

# Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BN 纤维独石陶瓷阻力曲线的研究

## R-curve Behavior for Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BN Fibrous Monolithic Ceramic

李淑琴, 黄 勇, 汪长安, 邢增平, 关振铎

(清华大学材料科学与工程系, 新型陶瓷与精细工艺国家重点实验室, 北京 100084)

LI Shu-qin, HUANG Yong, WANG Chang-an, XING Zeng-ping, GUAN Zhen-duo

(Department of Materials Science and Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

**摘要:** 通过压痕小裂纹直接测量法获得 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BN 纤维独石陶瓷的阻力曲线, 采用指数经验公式拟合了实验数据, 对纤维独石陶瓷阻力曲线具有的独特的阶梯状进行分析, 并对纤维独石陶瓷具有高韧性的机理作了研究。

**关键词:** 阻力曲线; 纤维独石陶瓷; 弱胞界面层; 裂纹偏转

**中图分类号:** TQ174.1 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-4381 (2001) 01-0007-03

**Abstract:** R-curves for Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BN fibrous monolithic ceramic were established by direct measurement of the change of Vickers indentation cracks in length under progressively applied bending stresses. The fracture behavior of the Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BN fibrous monolithic ceramic was studied. An empirical exponential relation was fitted for the data. The unique steplike shape which was possessed of the R-curve of fibrous monolithic ceramic was discussed. Moreover, the mechanism of high fracture toughness of fibrous monolithic ceramic was further explained.

**Key words:** R-curve behavior; fibrous monolithic ceramic; soft cell boundary; crack deflection

氮化硅是高性能高温结构陶瓷, 但其脆性限制了它的应用。近年来, 人们采用层状结构和纤维独石结构来改善陶瓷材料的力学性能, 其增韧效果非常明显<sup>[1]</sup>。伴随对陶瓷增韧机制的深入研究, 人们发现, 仅以  $K_{IC}$  值来评价材料韧性是不全面的<sup>[2]</sup>, 通过材料阻力曲线行为的研究, 不仅可以更为确切的表达材料的韧性, 而且还可以提高陶瓷材料在工程结构部件上应用的可靠性, 以及为新型陶瓷材料的开发和研制提供一定的指导作用。研究陶瓷材料的阻力曲线行为有各种实验方法, 并取得了一定的成果, 但压痕小裂纹的引入, 一般认为更能切合实际, 因而小裂纹测阻力曲线有比较广的适用性。本工作是用 Vickers 压痕弯曲梁逐级加载法测量并研究以 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BN 纤维独石结构陶瓷阻力曲线, 探讨了纤维独石陶瓷裂纹产生、扩展直至发生失稳断裂的过程, 从而深入了解纤维独石陶瓷的断裂行为。

## 1 实验方法

### 1.1 实验过程

将 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 粉料 (北京方大高技术陶瓷有限公司生产) 与 8wt% Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 1.5wt% MgO, 2.5wt% Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 均匀混合, 在混合陶瓷粉料中加入 8wt% ~ 9wt% 的粘合剂 PVA 的水溶液, 及适量的增塑剂, 挤制得到纤维

前驱体, 然后涂层, 之后, 对纤维前驱体进行排布 (其结构如图 1), 形成纤维的骨架后, 排胶, 再进行热压烧结。具体过程见参考文献 [3]。

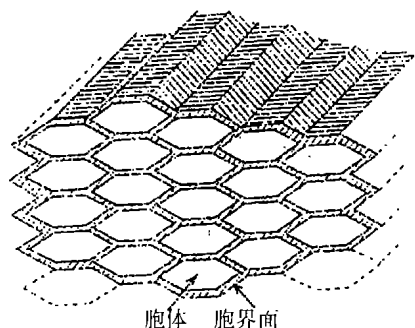


图 1 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BN 纤维独石陶瓷结构示意图

Fig. 1 The structure illustration of the Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BN fibrous monolithic ceramic

热压后的材料加工成 3mm × 4mm × 36mm 的四点弯曲试件 (拉伸面垂直于热压方向), 磨平抛光至 W0.5<sup>#</sup>。之后, 在管式炉中, 1000℃, 保温 30min 进行退火, 消除机加工的残余应力。在试件受拉面中部打制 Vickers 压痕, 并使其处于四点弯曲的恒应力区内。压痕的径向裂纹方向垂直于弯曲时的拉伸应力方向。本实验采用的压痕压制载荷为 20kg, 保荷时间为

20s。在岛津 AG-2000A 型万能材料实验机上进行四点弯曲加载实验, 内外跨距分别为 10mm 和 30mm。实验之前, 量测压痕裂纹的初始长度, 然后采用 0.05mm/m 的恒定加载速率对试件加载, 至某一规定的荷载水平后恒载, 恒载时间为 30s, 卸载后量测试件表面压痕的裂纹尺寸。如此逐级增大载荷进行加卸载试验, 分别量测压痕开裂增量, 直至试件断裂。此外, 通过 SEM, 对裂纹扩展情况进行观察。

## 1.2 裂纹扩展阻力计算

据压痕断裂力学, Vickers 压痕裂纹尖端的应力场强度因子  $K_I$ <sup>[4]</sup> 表示为:

$$K_I = K_a + K_r + K_s \quad (1)$$

式中  $K_a$ 、 $K_r$  和  $K_s$  表示外加载荷引起的机械应力、压痕残余应力及表面机加工残余应力对裂纹尖端应力场强度的贡献。选用合适的退火制度消除表面残余应力使得  $K_s = 0$ , 其中:

$$K_a = Y_a \sigma_a a^{1/2} \quad (2)$$

式中,  $\sigma_a$  为外加应力,  $Y_a$  为几何形状因子, 采用 Newman 和 Raju<sup>[5,6]</sup> 经验公式计算  $Y_a$ :

$$Y_a = M_e (\pi Q)^{1/2} \quad (3)$$

式中,  $M_e$  为边界校正系数, 可通过计算<sup>[4]</sup> 或查表求得。 $Q$  为裂纹形状因子,

$$Q = 1 + 1.464 (a/c)^{1.65} \quad (4)$$

式中,  $P_r$  为压痕压制荷载,  $c$  为裂纹半长,  $X$  是无量纲常数, 可以表示为:

$$X_r = \delta (E/H)^{1/2} \quad (5)$$

式中,  $E$  是弹性模量,  $H$  是材料的名义硬度,  $\delta$  是常数, 采用 0.018, 其中:

$$H = P_r / 2d^2 \quad (6)$$

式中,  $P_r$  为压痕压制荷载,  $d$  为压痕对角线半长。需提及的是, Vickers 压痕裂纹在扩展过程中, 将逐渐由半圆形向椭圆形过度, 即裂纹的椭圆度  $a/c$  随  $c$  的增大而减小。Li<sup>[7]</sup> 等人提出的经验公式:

$$a/c = 1.2 - 0.2 (c/c_0) \quad (7)$$

计算扩展后的 Vickers 压痕裂纹深度  $a$ 。

## 2 实验结果

图 2、图 3 所示为试件左侧半裂纹以及右侧半裂纹阻力曲线。其中点线为实际量测的结果。

由于纤维独石结构陶瓷裂纹扩展方式与普通陶瓷材料不同, 因而阻力曲线形状也比较特殊, 呈规律性的波状起伏。由于  $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{BN}$  纤维独石陶瓷结构的不均匀性, 使得压痕裂纹两端的裂纹的扩展量不同, 因而本实验分开计算裂纹的扩展阻力, 得到不同的 R-

阻力曲线。但从图中可看出试件左右裂纹虽初始长度不同但所得曲线的趋势非常相近, 而且每一条曲线都表现出明显的上升趋势, 这证明在纤维独石陶瓷材料中存在着明显的阻力曲线行为。

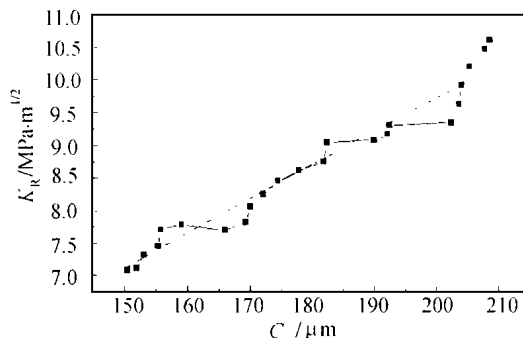


图 2 试样左侧半裂纹的阻力曲线

Fig. 2 R-Curves of left crack

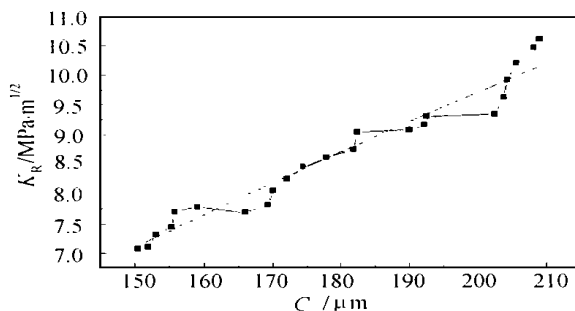


图 3 试样右侧半裂纹的阻力曲线

Fig. 3 R-Curves of right crack

## 3 分析与讨论

采用由 Shetty 和 Ramachandran<sup>[8]</sup> 提出的拟合公式, 对数据进行拟合:

$$K_R = K - (K - K_0) \exp\left(-\frac{c - c_0}{\lambda}\right) \quad (8)$$

式中,  $K$ 、 $K_0$  和  $\lambda$  是与材料有关的参数,  $c_0$  为压痕裂纹初始半长。

拟合参数  $K$  对应于裂纹扩展阻力曲线的水平渐近线, 其物理意义为裂纹长度  $c$  趋于无穷大时的扩展阻力, 为一常数。 $K_0$  代表了材料裂纹扩展的门槛值 ( $= K_{th}$ ), 亦为常数, 代表材料的断裂韧性。对表 1 中的数据进行计算得到:  $K$  平均值为  $11.78 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ ,  $K_0$  平均值为  $7.27 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ , 数据偏差较小, 表明了材料的稳定性较好, 而且亦表明了拟合曲线的可行性。从数据中还可以看出,  $K$  的值较大, 说明材料具有高的强韧性。

$\lambda$  是一个与裂纹尺寸相关的参数, 被称为裂纹归

一化尺寸，它与材料内部的显微结构有关。从表中发现，对于同一种材料λ值具有较大的随机性。这是由于材料显微结构的随机性排布造成的，这种显微结构的非均匀性正是该种复相纤维独石结构材料的特点。

表 1 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BN 纤维独石材料 R-阻力曲线的拟合参数

Table 1 The parameters fitted by R-curves of Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BN fibrous monolithic ceramic

裂纹	初始裂纹长度 <i>c</i> <sub>0</sub> /μm	拟合参数		
		<i>K</i> / (MPa · m <sup>1/2</sup> )	<i>K</i> <sub>0</sub> / (MPa · m <sup>1/2</sup> )	λ/ μm
左侧	147. 5	11. 59	7. 41	92. 25
右侧	150. 5	11. 96	7. 13	98. 16

4 纤维独石陶瓷阻力曲线在显微尺度开裂行为上的讨论

4. 1 实验现象分析

纤维独石陶瓷中的裂纹主要由两个部分组成，即沿垂直于原位纤维前驱体轴向的横贯性裂纹和在弱胞界面层中沿平行于原位纤维前驱体方向的偏转裂纹。由于弱胞界面 BN 之间的结合力相当小，剪切应力一旦大于 BN 胞界面的抗剪强度 τ，BN 胞界面就发生开裂，裂纹发生偏转，由横贯性裂纹转变成水平裂纹。裂纹沿水平方向扩展后，裂纹的扩展从稳态扩展过程过渡为失稳扩展过程。水平裂纹在扩展过程中受到阻碍时，裂纹又将偏折至竖直方向，如此重复，使得裂纹成阶梯状扩展，直至试样断裂。图 4 给出纤维独石陶瓷材料裂纹偏转的显微照片。



图 4 纤维独石陶瓷材料裂纹偏转的显微照片  
Fig. 4 SEM micrograph of crack deflection in fibrous monolithic ceramic

4. 2 影响阻力曲线的原因分析

从纤维独石陶瓷阻力曲线图上可以看出，有时裂纹缓慢扩展，扩展阻力 *K<sub>R</sub>* 增长很快；而有时裂纹相对加速扩展，而 *K<sub>R</sub>* 增长不多。表现在曲线形状上，纤维

独石陶瓷阻力曲线在向上增长的同时显现出多处类似阶梯的形状，其阻力曲线具有特殊性。分析认为可能由以下原因造成：纤维独石陶瓷材料由于自身纤维独石结构的存在使得其裂纹扩展不象独石结构材料那样，裂纹呈半饼状沿两个方向 *a* 和 *c* 延伸扩展，而是当裂纹扩展到弱的胞界面时，裂纹在弱胞界面更易扩展，促使裂纹发生偏折，裂纹的偏折使得裂纹扩展过程中，吸收较多的能量，材料的断裂韧性和断裂功有较大幅度的提高，从纤维独石陶瓷阻力曲线图表现为扩展阻力 *K<sub>R</sub>* 增长很快；而当裂纹被弱胞界面所捕获后，载荷继续增加时，材料从弱“胞界面”偏折到强的“胞晶”，出现裂纹相对加速扩展，而 *K<sub>R</sub>* 增长不是很多的现象。正是由于材料的特殊结构，使得材料的 R-阻力曲线具有特殊形状。

5 结论

(1) 采用非线性拟合的方法，对阻力曲线应用  $K_R = K - (K - K_0) \exp(-\frac{c - c_0}{\lambda})$  进行拟合处理，拟合出的参数 *K* 和 *K<sub>0</sub>* 无显著差别，同时给出各个参数的物理意义。

(2) 对比 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BN 纤维独石材料与 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 独石的断裂韧性，发现纤维独石结构有明显增韧效果。

(3) 由于裂纹在弱胞界面上的偏转，试样表现出上升阻力曲线行为，阻力曲线出现阶梯状区域。

参考文献

[ 1 ] Huang Y, Hao H N, Chen Y L, et al. Acta Metall. Sinica, 1996, 9: 479  
[ 2 ] 席俊，关振铎，蔡琳. 硅酸盐学报, 1997, 25 (2): 163  
[ 3 ] Guo Hai, Huang Yong, Wang Changan. J Mater Sci 1999, 34: 2455  
[ 4 ] Marshall DB, Lawn BR, Chantikul P. J Mater Sci, 1979, 14: 225  
[ 5 ] Newman J C, Raju I S. Engi Fract Mech, 1981, 15: 185  
[ 6 ] Xi J, Guan Z D. in Proceedings of The First China International Conference on High-Performance Ceramics ( October, 1998, Beijing) Edited by Yan D S, Guan Z D. Tsinghua Univ. Press: 645  
[ 7 ] Li C W, Lee D J, Lui S C. R-Curve Behavior and Strength for In-Situ reinforced Silicon Nitrides with Different Microstructures [J] . J Am Ceram Soc, 1992, 75 (7): 1777

收稿日期：2000-07-06； 修订日期：2000-10-15  
作者简介：李淑琴（1971-），女，博士研究生，主要从事高韧性仿生结构复合材料的研究。联系地址：清华大学材料科学与工程系（100084）。  
本文编辑：解 宏