



La 对 CMSX-4 单晶合金与型壳润湿性及界面反应的影响

韩伟豪^{1,2}, 余建波^{1,2}, 任忠鸣^{1,2}

(1 省部共建高品质特殊钢冶金与制备国家重点实验室, 上海 200444;

2 上海大学材料科学与工程学院, 上海 200444)

摘要: 为了获取高质量的含稀土单晶叶片, 采用座滴法研究了 La 含量对 CMSX-4 单晶合金与陶瓷型壳润湿性及界面反应的影响。实验结果表明, 添加 90×10^{-6} La 时, 合金与型壳的润湿角略有下降, 合金中仅发现 Al 与型壳中的 SiO_2 发生反应, 形成产物为 Al_2O_3 ; 当合金中 $w[\text{La}]$ 达到 143×10^{-6} 时, 合金与型壳的润湿角显著下降, 合金中的 La 和 Al 都与型壳中的 SiO_2 发生反应; 随后继续增加 La 含量, 界面处析出不同 La、Al 原子比的铝酸镧化合物, 润湿角变化不大。由此可见, 实验中, 143×10^{-6} 为 CMSX-4 单晶合金中 La 发生界面反应的临界含量, 而且, La 与 SiO_2 的反应可以提高合金/型壳体系的润湿性。

关键词: La 含量; CMSX-4 单晶合金; 润湿性; 界面反应

DOI: 10. 20057/j. 1003-8620. 2024-00109 **中图分类号:** TG249. 5

Effect of La on Mould Wettability and Interfacial Reaction between CMSX-4 Single Crystal Alloy and Ceramic Mould

Han Weihao^{1,2}, Yu Jianbo^{1,2}, Ren Zhongming^{1,2}

(1 State Key Laboratory of Advanced Special Steel, Shanghai 200444, China;

2 Shanghai University, Shanghai 200444, China)

Abstract: In order to obtain high-quality rare earth containing single crystal blades, the effect of La content on the wettability and interface reaction between CMSX-4 single crystal alloy and ceramic mould was studied by the droplet method. The experimental results show that when the 90×10^{-6} La is added, the wetting angle between the alloy and the mould decreases slightly, and only Al reacts with SiO_2 in the mould and the reaction product is Al_2O_3 . When the La content in the alloy reaches 143×10^{-6} , and the wetting angle between the alloy and the mould decreases significantly, and both La and Al in the alloy react with SiO_2 in the mould. Subsequently the La content continue to increase, and the lanthanum aluminate compounds with different La and Al atomic ratios are precipitated at the interface, and the wetting angle changes little. It can be seen that in the present experiment 143×10^{-6} is the critical content of interfacial reaction of La in CMSX-4 single crystal alloy, and the reaction between La and SiO_2 can improve the wettability of the alloy/mould system.

Key Words: La Content; CMSX-4 Single Crystal Alloy; Wettability; Interfacial Reaction

单晶叶片服役温度高, 工况严苛, 所受应力复杂, 是航空产品中第一关键部件^[1]。航空发动机的性能由叶片的品质决定。CMSX-4 单晶合金因其较高的承温能力、优异的组织稳定性以及良好的抗热腐蚀性, 是制备单晶叶片的首选合金。

高温合金添加适量稀土不仅能净化晶界、改善组织致密性、提升力学性能, 还能促进形成选择性氧化膜^[2-3], 增强合金的抗氧化性能^[4-5]。研究表明, 定量添加稀土 La、Y、Ce 的 CMSX-4 合金的抗氧化能

力均有提高, 添加 La 的合金抗氧化性能最为优异^[6]。但过量添加稀土会加剧合金与陶瓷材料的界面反应, 恶化铸件表面质量。

采用定向凝固制备单晶叶片, 合金熔体与陶瓷材料在高温下接触, 极易发生界面反应, 出现铸件表面粘砂、反应层或气孔等缺陷, 降低了铸件合格率。DZ22 高温合金叶片表面粘砂层分析表明^[7], 合金粘砂是由熔体中的 Cr、Hf 与型壳界面反应生成 Cr_2O_3 和 HfO_2 导致的; Orlov 等^[8]的研究则表明, 合金

基金项目: 国家科技重大专项(项目号 J2019-VI-0023-0140)

作者简介: 韩伟豪(1999—), 男, 硕士; **E-mail:** hanweihao@shu.edu.cn; **收稿日期:** 2024-04-25

通信作者: 余建波(1982—), 男, 博士, 研究员; **E-mail:** jbyu@shu.edu.cn

熔体中的C与型壳中的SiO₂反应生成CO气体,形成气孔缺陷。

另有研究表明,合金熔体与陶瓷材料的界面反应与润湿性密切相关^[9]。若合金熔体和陶瓷材料润湿性好,利于界面反应发生,铸件表面容易形成粘砂。单晶高温合金中加入微量La、Y、Ce等稀土元素,不仅会改变合金熔体的表面张力^[10],影响体系润湿性,还会加剧熔体与陶瓷材料之间的界面反应。Wang等^[11]研究发现,含La镍基高温合金会与铝基型壳发生界面反应。目前,关于高温合金熔体与陶瓷材料间的界面相互作用机理缺乏深入研究。如何提高合金熔体与陶瓷材料之间的润湿性以及抑制界面反应发生已成为目前的研究热点。本文选用第二代单晶合金CMSX-4,采用座滴法研究了La含量对合金熔体与型壳界面相互作用的影响,讨论了高温合金熔体/型壳体系润湿性与界面反应之间的关系,并进一步阐明了稀土含量对界面反应的影响机理。

1 实验材料与方法

实验采用熔模精密铸造制备30 mm×30 mm×5 mm的型壳基片。陶瓷浆料由EC95粉和硅溶胶组成,其中,EC95粉的成分(质量分数)为95%Al₂O₃+5%SiO₂,硅溶胶中SiO₂质量分数为30%。母合金选用二代单晶合金CMSX-4,CMSX-4合金主要成分见表1。通过5 kg真空感应炉熔炼制备6种不同La含量的合金铸锭, $w[\text{La}]$ 分别为0、90×10⁻⁶、143×10⁻⁶、276×10⁻⁶、451×10⁻⁶、784×10⁻⁶。采用线切割取铸锭芯部5 mm×5 mm×5 mm的块状合金,经砂纸打磨后,用无水乙醇将型壳基片与合金进行超声清洗。

采用原位座滴法研究不同La含量CMSX-4合金熔体与陶型壳界面反应及润湿角。实验设备为高温高真空接触角测量仪(型号:OCA25-HTV1800),

表1 CMSX-4合金的主要成分(质量分数)

Table 1 Main chemical composition of CMSX-4 super-alloy %

Al	Cr	Co	Ta	Ti	Mo	W	Hf	Re	Ni
5.5	6.5	9.0	6.5	1.0	0.6	6.0	0.1	3.0	Bal.

其结构示意图如图1所示。将合金置于型壳基片上,用水平仪调节基片至水平状态,真空抽至8×10⁻³ Pa,启动升温,以20 °C/min的升温速率加热至1 550 °C,保温40 min,待润湿角稳定后通过CCD相机摄取图像,通过ADSA,SESDROPD和FTA32进一步处理得到合金熔体与陶瓷型壳平衡润湿角。

实验结束后,设备以20 °C/min冷却至室温,将合金与陶瓷基片取出。镶样经粗磨、精抛后,用扫描电子显微镜(SEM型号:FEI-Quanta 450)观察反应层形貌,配合能谱仪(EDS)测定了反应层元素分布;采用x射线衍射仪(XRD型号:D8 Advance)对物相进行检测。

2 实验结果

图2为不同La含量单晶合金熔体在陶瓷型壳基片上润湿角的变化情况。由图2可知:随着La含量的增加,体系的润湿角不断减小。仔细分析可知合金熔体与型壳的润湿角变化可以分为两个阶段:当合金中 $w[\text{La}] < 143 \times 10^{-6}$ 时,随着La含量的增加,润湿角迅速下降至117.3°;随后继续增加La含量,润湿角变化不大。由此可知,当 $w[\text{La}]$ 约143×10⁻⁶是合金/型壳体系的润湿性的特征转变点。

图3是不同La含量的CMSX-4合金与型壳反应后合金底部表面的微观形貌,由图3可知, $w[\text{La}]$ 为0.90×10⁻⁶合金底部分布着连续的黑色蜂窝状反应层,零星分布着白色陶瓷颗粒,如图3(a)(b)所示; $w[\text{La}]$ 增加到143×10⁻⁶、276×10⁻⁶时,合金底部形成了针棒状反应层,如图3(c)(d)所示;继续增加 $w[\text{La}]$ 到451×10⁻⁶,合金底部同时出现了针棒状和波

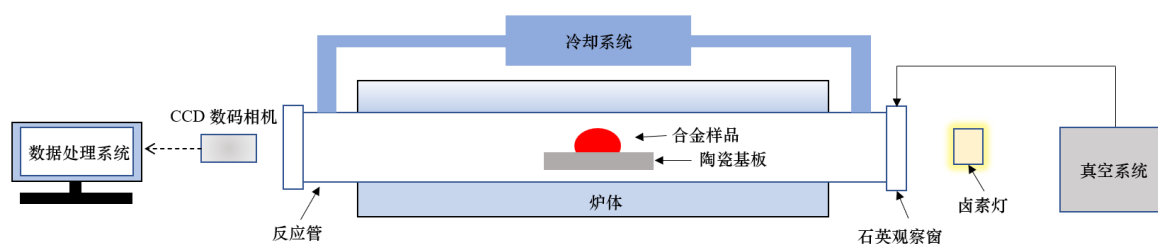


图1 高温高真空接触角测量仪结构示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the structure of the high-temperature and high-vacuum contact angle measuring instrument

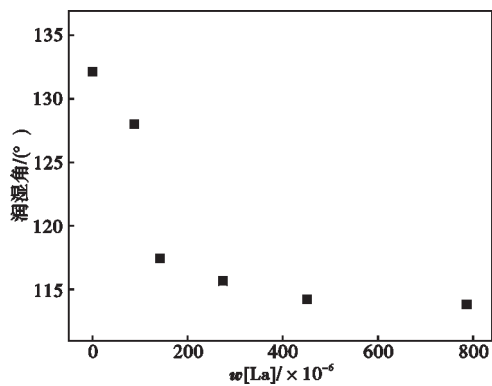


图2 不同 La 含量单晶合金与型壳的润湿角

Fig. 2 Wetting angles of single crystal alloys and mould with different La contents

纹状反应层,如图 3(e)所示;当 $w[\text{La}]$ 增至 784×10^{-6} ,合金底部大量分布着与波纹状反应层混合的陶瓷颗粒,如图 3(f)所示。由此可知,随着 CMSX-4 合金中 La 含量的增加,界面反应程度加剧,合金底部反应产物逐步增多,黏附层变厚。

为了进一步研究各反应区域的反应情况,采用 EDS 对典型区域进行点扫,结果见表 2,结合图 3 可知,黑色蜂窝状部分(点 2、4)为含有 Al、O 的反应产物;添加稀土 La 后生成的针棒状(点 5、6、7)和波纹状(点 8、11)产物含有 La、Al、O;图中凸起的亮白色块状部分(点 1、3、9、10)含有 Al、Si、O,与陶瓷型壳成分相同。

为了确定反应产物的物相结构,对不同 La 含量的 CMSX-4 合金底部的反应层进行 XRD 分析,

表 2 图 3 中不同反应区域的 EDS 分析(原子比)
Table 2 EDS analysis of different reaction regions in Figure 3

图 3 中分析点	Al	O	La	Ni	Si
1	23.17	71.64	-	-	5.19
2	37.13	62.87	-	-	-
3	21.51	70.38	-	-	8.11
4	31.72	63.51	-	4.77	-
5	36.65	57.53	3.63	2.19	-
6	32.36	60.78	2.74	4.12	-
7	35.63	60.96	3.41	-	-
8	18.02	57.54	19.71	4.73	-
9	25.63	71.92	-	-	2.45
10	27.83	68.91	-	-	3.26
11	20.43	54.92	20.36	4.29	-

如图 4 所示,结果表明, $w[\text{La}]$ 为 0、 90×10^{-6} 的合金界面反应产物均为 Al_2O_3 ;当合金中 $w[\text{La}]$ 达到 143 、 276×10^{-6} 时,形成 $\text{LaAl}_{11}\text{O}_{18}$;合金中 $w[\text{La}]$ 增加到 451×10^{-6} 时,反应层同时存在 $\text{LaAl}_{11}\text{O}_{18}$ 与 LaAlO_3 ;继续增加 $w[\text{La}]$ 到 784×10^{-6} ,反应层转化为单一的 LaAlO_3 。这与表 2 中点扫检测的反应层物质的 La、Al 原子比相吻合。

图 5 是不同 La 含量的 CMSX-4 合金与型壳反应后合金底部纵截面的微观形貌,由图 5 可知,未添加稀土元素 La 的 CMSX-4 合金界面反应层较为均匀,如图 5(a)所示;而含 La 的 CMSX-4 单晶合金的反应层呈波动状,局部区域出现断裂现象,如图 5(c)(d)所示,且反应层厚度变厚。

进一步对反应层截面进行 EDS 分析,点扫结果

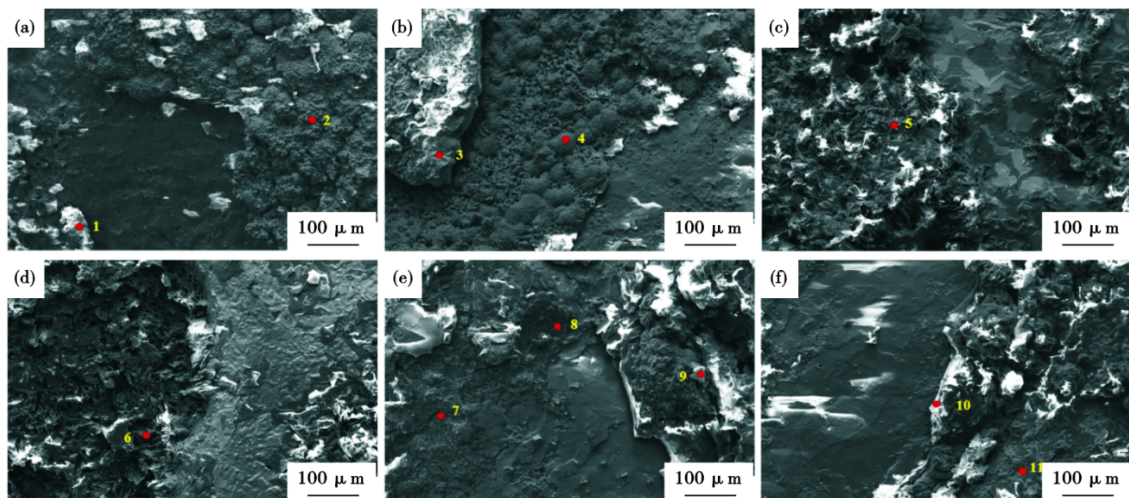


图 3 不同 La 含量 CMSX-4 单晶合金底部微观形貌:(a) 0 La, (b) 90×10^{-6} La, (c) 143×10^{-6} La, (d) 276×10^{-6} La, (e) 451×10^{-6} La, (f) 784×10^{-6} La

Fig. 3 Micromorphology of the bottom of CMSX-4 single crystal alloy with different La contents: (a) 0 La, (b) 90×10^{-6} La, (c) 143×10^{-6} La, (d) 276×10^{-6} La, (e) 451×10^{-6} La, (f) 784×10^{-6} La

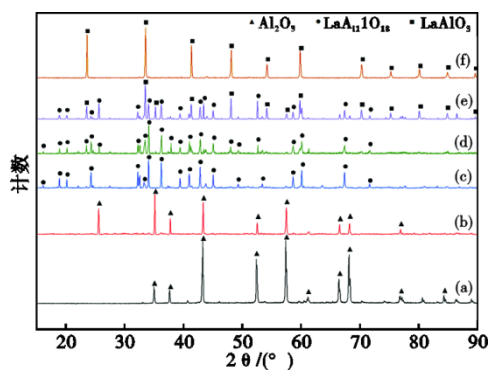


图 4 不同 La 含量 CMSX-4 单晶合金反应层 XRD 图谱:(a) 0 La, (b) 90×10^{-6} La, (c) 143×10^{-6} La, (d) 276×10^{-6} La, (e) 451×10^{-6} La, (f) 784×10^{-6} La

Fig. 4 XRD patterns of the reaction layers of CMSX-4 single crystal alloy with different La contents : (a) 0 La, (b) 90×10^{-6} La, (c) 143×10^{-6} La, (d) 276×10^{-6} La, (e) 451×10^{-6} La, (f) 784×10^{-6} La

见表 3,面扫如图 6 所示,结果表明, $w[\text{La}]$ 为 0、 90×10^{-6} 的 CMSX-4 单晶合金反应产物主要由 Al、O 组成;当合金中 $w[\text{La}]$ 超过 143×10^{-6} 后,界面反应层由 La、Al、O 组成。且当合金中 $w[\text{La}]$ 为 451×10^{-6} 时,内层反应产物(点 6)La:Al=1:1,外层产物(点 5)La:Al=1:11。这与图 4 中界面反应产物的 XRD 结果相吻合。

3 分析与讨论

3.1 润湿行为分析

在本研究中,当 CMSX-4 单晶合金中 $w[\text{La}]$ 为 90×10^{-6} 时,XRD 结果证明合金/型壳界面处未形成

表 3 图 5 中不同反应区域的 EDS 分析(原子比)
Table 3 EDS analysis of different reaction regions in Figure 5

图 5 中分析点	Al	O	La	Ni	Si
1	34.17	60.21	-	5.62	-
2	29.86	61.55	-	4.87	3.72
3	36.91	58.36	4.73	-	-
4	31.28	63.04	3.21	2.47	-
5	37.94	57.97	4.09	-	-
6	24.52	54.85	20.63	-	-
7	21.63	56.33	19.73	2.31	-

含 La 化合物,如图 4(b)所示,EDS 面扫显示 La 少量分布在界面处,如图 6(b)所示,润湿角略有下降,如图 2 所示。

在合金/陶瓷润湿过程中,当固液界面处富集某些活性元素时,固液界面能降低,体系润湿性提高^[12]。Saiz 等^[13]的研究表明,Cu-1.4at.% Nb 合金熔体与 Al_2O_3 陶瓷基板间并未发生反应,体系润湿角的减小是由于 Nb 在固液界面处的吸附富集导致。分析可知,当合金中 $w[\text{La}]$ 为 90×10^{-6} 时,固液界面处吸附富集的稀土 La 导致合金熔体的表面张力降低,体系的润湿角减小。

当 $w[\text{La}]$ 增至 143×10^{-6} 时,XRD 结果证明,合金熔体/型壳界面处生成含 La 化合物,如图 4(c)所示,且 La 大量集中分布在反应层中,如图 6(c)所示,此时体系润湿角急剧下降到 117.3° ,如图 2 所示。这说明,当合金中 $w[\text{La}]$ 达到 143×10^{-6} 时,稀土 La 在合

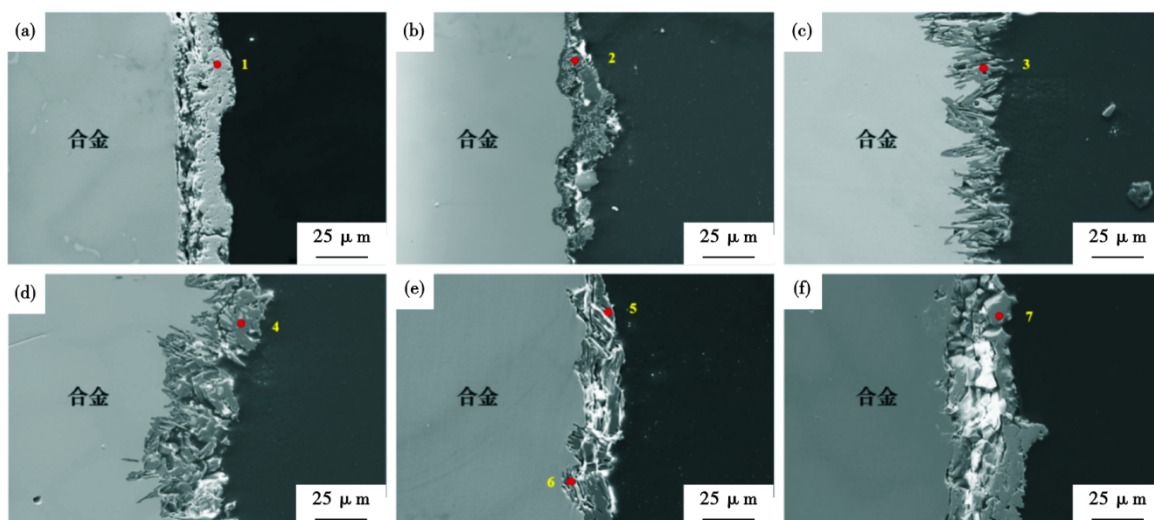


图 5 不同 La 含量 CMSX-4 单晶合金反应层截面微观形貌:(a) 0 La, (b) 90×10^{-6} La, (c) 143×10^{-6} La, (d) 276×10^{-6} La, (e) 451×10^{-6} La, (f) 784×10^{-6} La

Fig. 5 Microscopic morphology of the reactive layers of CMSX-4 single crystal alloy with different La contents : (a) 0 La, (b) 90×10^{-6} La, (c) 143×10^{-6} La, (d) 276×10^{-6} La, (e) 451×10^{-6} La, (f) 784×10^{-6} La

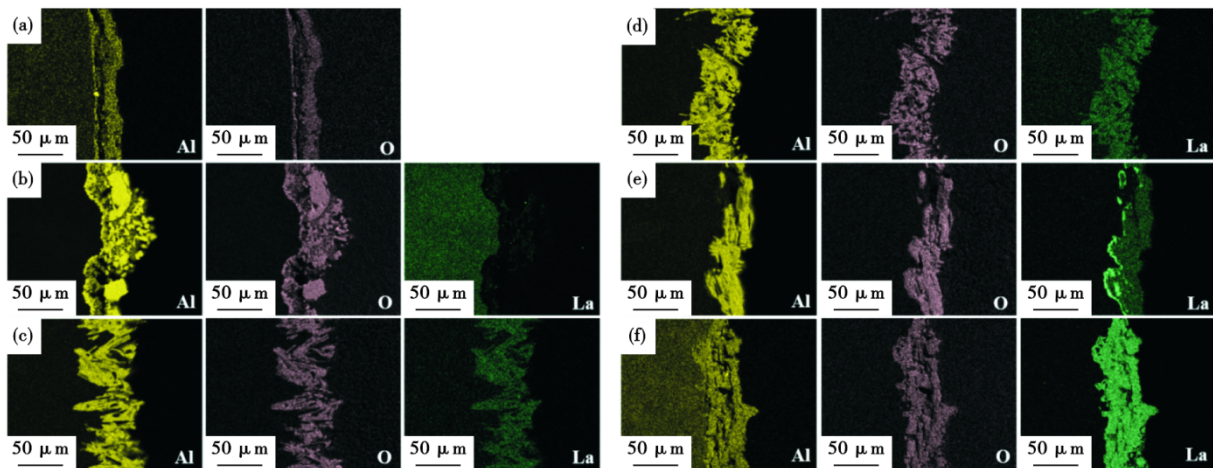


图 6 不同 La 含量 CMSX-4 单晶合金反应层截面元素分布: (a) 0 La, (b) 90×10^{-6} La, (c) 143×10^{-6} La, (d) 276×10^{-6} La, (e) 451×10^{-6} La, (f) 784×10^{-6} La

Fig. 6 Cross-sectional element distribution of CMSX-4 single crystal alloy with different La contents : (a) 0 La, (b) 90×10^{-6} La, (c) 143×10^{-6} La, (d) 276×10^{-6} La, (e) 451×10^{-6} La, (f) 784×10^{-6} La

金熔体/型壳界面处的富集达到饱和状态,此时合金熔体中的 La 与型壳的界面反应导致了体系润湿角的减小。

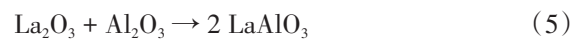
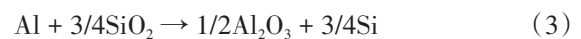
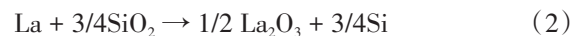
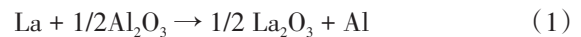
在反应润湿体系中,当合金熔体与陶瓷材料发生反应并形成连续反应层时,界面反应产物对熔体/基板界面成分的改变以及反应导致体系自由能的下降都会影响最终的润湿角。如果反应产物与熔融合金物性相近时,体系最终的润湿角由反应产物降低熔体表面张力决定;但当反应产物是比陶瓷氧化物更稳定的化合物时,反应引发的体系自由能降低是决定润湿性的主要因素。在本实验中,合金熔体/陶瓷型壳的界面反应产物是比陶瓷材料更稳定的铝酸镧化合物^[14],陶瓷表面组成变化很小,界面反应是影响润湿性的主要因素。根据反应驱动润湿理论^[15],合金在陶瓷基板上的润湿驱动力为反应引发的体系吉布斯自由能降低。因此,当合金中 $w[\text{La}] > 143 \times 10^{-6}$ 时,La 与型壳发生界面反应,体系吉布斯自由能降低,润湿角减小。

综上所述,在本研究中,当 CMSX-4 单晶合金中 $w[\text{La}]$ 达到 143×10^{-6} 时,La 与型壳发生界面反应,合金/型壳体系由吸附驱动润湿转变为反应驱动润湿。 143×10^{-6} 为 CMSX-4 合金中 La 与型壳发生界面反应的临界浓度。

3.2 界面反应分析

本实验中,当 CMSX-4 合金中 $w[\text{La}]$ 为 90×10^{-6} 时,界面反应产物为 Al_2O_3 ,并没有形成含 La 的化合物;然而当合金中 $w[\text{La}]$ 超过 143×10^{-6} 时,界面处形成了由 La、Al、O 组成的复合氧化物。界面处可能发

生的反应方程式如下:



根据热力学数据^[16-17],计算了上述反应(1)、(2)、(3)在 1550°C 下的 $\Delta_r G_m^\theta$,结果见表 4。

表 4 1550°C 时相关反应的标准吉布斯自由能
Table 4 Standard Gibbs free energy $\Delta_r G_m^\theta$ for correlation reactions at 1550°C

反应序号	反应方程式	$\Delta_r G_m^\theta / (\text{KJ} \cdot \text{mol}^{-1})$
1	$\text{La} + 1/2\text{Al}_2\text{O}_3 \rightarrow 1/2 \text{La}_2\text{O}_3 + \text{Al}$	-165.31
2	$\text{La} + 3/4\text{SiO}_2 \rightarrow 1/2 \text{La}_2\text{O}_3 + 3/4\text{Si}$	-398.45
3	$\text{Al} + 3/4\text{SiO}_2 \rightarrow 1/2\text{Al}_2\text{O}_3 + 3/4\text{Si}$	-210.93

由表 4 可知,在 1550°C 下,La 既能与 Al_2O_3 反应,又能与 SiO_2 反应。然而,当体系中同时存在 Al_2O_3 和 SiO_2 时,La 会优先与 SiO_2 反应,Al 再与 SiO_2 反应。

由于 $\text{LaAl}_{11}\text{O}_{18}$ 与 LaAlO_3 的热力学数据缺失,因此,反应(4)、(5)的 $\Delta_r G_m^\theta$ 难以计算,但反应的可行性已经得到验证^[14]。

本实验中,只有 CMSX-4 合金中 $w[\text{La}]$ 超过 143×10^{-6} 时,合金熔体/型壳界面处才会出现含 La 化合物,说明 La 能否与型壳发生界面反应取决于 CMSX-4 合金熔体中的 La 含量。反应能够发生的

热力学前提是反应的吉布斯自由能 $\Delta_r G_m(T)$ 为负值。 $\Delta_r G_m(T)$ 是关于温度和活度的函数,当合金中 La 含量增大时,La 的活度发生变化,从而改变 $\Delta_r G_m(T)$ 的数值。反应 $\text{La} + 3/4\text{SiO}_2 \rightarrow 1/2\text{La}_2\text{O}_3 + 3/4\text{Si}$ 的 $\Delta_r G_m(T)$ 如式(6)。

$$\Delta_r G_m = \Delta_r G_m^\theta + RT \ln a_{\text{Si}}^{3/4} / a_{\text{La}} \quad (6)$$

式中, $\Delta_r G_m$ 为实际反应条件下的吉布斯自由能, R 为理想气体常数, T 为实际反应温度, a_{Si} 为 Si 的活度, a_{La} 为合金熔体中 La 的活度, $\Delta_r G_m^\theta$ 为标准吉布斯自由能。由于高温合金含有多种元素,各元素之间的相互作用使得准确计算合金熔体中的元素活度极其困难^[18],因此,无法确定上述反应 $\Delta_r G_m(T)$ 的具体数值。然而,根据公式(6)可以看出,合金熔体中 La 含量增加, a_{La} 上升,导致 $\Delta_r G_m(T)$ 减小,进而满足 $\Delta_r G_m(T)$ 为负的热力学条件。

研究表明,在 1450 °C 左右熔融石英就开始有液态流动出现,陶瓷面层部分 SiO_2 与合金熔体发生反应^[19-20]。结合实验和检测结果可以推测高温合金与陶瓷型壳在界面处的相互作用过程:在 1550 °C 条件下,当 CMSX-4 合金中 $w[\text{La}]$ 超过 143×10^{-6} 时,合金熔体中的 La、Al 原子在界面处吸附富集,与型壳中的 SiO_2 发生反应,形成 La_2O_3 和 Al_2O_3 ;随后 La_2O_3 会继续与 Al_2O_3 反应。由于合金中 La 含量不同,两者反应生成不同 La、Al 比的铝酸镧化合物。

界面反应层形成过程及界面反应层变化如图

7 所示。陶瓷型壳中 SiO_2 含量有限,随着 CMSX-4 合金中 La 含量的不断提高,生成的 La_2O_3 含量上升, Al_2O_3 则逐渐减少。当合金中 $w[\text{La}]$ 为 143×10^{-6} 时,La 与 SiO_2 的反应较弱,生成的 La_2O_3 含量较少,如图 7(a3)所示,界面处会形成反应产物 $\text{LaAl}_{11}\text{O}_{18}$,如图 7(a4)所示;当 $w[\text{La}]$ 升高 451×10^{-6} 时,La 的活度增加,生成的 La_2O_3 含量升高, Al_2O_3 含量相对下降,如图 7(b3)所示,在界面反应初期,合金内层处会形成 LaAlO_3 ,随着反应过程中 La_2O_3 和 Al_2O_3 的消耗,合金外层生成 $\text{LaAl}_{11}\text{O}_{18}$,如图 7(b4)所示;而当合金中 $w[\text{La}]$ 为 784×10^{-6} 时,La 的活度会进一步增加,界面处生成单一的 LaAlO_3 ,如图 7(c4)所示。

4 结论

(1) 当 CMSX-4 合金中 $w[\text{La}]$ 为 90×10^{-6} 时,合金熔体与型壳之间的润湿角略有下降,合金中仅有 Al 与型壳中的 SiO_2 发生反应,形成的反应产物为 Al_2O_3 。

(2) 当 CMSX-4 合金中 $w[\text{La}]$ 达到 143×10^{-6} 时,合金熔体与型壳的润湿角迅速下降至 117.3° ,合金中 La 和 Al 都与型壳中的 SiO_2 发生反应,面处析出铝酸镧化合物。随后继续增加 La 含量,润湿角变化不大。

(3) CMSX-4 合金中 $w[\text{La}]$ 为 90×10^{-6} 时,合金/型壳体系为吸附驱动润湿; $w[\text{La}]$ 高于 143×10^{-6} ,体系为反应驱动润湿。 143×10^{-6} 为 CMSX-4 中 La 与型壳发生界面反应的临界浓度。

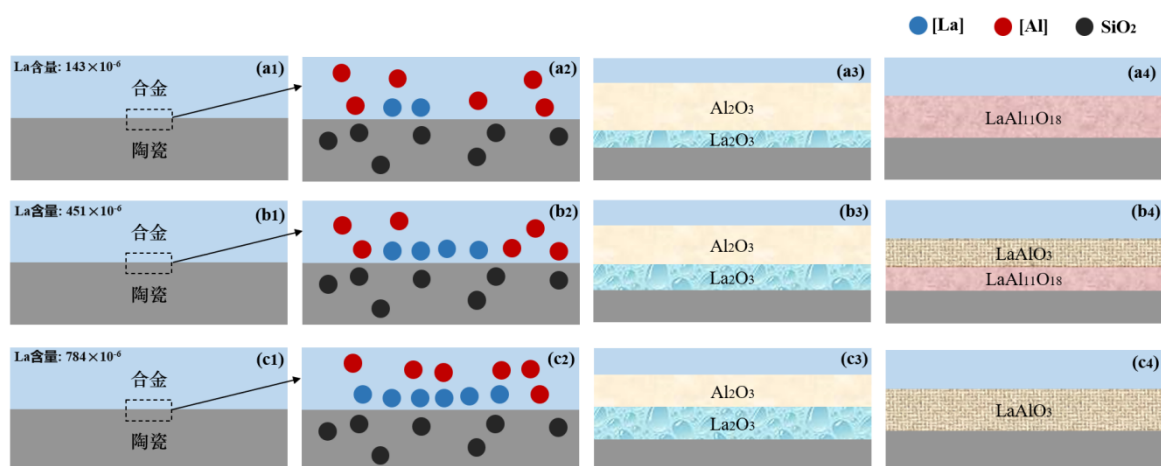


图7 不同 La 含量 CMSX-4 单晶合金界面反应层形成过程示意图: (a1)~(a4) 143×10^{-6} La; (b1)~(b4) 451×10^{-6} La; (c1)~(c4) 784×10^{-6} La

Fig. 7 Schematic diagram of the formation process of interfacial reactive layer and the change of reactive layer: (a1)~(a4) 143×10^{-6} La; (b1)~(b4) 451×10^{-6} La; (c1)~(c4) 784×10^{-6} La

参考文献

- [1] Xia W S, Zhao X B, Yue L, et al. A review of composition evolution in Ni-based single crystal superalloys[J]. *Journal of Materials Science & Technology*, 2020, 44: 76-95.
- [2] Weng F, Yu H J, Chen C Z, et al. High-temperature oxidation behavior of Ni-based superalloys with Nb and Y and the interface characteristics of oxidation scales[J]. *Surface and Interface Analysis*, 2015, 47(3): 362-370.
- [3] 杨浩, 王方军, 李采, 等. 镍基高温合金的熔炼工艺研究进展[J]. *特殊钢*, 2023, 44(3): 1-9.
- [4] Cao S T, Yang Y Q, Chen B, et al. Influence of yttrium on purification and carbide precipitation of superalloy K4169[J]. *Journal of Materials Science & Technology*, 2021, 86: 260-270.
- [5] 吴翔宇, 董丙成, 王梓菲, 等. La-Ce 对 GCr15 轴承钢中夹杂物的改质效果及机理[J]. *特殊钢*, 2024, 45(2): 39-45.
- [6] Pang H T, Edmonds I M, Jones C N, et al. Effects of Y and La additions on the processing and properties of a second generation single crystal Nickel-base superalloy CMSX-4 [J]. *Superalloys*, 2012, 2012: 301-310.
- [7] 姚建省, 唐定中, 李鑫, 等. Al_2O_3 型壳与 DZ22 合金的界面反应研究[J]. *特种铸造及有色合金*, 2014, 34(6): 630-633.
- [8] Orlov M R. Pore formation in single-crystal turbine rotor blades during directional solidification [J]. *Russian Metallurgy (Metally)*, 2008, 2008(1): 56-60.
- [9] Leyland S P, Edmonds I M, Irwin S, et al. The distribution and retention of yttrium and lanthanum in cast single crystal superalloys [C]//*Superalloys 2016: Proceedings of the 13 th International Symposium of Superalloys*. Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons, Inc., 2016: 247-256.
- [10] Lin K F, Lin C C. Interfacial reactions between Ti-6Al-4V alloy and zirconia mold during casting [J]. *Journal of Materials Science*, 1999, 34(23): 5899-5906.
- [11] Wang H, Shang G, Liao J, et al. Experimental investigations and thermodynamic calculations of the interface reactions between ceramic moulds and Ni-based single-crystal superalloys: Role of solubility of Y in the $LaAlO_3$ phase [J]. *Ceramics International*, 2018, 44(7): 7667-7673.
- [12] 訾赟. Re 和 Y 元素对高温合金熔体与陶瓷材料界面反应的影响[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2020.
- [13] Saiz E, Cannon R, Tomsia A. Reactive spreading: Adsorption, ridging and compound formation [J]. *Acta Materialia*, 2000, 48 (18-19): 4449-4462.
- [14] Ropp R C, Carroll B. Solid-state kinetics of $LaAl_{11}O_{18}$ [J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 1980, 63(7-8): 416-419.
- [15] Aksay Ilhan A, Hoge Carl E, Pask Joseph A. Wetting under chemical equilibrium and nonequilibrium conditions [J]. *The Journal of Physical Chemistry*, 1974, 78(12): 1178-1183.
- [16] 王淑兰. 物理化学[M]. 4版. 北京: 冶金工业出版社, 2013.
- [17] 梁英教, 车荫昌. 无机物热力学数据手册[M]. 沈阳: 东北大学出版社, 1993.
- [18] Duan Gchaoduan, Shi Xiao, Yang Wensheng, et al. Determination of thermodynamic properties in full composition range of Ti-Al binary melts based on atom and molecule coexistence theory [J]. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 2018, 28(6): 1256-1264.
- [19] 王零森. 特种陶瓷[M]. 2版. 长沙: 中南大学出版社, 2005.
- [20] 薛明. 定向凝固过程中陶瓷与高温合金界面研究[D]. 北京: 清华大学, 2007.