})]$ and $\ln[(\varepsilon-\varepsilon_c)/\varepsilon_{0.5}]$

表 2 再结晶体积分数预测值与实验值对比 粒得到显著细化,有效的改善了组织的均匀性,这说

 Table 2 Comparison between the predicted and the experimental values of recrystallization volume fraction

		•		
$\dot{\mathcal{E}}$ /s ⁻¹	$T/^{\circ}\mathbb{C}$	Predicted	Experimental	Error/%
0.01	1150	0.9932	1.0	0.68
	1200	0.9989	1.0	0.11
	1250	1.0	1.0	0
0.1	1150	0.8715	0.79	9.35
	1200	0.9942	0.95	4.44
	1250	0.9999	1.0	0.01
1.0	1150	0.6645	0.7	5.07
	1200	0.8508	0.9	5.47
	1250	0.9999	1.0	0.01

度为 ε =0.7 时 C-276 合金的动态再结晶体积分数实验 值与预测值对比。变形结束时(ε=0.7),预测值与实验 值非常接近,平均误差为 2.16%。

2.3.2 C-276 合金动态再结晶晶粒尺寸模型

利用热模拟实验研究 Hastelloy C-276 合金的动态 再结晶行为,是为了获得热变形过程中的组织演变规 律,从而对合金锻件的组织性能进行预测和控制。 C-276 合金的相结构特点决定了其热变形后组织状态 的不可调整性,若要获得组织性能良好的合金锻件, 就必须对动态再结晶晶粒尺寸的发展进行预测并加以 控制。

Hastelloy C-276 合金的动态再结晶晶粒尺寸与变 形温度和应变速率之间有着密切的联系^[14],再结晶晶 粒尺寸 d_{drx} 与 Z 参数之间的关系如式(16)所示。

 $d_{\rm drx} = AZ^m \tag{16}$

式中, *d*_{drx} 为动态再结晶晶粒尺寸, *m*、A 为常数。 对上式两边取对数得:

$$\ln d_{\rm drx} = \ln A + m \ln Z \tag{17}$$

利用截线法测得发生完全动态再结晶时的晶粒尺 寸,对上式进行线性回归,结果如图 7 所示。通过计 算可得: *m* ==-0.168, *A* =6.58×10³,带入式(16)可得 C-276 合金动态再结晶晶粒尺寸模型的表达式为:

$$d_{\rm dry} = 6.58 \times 10^3 Z^{-0.168} \tag{18}$$

采用实验获得的再结晶晶粒尺寸数据对所建立的 模型进行验证,如图 8 所示为模型预测值与实验值的 对比,二者之间的平均误差为 6.63%。对比图 1 可知, 热变形之前合金的晶粒粗大,大部分晶粒尺寸在 230.5 μm 左右,也存在少量晶粒尺寸为 8.1 μm 左右的小晶 粒,组织的均匀性较差;而再结晶晶粒尺寸范围为 8.1~39.4 μm,由此可见 C-276 合金热变形过程中晶



Fig.7 Relationships between $\ln d_{drx}$ and $\ln Z$



图 8 C-276 合金再结晶晶粒尺寸预测值与实验值对比

Fig.8 Comparison between the predicted and the experimental values of recrystallized grain size

明选用适当的热加工工艺,通过合理控制 C-276 合金的动态再结晶,可以获得细小均匀的组织。

3 结 论

1) Hastelloy C-276 合金热变形过程中发生了动态 再结晶行为,不同变形条件下的再结晶临界条件有所 不同,临界应变用Z参数表示为 $\ln \varepsilon_c = 0.144 \ln Z - 7.173$ 。

2) Hastelloy C-276 合金动态再结晶动力学曲线是 典型的"S"型曲线,动态再结晶体积分数模型为 $X_{drx}=1-\exp\left(-1.40\left\{\frac{4}{4}\varepsilon -\varepsilon\right\}/\varepsilon_{0}\right\}^{2.58384}$,利用该模型 对动态再结晶体积分数进行了预测和验证,误差的平 均值为 2.16%。

3) 构建了该合金的动态再结晶晶粒尺寸模型为 $d_{drx} = 6.58 \times 10^{\circ} Z^{-0.16\xi}$,通过实验验证得到误差的平均

值为 6.63%。

参考文献 References

- [1] Zhu Guanni (朱冠妮), Bi Zhongnan (毕中南), Dong Jianxin(董建新) et al. Journal of University of Science and Technology Beijing(北京科技大学学报)[J], 2010, 32(5): 628
- [2] Wang Cheng(王成), Ju Shaohua(巨少华), Xun Shuling(荀淑 玲) et al. Materials Review(材料导报)[J], 2009, 23(2): 71
- [3] Shi Aijuan(施爱娟). Investigations of Microstructure Behavior in Ni-Cr-Mo Type Corrosion Resisting Alloy C-276(镍基耐 蚀合金 C-276 组织行为研究)[D]. Beijing: University of Science and Technology Beijing, 2008
- [4] Yang Ruicheng(杨瑞成), Wang Hui(王 晖), Zheng Liping(郑 丽平) et al. Materials Review(材料导报)[J], 2001, 15(11):
 21
- [5] Akhter J I, Shaikh M A, Ahmad M et al. Journal of Materials Science Letters[J], 2001, 20: 333
- [6] Sun Wantian(孙万田). Electric Welding Machine(电焊机)[J], 2011, 41(1): 58
- [7] Jiao Shaoyang(焦少阳), Zhu Guanni(朱冠妮), Dong Jianxin(董建新) et al. Journal of Materials Engineering(材料工程学报)[J], 2011(1): 47

- [8] Du Bin(杜 彬), Li Defu(李德富), Guo Shengli(郭胜利) et al. Rare Metals(稀有金属)[J], 2013, 37(2): 215
- [9] Semiatin S L, Jonas J J. Formability and Workability of Metals: Plastic Instability and Flow Localization[M]. Ohio: American Society for Metals, 1984: 299
- [10] Sellars C M, Whiteman J A. Meta Science[J], 1979, 13(3): 187
- [11] Xu Guang(徐光), Zhang Pijun(张丕军). The Theory and Technology of Metal Deformation at Low Temperature(金属 低温变形理论与技术)[M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2007: 116
- [12] Mao Weimin (毛卫民), Zhao Xinbing (赵新兵).
 Recrystallization and Grain Growth of Metals(金属的再结晶与晶粒长大)[M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 1994: 201
- [13] Watanabe H, Tsutsui H, Mukai T et al. Material Transaction[J], 2001, 42(7): 1200
- [14] Aghaie-Khafri M, Golarzi N. J Mater Sci[J], 2008, 43: 3717

Dynamic Recrystallization Behavior of Hastelloy C-276 Alloy during Hot Deformation

Du Bin¹, Li Defu¹, Guo Shengli¹, Liu Xiangai¹, Feng Ce¹, Xie Wei²

(1. General Research Institute for Nonferrous Metals, Beijing 100088, China)

(2. Baosteel Special Materials Co., Ltd, Shanghai 201900, China)

Abstract: The flow stress curve of Nickel base alloy Hastelloy C-276 during hot deformation was investigated by compression tests at varying temperatures and strain rates up to a true strain of 0.7 on Gleeble 3500 simulator. Dynamic recrystallization (DRX) occurred during hot deformation. The recrystallization critical conditions were determined by relationships between work hardening rate and stress curve. Experimental values of recrystallization volume fraction were calculated by Johnson-Mehl-Avrami (JMA) equation, and the dynamic recrystallization volume fraction model as well as the grain growth forecast model of Hastelloy C-276 alloy was established. The results show that the increment of recrystallization volume fraction is the typical "S" type curve with the increase of strain. The equation of critical strain conditions is established as $\ln \varepsilon_c = 0.144 \ln Z - 7.173$. The equation of recrystallization volume fraction is

 $X_{\rm drx} = 1 - \exp\left\{-1.4034\left[\left(\varepsilon - \varepsilon_{\rm c}\right)/\varepsilon_{0.5}\right]^{2.58384}\right\},$ and the average error of the predicted values and experimental values is 2.16%. The grain

growth equation is $d_{drx} = 6.58 \times 10^3 Z^{-0.168}$, and the average error is 6.63%.

Key words: Hastelloy C-276 alloy; dynamic recrystallization; microstructure evolution model

Corresponding author: Du Bin, Master, Processing Division of Non-Ferrous Metals, General Research Institute for Nonferrous Metals, Beijing 100088, P. R. China, E-mail: dubin0327wat@126.com