

分步退火及初始晶粒对 Hastelloy C-276 合金晶界特征分布影响

张晓宇^{1,2}, 赵宪明¹, 李德富², 郭胜利²
(1. 东北大学 轧制技术及连轧自动化国家重点实验室, 辽宁 沈阳 110819; 2. 北京有色金属研究总院 复合材料中心, 北京 100088)

摘 要: 不同初始晶粒尺寸的 Hastelloy C-276 合金经冷轧变形后,分别采用一次退火和二次退火方法进行热处理,其晶界特征分布采用电子背散射衍射技术进行表征.结果表明,初始较大晶粒组织有利于晶界特征分布的优化,特殊晶界比例比小尺寸晶粒组织提高了近 10%,达到了 78.8%,同时形成了平均尺寸为 200 μm 晶粒团簇组织.在相同晶粒尺寸条件下,采用二次退火工艺可以明显改善合金的晶界特征分布,Σ3ⁿ 晶界比例得到较大幅度的提高,并形成了良好的团簇组织.这是由于较多的非共格 Σ3 晶界,容易产生 Σ9 和 Σ27 晶界,从而形成更多的三叉晶界,中断了大角度晶界的连通性.

关 键 词: 二次退火热处理;初始晶粒;Hastelloy C-276 合金;特殊晶界;晶界特征分布

中图分类号: TG 111.7 文献标志码: A 文章编号: 1005-3026(2018)05-0630-04

Effects of Two-Step Annealing and Initial Grain Size on the Grain Boundary Character Distributions of Hastelloy C-276

ZHANG Xiao-yu^{1,2}, ZHAO Xian-ming¹, LI De-fu², GUO Sheng-li²
(1. State Key Laboratory of Rolling and Automation, Northeastern University, Shenyang 110819, China;
2. Center for Composites, General Research Institute for Non-ferrous Metals, Beijing 100088, China.
Corresponding author: ZHAO Xian-ming, professor, E-mail: zhaoxm@ral.neu.edu.cn)

Abstract: Hastelloy C-276 samples with different initial grain sizes were subjected to one-step and two-step annealing heat treatments after cold-rolling process and their grain boundary character distributions (GBCDs) were characterized by electron backscatter diffraction (EBSD) techniques. The results show that the large-sized initial grains tend to optimize the GBCD. Compared with that in the small-sized grain ones, the fraction of coincident site lattice (CSL) boundary in Hastelloy C-276 samples with large-sized initial grains increases nearly 10%, which is up to 78.8%. Meanwhile, the clusters with average size of 200 μm are formed. For the samples with same-sized grains, the GBCD can be well improved by the two-step annealing treatment, where the fraction of Σ3ⁿ boundaries can be increased significantly and the better clusters can be formed. The more incoherent Σ3 boundaries, the more Σ9 and Σ27 boundaries can be generated, leading to the more triple junctions. Therefore, the connectivity of the high-angle grain boundary network is disrupted effectively.

Key words: two-step annealing heat-treatment; initial grain size; Hastelloy C-276 alloy; special grain boundary; grain boundary character distribution (GBCD)

Hastelloy C-276 合金是一种面心立方体低层错能的 Ni-Cr-Mo 合金,其具有良好的加工性能、抗氧化性能和耐腐蚀性能,被广泛应用于石油、化工和核工业领域当中^[1]. 由于其作为超临界水冷堆 SCRW 的备选材料^[2],基于安全因素的考虑,为了进一步提高其使用性能,延长服役时间,有必要采用晶界工程优化的方法来提高材料的相关性能.

晶界工程的概念,是 Watanabe^[3]教授在 1984 年提出的“晶界设计”思想的基础上发展而来的,其目的在于通过形变热处理工艺来控制金属中晶界特征分布,增加低 Σ CSL (重合位置点阵, coincident site lattice) 晶界比例,从而改善其与晶界相关的性能,如抗晶间应力腐蚀^[4]、抗疲劳^[5]、抗蠕变^[6]、抗裂纹扩展^[7]等. 此方法已经在 600 合金抗晶界腐蚀得到了实际应用^[8].

目前对于中低层错能的面心立方体金属,如镍基高温合金、奥氏体不锈钢以及铜合金. 通常采用两种形变热处理工艺进行优化^[9]:一是采用小变形低温长时间退火;二是采用中等变形高温短时间退火. 以上两种方法的应用,可以明显提高材料中特殊晶界比例,进而优化晶界特征分布. 然而,对于不同的合金其工艺参数也有较大的变化,优化结果也存在较大的差距.

本文将对对比分析一次退火工艺与二次退火工艺对不同晶粒尺寸的 Hastelloy C - 276 合金的特殊晶界比例和晶界特征分布的影响,为晶界工程在 Hastelloy C - 276 合金工艺优化提供合理意见.

1 实验材料和实验方法

实验所用材料为商用 Hastelloy C - 276 合金,其化学成分(质量分数,%)为:Cr 15.07, Mo 15.53, Fe 4.14, W 4.04, Co \leq 2.5, Mn 0.62, P < 0.01, Si < 0.08, C 0.012, S 0.002, Ni 余量. 试样先进行 75% 冷轧变形,在 1 100 $^{\circ}$ C 条件下保温 15 和 30 min,得到不同晶粒尺寸的初始试样 BM - 1 和 BM - 2. 将 BM - 2 分为两份, BM - 1 样品与其中一份进行冷轧 5% 后低温 1 000 $^{\circ}$ C 保温 5 min,接着进行高温 1 100 $^{\circ}$ C 保温 15 min 两次热处理,为样品 GBE - 1 和 GBE - 2. 取得的另一份 BM - 2 样品进行 5% 冷轧变形,采用高温 1 100 $^{\circ}$ C

保温 15 min 一次退火热处理,得到样品 GBE - T. 将退火后的试样在电解液为 80% 甲醇 + 20% 硫酸(体积比)溶液中进行电解抛光,在 JSM - 7001 SEM 附带的 TSL - EBSD 进行晶界特征分布测定. 对 5 个样品表面 800 μ m \times 868 μ m 的区域进行步长为 1 ~ 2 μ m 的逐点扫描,收集并标定电子背散射衍射 Kikuchi 花样,根据得到各样品晶体取向信息,利用取向显微技术(OIM)重构晶界特征分布图,EBSD 取向差设定大于 2 $^{\circ}$ 为存在晶界,取向差在 2 $^{\circ}$ ~ 15 $^{\circ}$ 范围内为小角度晶界(Σ 1 晶界). 采用 Brandon^[10]标准判定重位点阵晶界类型,将 Σ CSL \leq 29 晶界统称为特殊晶界. 在二维重构条件下,按长度百分数计算各类晶界的比例.

2 结果与讨论

2.1 初始晶粒尺寸对 Hastelloy C - 276 合金晶界特征分布的影响

图 1a 和图 1b 为两种不同初始晶粒组织的 OIM 图,利用 HKL 软件等效圆直径法统计样品 BM - 1 和 BM - 2 的平均晶粒尺寸分别为 14 和 22 μ m(本文将孪晶统计在晶粒尺寸之内). 图中可明显看出晶粒为等轴状再结晶组织,晶内存在大量共格孪晶晶界. 孪晶晶界大多呈平行直线形终止于晶界处或晶内,极少存在弯曲非共格孪晶晶界. 对两种不同晶粒尺寸的合金进行晶界特征分布优化,其试样为 GBE - 1 和 GBE - 2,如图 1c 和图 1d 所示. 从图中可以看出,有大量新的孪晶晶界产生,新增加的孪晶大多为弯曲状非共格孪晶. 同时对比平均晶粒尺寸数据,可以看出形变热处理前后,晶粒组织较为稳定,没有出现较大幅度的晶粒尺寸变化.

为了进一步分析晶界特征分布的变化规律,将两种不同晶粒尺寸初始组织优化后试样进行晶

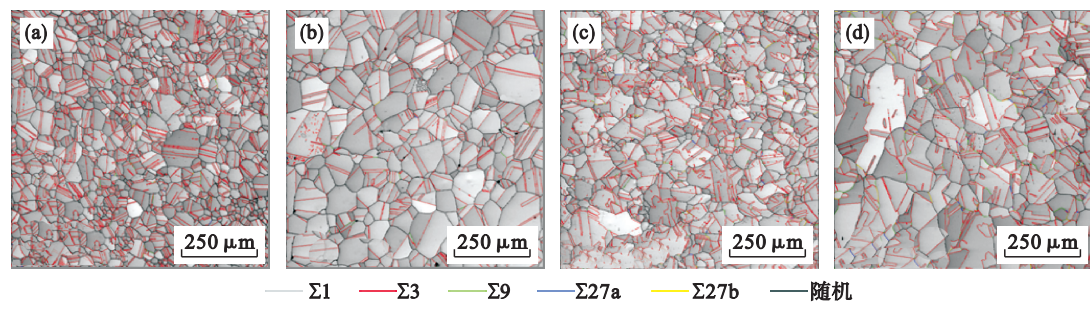


图 1 晶粒尺寸不同的初始样品及 GBE 后样品的 OIM 图

Fig. 1 OIM of grain boundary for the different initial grain size samples before and after GBE

(a)—BM - 1, $d = 14 \mu$ m; (b)—BM - 2, $d = 22 \mu$ m; (c)—GBE - 1, $d = 14.7 \mu$ m; (d)—GBE - 2, $d = 21.6 \mu$ m.

界表征,其结果如图 2 所示.可以看出,初始组织为较小晶粒的试样经形变热处理之后, $\Sigma 3$ 晶界比例为 62.5%.而较大尺寸的初始试样 $\Sigma 3$ 晶界比例得到了明显提高,达到了 69%.与此同时,总的 Σ CSL 晶界比例也从 69.6% 提高到了 78.8%,增加了近 10%.说明较大晶粒尺寸有利于晶界特征分布的优化.而多重孪晶 $\Sigma 9$ 晶界和 $\Sigma 27$ 晶界比例则分别提高了 1.9% 和 2.1%,这说明 $\Sigma 3 - \Sigma 3 - \Sigma 9$ 和 $\Sigma 3 - \Sigma 9 - \Sigma 27$ 三叉晶界的相互作用得到明显加强.

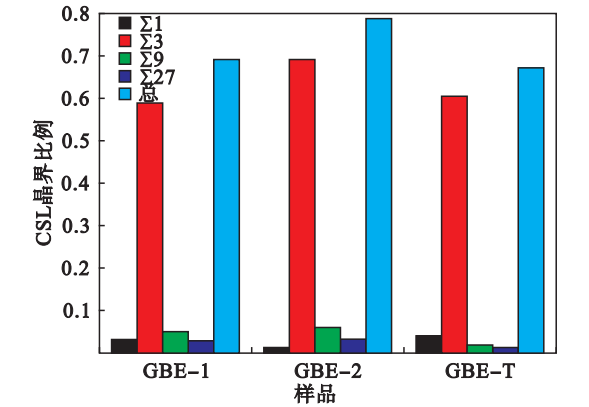


图 2 样品 GBE - 1, GBE - 2 和 GBE - T 的 CSL 晶界比例分布图
Fig. 2 Frequency of CSL grain boundary in the samples GBE-1, GBE-2 and GBE-T

大角度晶界连通性是反映晶界特征分布优化结果的重要特征^[11].从图 3 可以看出,较小初始晶粒尺寸的试样经晶界优化后,晶界连通性相对于大晶粒尺寸试样保持完整.而经晶界特征分布优化后会形成大尺寸的“互有 $\Sigma 3$ ”取向关系晶粒的团簇”显微组织,如图 3b 所示,其平均晶粒团簇达到了 200 μm .这种团簇组织内所有晶粒之间均具有 $\Sigma 3$ ”取向关系,构成了许多相互连接的三叉晶界,并且团簇与团簇之间为大角度晶界相连.而该团簇组织是影响材料耐腐蚀性能的重要因素^[4].从图 3 中可以看出,优化后初始晶粒较小的试样晶粒团簇尺寸明显小于较大初始晶粒尺寸的试样.结合图 2 可以分析得出,高比例的 $\Sigma 3$ 晶界是晶界优化的基础,同时产生较多的 $\Sigma 9$ 晶界和 $\Sigma 27$ 晶界,有助于阻断大角度晶界的连通性,形成较大尺寸的晶粒团簇组织.

2.2 一次退火与二次退火对晶界特征分布的影响

为了对比一次退火和二次退火工艺对晶界特征分布的影响,应采用相同的初始组织作为初始条件,初始组织都采用 BM - 2 试样.

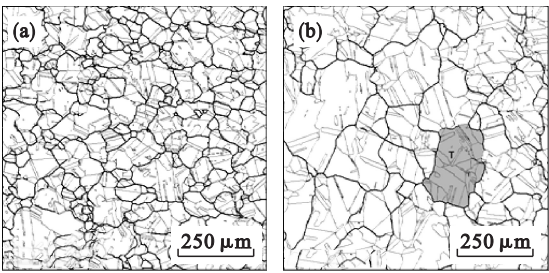


图 3 GBE - 1 和 GBE - 2 的晶界重构图(黑色粗线代表大角度晶界,灰色细线代表特殊晶界)
Fig. 3 OIM of grain boundary reconstruction for the sample (a)—GBE - 1; (b)—GBE - 2.

从图 4a 可以看出,经形变热处理之后,晶粒尺寸明显长大,其平均晶粒尺寸为 27 μm .而晶内孪晶大多为共格孪晶,没有大量弯曲非共格孪晶的存在,这与图 1d 中孪晶组织明显不同.从大角度晶界连通性来看,图 4b 中大角度晶界有较少一部分连通性得以阻断并未形成大量晶界阻断的现象,对比图 3b 中所示.

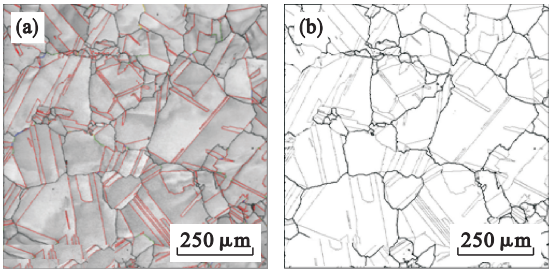


图 4 GBE - T 试样的 OIM 和晶界重构
Fig. 4 OIM of grain boundary and grain boundary reconstruction for the sample GBE - T (a)—OIM 图; (b)—晶界重构图.

从特殊晶界比例分布来看,如图 2 中 GBE - 2 和 GBE - T. $\Sigma 3$ 晶界比例和 Σ CSL 晶界比例都明显低于二次退火工艺组织.其 $\Sigma 9$ 和 $\Sigma 27$ 比例更少,这也就不难说明大角度晶界连通性较少阻断的原因了.

通过以上分析可以看出,二次退火工艺明显提高了特殊晶界比例,而较多非共格 $\Sigma 3$ 孪晶的存在有利于三叉晶界的作用,形成较大尺寸的团簇,很好地阻断了大角度晶界的连通性,因而可以进一步提高材料的抗腐蚀性能^[4].

3 结 论

1) 较大尺寸初始晶粒组织相对较小尺寸初
(下转第 648 页)