

## UTICAJ ĆELIJSKE STRUKTURE KLICE NA STRUKTURU MONOKRISTALA SUPERLEGURE NA BAZI Ni<sup>1</sup>

### THE INFLUENCE OF THE CELLULAR STRUCTURE OF THE SEED ON THE STRUCTURE SINGLE CRYSTAL SUPERALLOY BASED ON Ni

SLOBODANKA NIKOLIĆ\*, VESNA RADOJEVIĆ\*\*,  
ANDREJA VALČIĆ\*\*, ALEKSANDAR GOLUBOVIĆ\*

\**Institut za fiziku, Zemun, Jugoslavija,*  
\*\**Tehnološko-metalurški fakultet, Beograd, Jugoslavija*

#### IZVOD

U okviru ovog rada izvršena su istraživanja uticaja ćelijske strukture klice na rastojanje između primarnih dendrita,  $\lambda_1$ .

Istraživanja su vršena na monokristalima superlegure na bazi Ni, koji su dobijeni rastom iz rastopa po metodi Bridgman.

#### ABSTRACT

This paper elaborates the investigations about influence of the cellular structure of the seed to the distance between primary dendrites,  $\lambda_1$ . Investigations were performed on superalloy single crystals based Ni which were obtained using Bridgman method.

#### UVOD

Glavni parametri kristalizacije, koji bitno utiču na osobine materijala, kao što su mikrostruktura i fizičke osobine, su temperaturni gradijent na granici faza čvrsto/tečno (G), brzina kristalizacije (R) i koncentracija legirajućih elemenata (C).

Monokristali superlegure na bazi nikla nisu monokristali u klasičnom smislu zbog uslova pod kojim kristališu ove složene višekomponentne legure. Struktura ovih kristala je dendritna, a po hemijskom sastavu je vrlo nehomogena.

---

<sup>1</sup> Ovaj rad je objavljen u broju 1/2003 časopisa, ali je došlo do tehničke greške prilikom štampanja slika pa rad štampano ponovo u celini.

Da bi se kontrolisale osobine materijala, neophodno je da se zna mehanizam nastajanja i rast dendrita.

Tačan prelaz ćelijske na dendritnu strukturu u literaturi nije definisan. Neki autori smatraju da je to trenutak kada na ćeliji započne rast u kristalografskim pravcima, dok drugi smatraju da je to onda kada je jasno uočljivo sekundarno grananje. Međutim, uočena je pravilnost prelaza iz ćelijskog u dendritni rast.

U literaturi postoji nekoliko izraza za kvantitativni kriterijum za prelaz sa ćelijskog na dendritni rast, uglavnom empirijskih i mogu se opisati jednačinama (1-3) [1-3].

$$R_{CD} = R_{pc} / k_o \quad (1)$$

$$R_{CD} = 2R_{pc} \quad (2)$$

$$G_L / (R_{CD})^{1/2} = A C_o / k_o \quad (3)$$

gde je:

$R_{CD}$  - kritična brzina prelaza ćelijskog na dendritni rast,

$R_{pc}$  - kritična brzina iznad koje ravna granična površina postaje nestabilna,

$G_L$  - temperaturni gradijent u rastopu,

$C_o$  - početna koncentracija rastvorljive komponente,

$k_o$  - ravnotežni koeficijent raspodele,

$A$  - koeficijent koji se određuje eksperimentalno.

Validnost ovih jednačina zavisi od oblasti u kojoj se vrši istraživanje. Tako je, na primer, pri ispitivanju očvršćavanja sistema Al-Cu, najbolji opis prelaza sa ćelijske na dendritnu strukturu dao izraz opisan jednačinom (1) [4].

U istraživanjima drugih autora [5, 6] pokazano je da postoji zavisnost između rastojanja primarnih dendrita ( $\lambda_l$ ), brzine rasta ( $R$ ) i temperaturnog gradijenta ( $G$ ) tipa:

$$\lambda_l = A G^m R^n \quad (4)$$

gde je:  $A$  parametar koji zavisi od sastava legure. Po jednim autorima [5, 6]  $m = n = 0,5$ , a po drugim [6] je  $m = 0,5$  a  $n = 0,25$ . (Ova istraživanja su uglavnom vršena na dvokomponentnim legurama).

Izvršen je veliki broj istraživanja, eksperimentalnih i teoretskih, o mikrosegregaciji kod ćelijskog i dendritnog rasta [7-9], o veličini i obliku dendrita [8,10-12] kao i o utvrđivanju uslova rasta pri kojima ravan front prelazi u ćelijski a zatim u dendritni [4,13].

## EKSPERIMENT

Eksperimenti su vršeni na aparaturi za dobijanje kristala po metodi Bridgman na sledeći način: šarža superlegure 444 (tabela I) u obliku valjka,

težine 34 grama, stavlja se u prošireni deo epruvete od kvarca, koja se zatim stavlja u peć tako da je gornja ivica epruvete za 4,1 cm niža od gornje ivice grejača. Posle vakuumiranja aparature (do najmanje  $P = 0,04$  mbar), uključi se grejač i zagrevanje se vrši do temperature topljenja legure ( $T = 1306^{\circ}\text{C}$ ).

*Tabela 1 - Sastav superlegure 444*

*Table 1 - The composition of the superalloy 444*

Element	Ni	W	Cr	Al	Ti	Nb
Količina (tež.%)	72,31	11,10	8,60	5,10	1,98	0,91

Kada se šarža istopi dolazi do njenog izlivanja u suženi deo epruvete. Pri dodiru istopljene šarže sa hladnim delom epruvete započinje nekontrolisana kristalizacija. Kristal raste nekontrolisanom brzinom 3,5 cm, mereno od početka kristala, i dobija se polikristalna klica.

Posle stabilizacije sistema, epruveta sa šaržom se podigne za 1 cm i na taj način se otopi deo polikristalne klice sa krupnijom strukturom. Rast kristala definisanom brzinom započinje sa klice dužine 2,5 cm.

Prvih 4,5 cm šarže spušta se brzinom od 4,25 mm/min, a ostali deo brzinom 1mm/min. Posle hlađenja uzorak se vadi razbijanjem epruvete.

Dobijeni uzorci su zatim pripremani za metalografska ispitivanja. Ispitivan je uzdužni i poprečni presek.

Posle mehaničkog i hemijskog poliranja uzorci su selektivno nagrizani u Marble's reagentu (10 g  $\text{CuSO}_4$ , 50 ml  $\text{HCl}$ , 50 ml  $\text{H}_2\text{O}$ ).

Istraživanjem uzdužnog preseka može da se konstatuje promena strukture, od sitnozrne, na početku, koja se postepeno ukрупnjava, promena oblika granične površine, kao i mesta promene strukture u trenutku promene brzine rasta u toku eksperimenta (u ovom slučaju od 4,25 mm/min na 1 mm/min). Ovim istraživanjima, osim strukture može da se odredi i pravac rasta kristala.

## DISKUSIJA DOBIJENIH REZULTATA

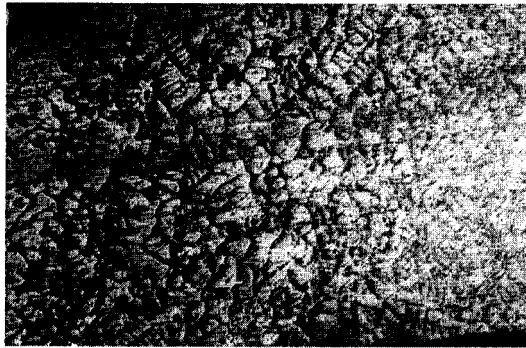
Metalografskim ispitivanjem uzdužnog i poprečnog preseka naših uzoraka mogli smo nedvosmisleno da konstatujemo strukturu uzoraka od klice do kraja uzorka, strukturu i mesto promene strukture prilikom promene brzine rasta u toku eksperimenta (slike od 1 do 8).

Na slici 1 vidi se deo klice sa sitnozrnim polikristalnom strukturom koja prelazi u krupnu čelijsku strukturu, što se vidi i na poprečnom preseku (slika 7).



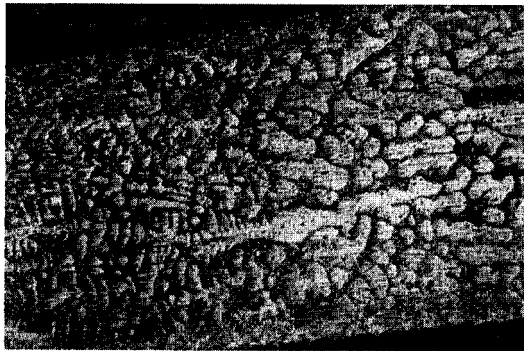
*Slika 1 - Uzdužni presek kristala. Prelaz sa klice na deo kristala koji je rastao brzinom  $R = 4,25$  mm/min. (uveličanje 24x)*

*Figure 1 - The longitudinal section of the single crystal. The transition from the seed to the part of the crystal grown at the rate  $R = 4.25$  mm/min. (magnification 24x)*



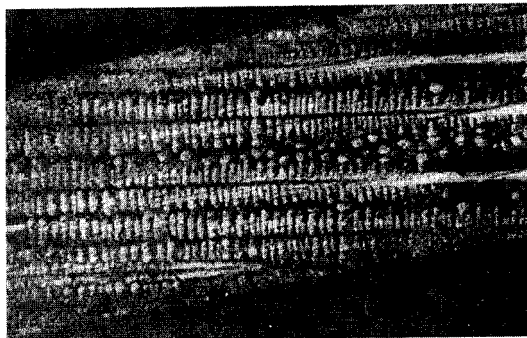
*Slika 2 - Uzdužni presek kristala. Deo koji je rastao brzinom  $R = 4,25$  mm/min. (uveličanje 24x)*

*Figure 2 - The longitudinal section of the single crystal. The part grown at the rate  $R = 4.25$  mm/min. (magnification 24x)*



*Slika 3 - Uzdužni presek kristala. Prelaz sa brzine rasta  $R = 4,25$  mm/min na  $R = 1$  mm/min. (uveličanje 24x)*

*Figure 3 - The longitudinal section of the single crystal. The transition from the grown rate  $R = 4.25$  mm/min to  $R = 1$  mm/min. (magnification 24x)*



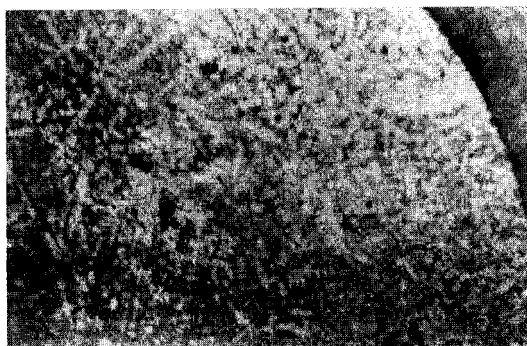
*Slika 4 - Uzdužni presek kristala. Deo koji je rastao brzinom 1 mm/min. (uveličanje 24x)*

*Figure 4 - The longitudinal section of the single crystal. The part grown at the rate  $R = 1$  mm/min. (magnification 24x)*



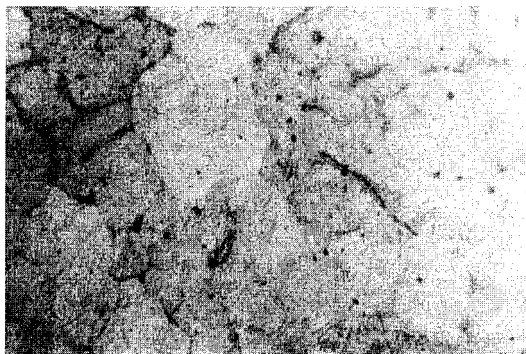
*Slika 5 - Poprečni presek kristala. Sitnozrni deo klice. (uveličanje 24x)*

*Figure 5 - The cross-section of the single crystal. The small grain part of the seed. (magnification 24x)*



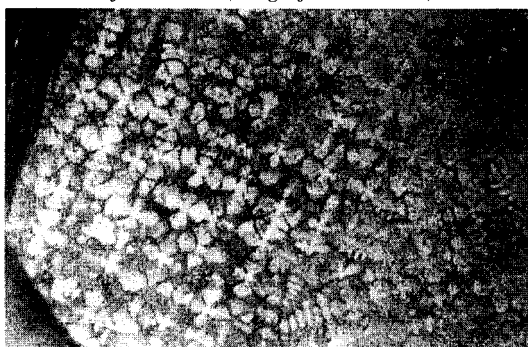
*Slika 6 - Poprečni presek kristala. Sitnozrni deo klice na rastojanju 10 mm od početka. (uveličanje 24x)*

*Figure 6 - The cross-section of the single crystal. The small grain part of the seed at the distance of 10 mm from the beginning. (magnification 24x)*



*Slika 7 - Poprečni presek kristala na rastojanju 21 mm od početka. Čelijska struktura klice. (uveličanje 24x)*

*Figure 7 - The cross-section of the single crystal. The cellular structure of the seed. (magnification 24x)*



*Slika 8 - Poprečni presek kristala koji je rastao brzinom  $R = 4,25 \text{ mm/min}$ . (uveličanje 24x)*

*Figure 8 - The cross-section of the single crystal grown at the rate  $R = 4.25 \text{ mm/min}$ . (magnification 24x)*

Prilikom izlivanja istopljene šarže u hladan deo epruvete, zbog velikog pothlađenja, početak očvrslog dela šarže ima jako sitnozrnu strukturu. Međutim, kako se front kristalizacije kretao naviše i približavao ravnotežnoj temperaturi, tako se menjala brzina rasta, koja je postajala sve manja, i u jednom trenutku ona je postala dovoljno mala da se pojavi čelijska struktura.

Da li je došlo do pojave ravnog fronta kristalizacije mi to ne znamo pošto smo otopili jedan deo očvrsle šarže podizanjem ampule.

Za razliku od naših ranijih radova [10,11], gde smo rast kontrolisanom brzinom započinjali sa sitnozrnom polikristalnom klicom, u ovom slučaju je rast započeo sa klicom koja je imala čelijsku strukturu, što nam omogućava da ispitamo uticaj čelijske strukture na rastojanje između primarnih dendrita ( $\lambda_1$ ) i da odredimo oblik fronta kristalizacije.

Možemo da konstatujemo da čelijska struktura nije uticala na veličinu  $\lambda_1$  za oblast u kojoj je brzina rasta  $R = 4,25$  mm/min, odnosno u slučaju kada se brzina rasta menja sa manje na veću. Dolazi samo do promene  $\lambda_1$  kada se brzina menja sa veće na manju (sl. 3).

U našim ranijim radovima [7, 10, 11] konstatovali smo da se  $\lambda_1$  ne menja ukoliko se brzina rasta u toku eksperimenta promeni sa manje na veću (u ovom slučaju čelijski rast –dendritni rast), već samo ako je promena sa veće na manju brzinu rasta (u ovom slučaju sa brzine od 4,25 na 1 mm/min), što su konstatovali i neki drugi autori [12, 14, 5]. Naša istraživanja, kao i istraživanja drugih autora [4, 7, 8, 10, 12], pokazuju da karakteristike dendritnog rasta određuje difuzija rastvorljive komponente i površinska energija.

Uvođenjem Pecletovog broja [14] direktno je povezana brzina rasta sa dimenzijom dendrita, pri čemu je uslov za transformaciju čelijskog u dendritni rast  $\partial P/\partial R=0$ , gde je P Pecletov broj, a R brzina rasta.

Sa povećanjem brzine rasta ne dolazi do promene  $\lambda_1$ , odnosno ne dolazi do smanjenja  $\lambda_1$ , jer zbog povećanja koncentracije rastvorljivih komponenti u međudendritnom prostoru ne mogu da se pojave novi dendriti u pravcu rasta.

Ova istraživanja su nam pokazala i da oblik fronta kristalizacije nije ravan već ispupčen (sl. 1), i da pravac rasta kristala malo odstupa od pravca  $\langle 100 \rangle$ .

## ZAKLJUČAK

Cilj ovog rada bio je da se odredi kako rast koji započinje sa klice koja ima čelijsku strukturu utiče na veličinu dendrita, odnosno na veličinu  $\lambda_1$ .

Uzorci su dobijeni po metodi Bridgman, a ispitivanja su vršena na uzdužnom i poprečnom preseku.

I u ovom slučaju, kao i kod naših ranijih istraživanja, gde je konstatovano da se veličina  $\lambda_1$  ne menja sa promenom brzine sa manje na veću, konstatovano je da čelijska struktura ne utiče na veličinu  $\lambda_1$ . Takođe je konstatovano da je front kristalizacije ispupčen, a da pravac rasta kristala malo odstupa od pravca  $\langle 100 \rangle$ .

## LITERATURA

- [1] B. Chalmers, "Principles of Solidification", Wiley, New York, 1964, 158
- [2] R. Trivedi, *Metall. Trans. A*, 15A (1984) 977
- [3] V. A. Efimov, *Razlivka i kristalizaciistalli*, Metalurgiya, Moskva, 1976
- [4] A. Valčić, V. Radojević, S. Nikolić, *J. Serb. Chem. Soc.* 60(1) (1995) 33
- [5] M. Solari, N. Biloni, *J. Crystal Growth* 49 (1980) 451
- [6] N. A. Palacio, M. Solari, N. Biloni, *J. Crystal Growth* 73 (1985) 369

- [7] A. Valčić, V. Radojević, S. Nikolić, XXVIII Oktobarsko savetovanje, Zbornik radova, Donji Milanovac, 1996, 719
- [8] V. Radojević, A. Valčić, S. Nikolić, A. Milutinović-Nikolić, *Advanced Science and Technology of Sintering*, Kluwer Academic/Plenum Publishers, New York, 1999, 611
- [9] M. J. Starink, R. C. Thompson, *Journal of Materials Science* (36) (23) (2001) 5603
- [10] S. Nikolić, A. Valčić, V. Radojević, *Materials Science Forum* 282-283, 1998, 331
- [11] S. Nikolić, A. Valčić, V. Radojević, 1st International Conference of the Chemical Societies of the South-East European Countries, Book of abstracts, Vol. I, Halkidiki, Greece, 1998, PO 338
- [12] F. Liu, X. Guo, G. Young, *Materials Research Bulletin* 36 (1) (2001) 181
- [13] V. Radojević, S. Nikolić, A. Valčić, *Metalurgija* 8 (3) 2002, 223
- [14] R. Trivedi, *J. Crystal Growth* 49 (1980) 219
- [15] N. D. Souza, M. G. Ardakani, A. Wagner, B. A. Shollock, M. Mc Leon, *Journal of Materials Science* 37 (3) (2002) 481