文章编号：1673-5196(2020)02-0019-05

送粉速率对射频等离子体球化粉末性能的影响

尹 燕[1]，赵 超[1]，潘存良[1]，张瑞华[2,3]

(1. 兰州理工大学 省部共建有色金属先进加工与再利用国家重点实验室，甘肃 兰州 730050；2. 中国钢研科技集团有限公司，北京 100081；3. 阳江市五金刀剪产业技术研究院，广东 阳江 529533)

摘要：采用射频等离子体球化技术对多次激光3D打印废弃的GH4169合金粉末颗粒进行二次改造，研究了送粉速率对粉末球化效果的影响规律，分析了粉末球化前后显微组织及性能的差异.研究结果表明：送粉速率越小，单位质量粉末吸收过多的热量而导致其气化，颗粒表面“吸附小颗粒粉末”较多，球形粉末收得率很小；送粉速率越高，单位质量粉末吸收的热量不足以熔化所有粉末颗粒，出现部分的卫星球、包覆粉等缺陷，粉末球化率降低.球化处理后的粉末颗粒显微组织主要包括胞状晶、柱状晶和微晶.在适宜的等离子体球化工艺参数下，获得的粉末颗粒球形度极佳，流动性和松装比得到显著改善，粉末平均粒径增大，粒径分布更趋均匀.

关键词：GH4169；射频等离子体；球化；送粉速率

中图分类号：TG113 **文献标志码**：A

Effect of the feeding rates on the performance of RF plasma spheroidized powders

YIN Yan[1], ZHAO Chao[1], PAN Cun-liang[1], ZHANG Rui-hua[2,3]

(1. State Key Laboratory of Advanced Processing and Recycling of Nonferrous Metals, Lanzhou Univ. of Tech., Lanzhou 730050, China; 2. China Iron&Steel Research Institute Group, Beijing 100081, China; 3. Hard-ware Knife Cut Industrial Technology Research Institute Yangjiang, Yangjiang 529533, China)

Abstract: The property modification of GH4169 alloy powder particles discarded by 3D laser printing was carried out by RF plasma spheroidization technology. In this work, the influence of powder feeding rate on the effect of powder spheroidization was studied, and the difference of microstructure along with properties before and after powder spheroidization was analyzed either. Our research results indicated that the smaller the powder feeding rate is, the more heat the unit mass powder absorbs, leading to its vaporization. The more “adsorbed small particle powder” on the particle surface, the smaller the spherical powder yield. On the other hand, the higher the powder feeding rate is, the heat absorbed by the powder per unit mass is not enough to melt all the powder particles. Some defects such as satellite ball and coated powder appear, and the spheroidization rate of the powder decreases as a result. The microstructure of granulated powder particles consists mainly of cellular crystals, columnar crystals and crystallites. By adopting appropriate parameters of plasma spheroidization, the obtained powder particles have excellent sphericity, improved fluidity and looseness ratio significantly, increased average particle size and more uniform particle size distribution.

Key words: GH4169; radio frequency plasma; spheroidization; the feeding rat

GH4169合金是一种Fe-Ni-Cr的时效强化型高温合金，其主要强化相为面心立方结构的γ'以及体心四方结构的γ''.其中γ'的化学式为$Ni_3(Al,Ti)$，γ''的化学式为Ni_3Nb. 因其优异的高温性能、稳定性及综合性能，广泛应用于航空航天、舰船、兵器及发动机涡轮叶片等工业关键零部件[1-4].随着工业制造

收稿日期：2019-04-11
基金项目：广东省‘扬帆计划’引进创新创业团队专项基金(2015YT02G090)，广东省高端刀剪增材制造(3D打印)工程技术研究基金(509153168061)，阳江市五金刀剪产业技术研究院新型研发机构初创期建设基金(611229498090)
作者简介：尹 燕(1973-)，女，四川西昌人，博士，教授.

(C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

的不断发展，对高温合金的需求又提出了新的挑战，增材制造技术得到了广大学者、企业家的青睐，进而对高性能金属粉末的制备投入了广泛的研究.

目前，球形粉末制备主要采用惰性气体雾化法(TGA)、旋转电极法(REP)、旋转圆盘电子束熔化(EBRD)、旋转电极等离子体熔化(PREP)、旋转电极电子束熔化(EBREP)等方法，采用这些方法都存在一些缺点：含氧量偏高，准球形且易发生粉末颗粒粘连，粉末粒度偏大并且粒径分布很宽等缺陷[5-9].

射频等离子体球化技术是一种利用高温等离子体对金属粉末材料进行表面改造的技术[10].不规则的粉末颗粒被载气送入到感应等离子体焰炬中，粉末颗粒在高温等离子体焰炬中迅速熔化成金属液滴，由于液体表面具有较强的表面张力[11-16]，在其作用力下液滴最终凝固成为球形粉末.等离子体焰炬存在较大的温度梯度，金属液滴在飞离等离子体火焰高温区域后急剧冷却，凝固的球形粉末颗粒成分均匀，显微组织较细.较其他方法，粉末颗粒具有致密度高、球形度极佳、纯度高等优点[17-20].射频等离子体球化粉末过程复杂，目前国内外的学者取得了一定的成果，但对工艺参数的研究还不够成熟.

本文以 GH4169 粉末为原料，通过射频等离子体对其进行球化.研究送粉速率对球化粉末特性、球化率的影响.

1 实验材料及方法

1.1 等离子球化粉末

实验采用加拿大泰克纳公司研制的 15 kW 型射频等离子体粉末球化处理系统制备球形 GH4169 粉末.射频等离子体设备主要包括等离子体发生器、等离子体焰炬、等离子体反应器、送粉系统、真空系统、粉末收集系统等部分.实验粉末采用增材制造(激光 3D 打印，SLM)多次打印成型件之后，铺粉效果差，成型件有明显的裂纹、气孔等缺陷，粒度为 15～53 μm.且数次打印之后的粉末表面发生了很大的变化，出现许多缺陷粉末，如卫星球、包覆粉、杂质等，粉末颗粒的性能严重下降，如图 1 所示.

1.2 等离子体球化 GH4169 粉末过程

实验前，需完成对射频等离子体系统清洗检测；抽真空，以氩气为护层气体、中心气体通入等离子体系统中，并通入一定量氢气，建立稳定、持续的等离子体焰炬，输出功率为 15 kW，压力为103.35 kPa；以氩气为载气将 GH4169 粉末送入到等离子体焰炬中，粉末颗粒迅速吸热熔化，在表面张力的作用下冷却凝固成球形粉末，收粉罐中收集，具体实验参数见表 1.

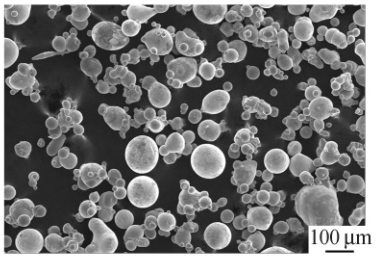


图 1 原材料粉末的 SEM 形貌

Fig.1 SEM morphology of raw material powder

表 1 射频等离子体实验的工艺参数

Tab.1 Process parameters of RF plasma experiment

等离子体工艺参数	变化值
中心气体(Ar)/ (L · min^{-1})	8～13
护层气体(Ar)/ (L · min^{-1})	30～40
氢气(Ar)/ (L · min^{-1})	2～4
载气(Ar)/ (L · min^{-1})	2～7
送粉速率/(g · min^{-1})	5～65
系统压力/kPa	103.35
等离子体功率/kW	15

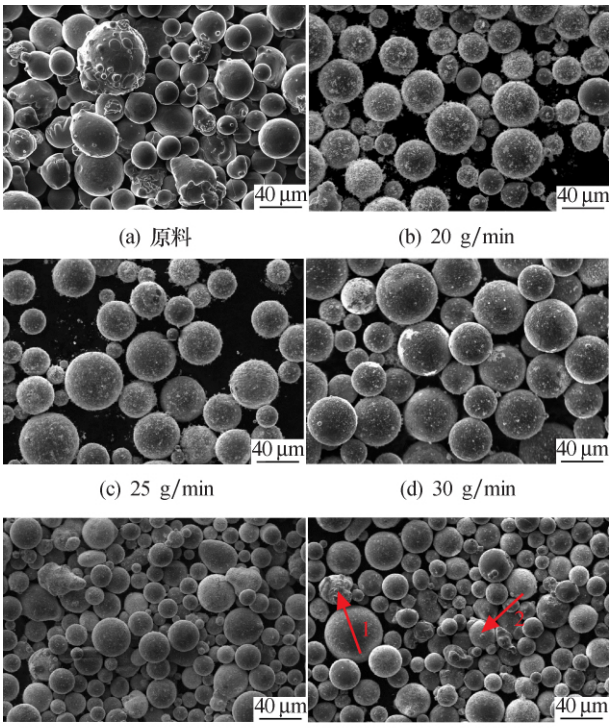
2 实验结果与分析

2.1 送粉速率对球化粉末形貌的影响

在射频等离子体球化 GH4169 合金粉末过程中，工艺参数尤其是送粉速率对 GH4169 合金粉末的球化效果影响较大.相同的球化工艺参数下，送粉速率不同，GH4169 合金粉末球化的效果亦不相同.图 2a～f 为不同送粉速率下原始粉末及经等离子体处理的球形 GH4169 粉末颗粒的 SEM 形貌.如图 2a 所示，原始粉末的球形度较差，存在许多缺陷粉末，例如椭圆球、卫星球和包覆粉末等，使粉末颗粒之间相互运动阻力增加，流动性降低，使用性能严重下降.如图 2b～f 所示，可以看出，随着送粉速率的逐渐增加，GH4169 合金粉末的球化效果逐渐变差.主要原因是相同的球化工艺参数下，射频等离子体系统提供的能量固定.当送粉速率增加时，所有粉末颗粒完全熔化的有效平均能量降低，用于加热金属粉末颗粒的总热量增加，能量利用率提高.

在较小的送粉速率下，球化粉末颗粒表面存在不同程度的细颗粒粉黏附，如图 2b～c 所示.小颗粒粉末具有较大的比表面积，利于吸收和转移更多的能量.在等离子体焰炬内，单位体积的粉末颗粒数量较少，颗粒之间的间距较大，粉末充分吸收热量，小颗粒粉末由于吸收的热量过高，颗粒表面气化.在凝固冷却过程中，部分小颗粒粉末随着等离子体流场运动，运动到球化反应器壁，且附着在反应器壁上；

(C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net



(a) 原料　(b) 20 g/min　(c) 25 g/min　(d) 30 g/min　(e) 35 g/min　(f) 40 g/min

图 2　不同送粉速率下的球化处理 GH4169 粉末颗粒的 SEM 照片

Fig.2　SEM images of the as-treated spherical GH4169 particles under different feeding rates

部分小颗粒粉末因气流的作用相互之间发生碰撞,黏接在一起,附着到大颗粒粉末表面,粉末颗粒表面光洁度较低.

如图 2d 所示,粉末颗粒表面附着明显减少,球化效果改善最佳.在该送粉速率下,粉末颗粒在等离子体焰炬中经过固相加热、颗粒熔融和液相加热阶段,在表面张力和高温梯度下凝结成球形粉末颗粒.如图 2e、f 所示,粉末颗粒的表面附着物基本消失,但是缺陷粉末较多,存在较多的包覆粉末、不规则颗粒.因为在射频等离子体球化过程中,由于其他工艺参数固定,等离子体焰炬温度固定,送粉速率过大,单位时间内通过等离子体焰炬的颗粒变多,粉末颗粒达到球化效果需要的热量增多,等离子体系统无法提供足够的热量熔化所有粉末颗粒,难以完全改造不规则粉末形貌;同时,由于较大的送粉速率,粉末颗粒之间的碰撞剧烈,导致粉末不能沿着原始方向向下通过等离子体焰炬,粉末颗粒的运动轨迹杂乱,部分粉末偏离出等离子体焰炬的高温区域,使粉末吸热不充分.如图 2f 中颗粒 1 所示,粉末颗粒相互黏接.主要是由于颗粒之间间距小,颗粒熔化后发生碰撞.图 2f 中颗粒 2 所示为不规则颗粒,由于粉末颗粒吸热不充分,颗粒表面未完全熔化,表面张力不足以使其形成球形液滴导致的.

图 3 所示为 GH4169 合金粉末的收得率及球化率与送粉速率的关系曲线图,随着送粉速率的逐渐增大,粉末颗粒球化率逐渐增加随后下降,收得率呈现逐渐增加趋势.当送粉速率小于 30 g/min 时,随着送粉速率的增加,GH4169 合金粉末颗粒的球化率基本保持不变,收得率逐渐增大.因为较小的送粉速率时,粉末颗粒吸热可获得充足的熔化所需能量,经过固相加热、颗粒熔融和液相加热阶段,在表面张力和高温梯度下凝结成球形粉末,达到良好的球化效果.但粉末颗粒吸收过多的能量,易于使小颗粒粉末达到其沸点以上的温度,发生强烈蒸发,导致粉末颗粒收得率较小.较大的送粉速率时,粉末颗粒未能获得足够熔化所需的能量,使得收集的粉末球化效率较低,但粉末颗粒蒸发较小,收得率也相应的增加.当送粉速率超过 30 g/min 时,GH4169 粉末颗粒不能吸收足够的能量使其完全熔化,使得粉末颗粒球化率直线下降,收得率也增加.实验表明,送粉速率为 30 g/min 时,粉末颗粒的球化率较高,收得率也有所增加.

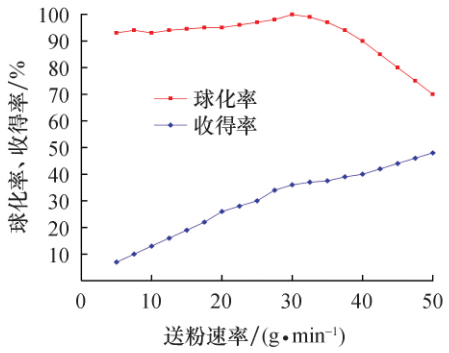


图 3　粉末收得率及球化率与送粉速率的关系

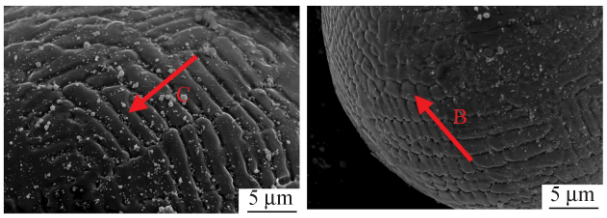
Fig.3　Relationship between powder yield and spheroidization rate and powder feeding rate

2.2　球化的粉末颗粒微观结构

粉末颗粒离开等离子体焰炬熔化之后,金属液滴和环境之间的能量交换主要包括在反应器中的金属液滴和循环冷却水之间的热交换或液滴的辐射散热.图 4、图 5 标记的 A,B 和 C 分别表示微晶,胞状晶和柱状晶.

等离子体球化 GH4169 合金粉末颗粒的凝固速率大约为 $10^4 \sim 10^8$ K/s,高于传统的金属凝固的冷却速率. 因此,会出现更细的胞状晶、柱状晶,甚至微晶,如图 4 所示.粉末颗粒的表面存在较小的沟槽,有些起伏,且内部结构致密.没有气孔、空洞等缺陷,如图 5 所示.

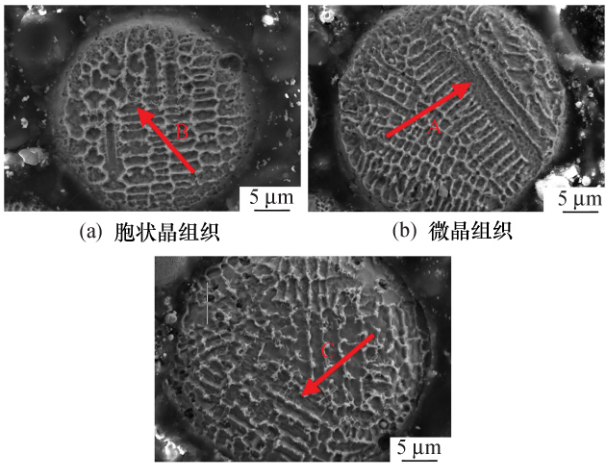
(C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net



(a) 柱状晶组织　　(b) 胞状晶组织

图 4　球化处理的 GH4169 粉末颗粒 SEM 照片

Fig.4　SEM images of spheroidized GH4169 powder particles



(a) 胞状晶组织　　(b) 微晶组织

(c) 柱状晶组织

图 5　球化处理的 GH4169 粉末颗粒截面的 SEM 照片

Fig.5　SEM images of cross section of GH4169 Powder particles treated by spheroidization

2.3　球化前后粉末的化学成分

取少量球化前后的粉末进行化学成分检测，发现球化前后粉末的主要元素基本保持不变，球化前粉末的氧含量为 670 mg/m^3，球化后粉末的氧含量为 297 mg/m^3，见表 2.

表 2　GH4169 粉末球化前后的化学成分(质量分数)

Tab.2　Chemical composition of GH4169 powder before and after spheroidization　　%

元素	Ni	Cr	Mo	Al	Ti
球化前	50.44	18.71	2.80	0.98	0.95
球化后	52.94	18.31	2.58	0.84	0.92
元素	Ni	Cr	Mo	Al	Ti
球化前	50.44	18.71	2.80	0.98	0.95
球化后	52.94	18.31	2.58	0.84	0.92

因为等离子体无电极污染及射频等离子体球化粉末过程中是在惰性气氛中进行的，且在工作气体中通入一定量的氢气产生还原气氛，所以射频等离子体球化粉末过程中不会带来外来杂质.

2.4　球化粉末性能分析

表 3 为 GH4169 粉末颗粒球化处理前后性能对比.从表 3 可以看出，由于等离子体处理后的粉末颗粒黏附了许多小颗粒粉末，粉末颗粒之间存在一定的间隙和桥接现象，粉末颗粒之间的摩擦阻力大大降低，导致堆积密度、振实密度和流动性的显着改善.

表 3　GH4169 粉末颗粒球化处理前后的性能比较

Tab.3　Performance comparison for GH4169 powder particles before and after spheroidization treatment

粉末特性	球化前粉末	球化后粉末
流动性(s/50g)	15.27	21.30
安息角/(°)	29.5	34.0
松装密度/(g·min^{-1})	4.25	4.11
振实密度/(g·min^{-1})	5.26	5.27

图 6 为 GH4169 粉末球化前后的粒度分布.由图 6 可知，球化处理的球形 GH4169 合金粉末的平均颗粒尺寸略大于原材料粉末的颗粒尺寸.粉末颗粒被载气送入等离子体焰炬中，小颗粒粉末具有发达的表面张力，因此部分小颗粒粉末吸收过多的热量并蒸发，黏附在大颗粒表面、反应器壁上及旋风分离器和过滤器，球化粉末小颗粒粉末数量减少.在气流、阻力、热泳力等的作用下，小颗粒粉末和大颗粒粉末的部分进行相互碰撞形成大液滴，并且在表面张力下形成球形大颗粒粉末. 最终球化粉末颗粒的平均粒度增加. 粒度分布间隔变窄.

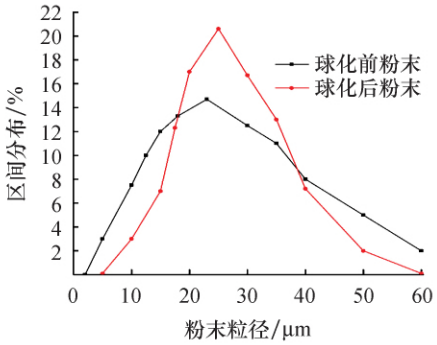


图 6　GH4169 粉末球化前后的粒度分布

Fig.6　Particle size distribution of raw and as-treated GH4169 powders

3　结论

1）在射频等离子体处理过程中，粉末颗粒的球化效率随送粉速率的增加而减少.送粉速率太大将导致粉末不能充分吸收热量，且球化率降低.送粉速率太小，粉末吸收过多的热量而气化，蒸发严重，粉末收得率明显减少.

2）球化处理的粉末颗粒显微组织主要包括胞状晶、柱状体、甚至是微晶.

3）在适宜的等离子体球化工艺参数下，可获得球形度极佳的 GH4169 合金粉末，粉末的表面光滑，流动性、松装密度、振实密度得到显著改善.球化

(C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

粉末平均粒径增加,粒径分布变窄.

参考文献:

[1] 贾清波.Ni 基高温合金及其复合材料选区激光熔化成形工艺、组织及性能 [D].南京:南京航空航天大学,2015.

[2] 仲崇亮.基于 Inconel718 的高沉积率激光金属沉积增材制造技术研究 [D].长春:中国科学院研究生院,2015.

[3] 季根顺,杨彦莉,寇生中.镍基高温合金 K4169 的高温相变研究 [J].兰州理工大学学报,2016,42(3):14-17.

[4] QI H,AZER M,RITTER A.Studies of standard heat treatment effects on microstructure and mechanical properties of laser net shape manufactured INCONEL 718 [J].Metallurgical and Materials Transactions A,2009,40(10):2410-2422.

[5] 陈仕奇,黄伯云.金属粉末气体雾化制备技术的研究现状与进展 [J].粉末冶金材料科学与工程,2004,22(5):297-302.

[6] 张曙光,杨必成,杨　博,等.新型超声雾化技术制备球形金属粉末 [J].金属学报,2002,38(8):888-892.

[7] 王华明.高性能大型金属构件激光增材制造:若干材料基础问题 [J].航空学报,2014,35(10):2690-2698.

[8] XU J L,KHOR K A,GU Y W,*et al*.Radio frequency (rf) plasma spheroidized HA powders: powder characterization and spark plasma sintering behavior [J].Biomaterials,2005,26(15):2197-2207.

[9] 刘文胜,彭　芬,马运柱,等.气雾化法制备金属粉末的研究进展 [J].材料导报,2009,23(3):53-57.

[10] TONG J B,LU X,LIU C C,*et al*.Fabrication of micro-fine spherical high Nb containing TiAl alloy powder based on reaction synthesis and RF plasma spheroidization [J].Powder Technology,2015,283(8):9-15.

[11] 王建军,郝俊杰,郭志猛,等.射频等离子体制备球形粉末的数值模拟 [J].中国科技论文,2015,10(22):2642-2647.

[12] CHEN X,PFENDER E.Behavior of small particles in a thermal plasma flow [J].Plasma Chemistry & Plasma Processing,1983,3(3):351-366.

[13] 古忠涛,叶高英,刘川东,等.射频等离子体制备球形钨粉研究 [J].核聚变与等离子体物理,2010,30(2):178-182.

[14] JIANG Xianliang,BOULOS M.Induction plasma spheroidization of tungsten and molybdenum powders [J].Transactions of Nonferrous Metals Society of China,2006,16(1):13-17.

[15] 高　斌,王全胜,柳彦博,等.感应等离子球化 $Sm_2Zr_2O_7$ 粉末涂层性能研究 [J].热喷涂技术,2015,7(4):31-36.

[16] 李文生,路　阳,杨效田,等.等离子制备高铝青铜合金粉体涂层的组织及其性能 [J].兰州理工大学学报,2009,35(3):4-9.

[17] XU J L,KHOR K A,GU Y W,*et al*.Radio frequency (rf) plasma spheroidized HA powders: powder characterization and spark plasma sintering behavior [J].Biomaterials,2005,26(15):2197-2207.

[18] 郭双全,葛昌纯,冯云彪,等.低成本等离子体球化技术制备热喷涂用球形钨粉的工艺研究 [J].粉末冶金工业,2010,20(3):1-4.

[19] 朱海龙,童洪辉,杨发展,等.感应耦合氩气热等离子体速度分布的数值分析 [J].核聚变与等离子体物理,2013,33(2):181-186.

[20] 白柳杨,金化成,袁方利,等.高频感应热等离子体在微细球形粉体材料制备中的应用 [J].高电压技术,2013,39(7):1577-1583.

(C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net