

原位合成 Al_2O_3 颗粒增强双相 TiAl 基复合材料的组织与性能

艾桃桃¹, 王 芬², 冯小明¹, 郭从盛¹

- (1. 陕西理工学院 材料科学与工程学院, 汉中 723003;
2. 陕西科技大学 材料科学与工程学院, 西安 710021)

摘要: 以 Ti-Al-TiO₂ 反应体系为基础, 添加不同含量的 Nb₂O₅ 粉, 采用压力协助原位合成 Al_2O_3 颗粒增强的双相 TiAl 基复合材料, 对复合材料的组织和力学性能进行了分析讨论, 并探讨了其增韧机制。结果表明: Nb₂O₅ 的掺杂使复合材料的相对密度和硬度得到提高, 抗弯强度和断裂韧性在 Nb₂O₅ 掺杂量为 6%(质量分数)时达到最大, 分别为 398.38 MPa 和 6.992 MPa·m^{1/2}。微观组织分析表明, 获得了双相组织, Al_2O_3 颗粒分布于基体晶界处; 随 Nb₂O₅ 的掺杂量增大, Al_2O_3 颗粒呈细小弥散分布, 同时基体晶粒尺寸也减小。双相基体晶粒的细化及 Al_2O_3 颗粒的弥散分布是赋予材料高韧性的主要增韧机制。

关键词: 双相 TiAl 合金; Al_2O_3 ; 原位反应; 组织结构; 力学性能; 增韧机制

中图分类号: TB 333; TG 113.25

文献标识码: A

Microstructure and mechanical properties of in situ Al_2O_3 particles reinforced two-phase TiAl-based composites

AI Tao-tao¹, WANG Fen², FENG Xiao-ming¹, GUO Cong-sheng¹

- (1. Department of Materials Science and Engineering, Shaanxi University of Technology, Hanzhong 723003, China;
2. School of Materials Science and Engineering, Shaanxi University of Science and Technology, Xi'an 710021, China)

Abstract: In situ Al_2O_3 particles reinforced two-phase TiAl-based composites were prepared by pressure-assisted high-temperature reaction sintering of Ti-Al-TiO₂-Nb₂O₅ system. The microstructure and mechanical properties of the composites were investigated. The toughening mechanism was also analysed. The results show that the relative density and Rockwell hardness of the composites increase with increasing Nb₂O₅ content. When the Nb₂O₅ content is 6% (mass fraction), there presents a better bending strength and fracture toughness, and the bending strength attains 398.38 MPa, moreover, the fracture toughness reaches 6.992 MPa·m^{1/2}. The analysis of the microstructures reveals that it obtains a submicron α_2/γ dual phase structure, and the Al_2O_3 particles distribute on the grain boundary. The in situ Al_2O_3 particles are dispersively distributed and the grains are refined with increasing Nb₂O₅ content. Two-phase TiAl grain refining and Al_2O_3 particles dispersive distribution are the main toughening mechanisms.

Key words: two-phase TiAl alloy; Al_2O_3 ; in situ reaction; microstructure; mechanical property; toughening mechanism

γ -TiAl 金属间化合物以其优异的高温强度和高温抗氧化性能以及低密度, 成为航空、航天领域颇具潜力的高温结构材料^[1-3]。但是由于其室温脆性, 制约了

其工业实际应用, 因此解决该类合金的室温脆性问题一直备受关注。众多实验研究表明, 含有少量 α_2 -Ti₃Al 相的具有层片状组织结构的双相 TiAl 合金在塑性和

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(50432010; 50672056)

收稿日期: 2007-09-04; 修订日期: 2007-09-28

通讯作者: 艾桃桃, 讲师; 电话: 15609165145; E-mail: aitaotao0116@126.com; aitaotao0116@163.com

韧性方面均要优于单相合金^[2, 4]。双相 TiAl 合金比单相 TiAl 合金韧性好是因为 γ -TiAl 畴和薄的 α_2 -Ti₃Al 盘状物结构组成的细小而均匀分布的层状结构有利于力学性能的提高。究其原因还是在于 γ -TiAl 和 α_2 -Ti₃Al 形成的异相界面的结构和键结合影响了其力学性能^[5-7]。为了扩大双相 TiAl 合金的应用范围以及提高它的强度, 根据增强相与基体的化学相容性与热物理匹配性, 选择以 Al₂O₃ 颗粒为增强相, 双相 TiAl 合金为基体, 合成一种金属基复合材料(MMCs), 使其强度和刚度以及抗磨性等性能都得到不同程度的提高, 这样不仅可用于航空航天工业和军事工业, 还可用于制造汽车的汽缸体、活塞、刹车摩擦件等。

按照增强体的加入方式可分为外加复合法和原位复合法。由于原位复合法省去了单独合成增强相及其加入工序, 工艺简单, 故其总的成本较低。与外加增强体制备的 MMCs 相比, 原位复合材料的增强体细小、界面干净、与基体结合强度高、呈弥散分布, 合成的原位复合材料具有高强度、高弹性模量、良好的抗疲劳性能、耐磨性能和高温抗蠕变性能^[8-11]。因此, 该方法成为近几年研究较多和发展最快的复合材料的制备方法^[12]。

根据已有的研究^[13-14], Ti-Al-TiO₂ 体系在没有任何添加剂的条件下, 合成产物中增强相存在明显的团聚, 而且基体相也粗大, 对改善材料的性能不利。前期关于 Ti-Al-TiO₂-Nb₂O₅ 体系的研究^[15-18], 结果发现 Al₂O₃ 增强相呈均匀弥散分布, 基体晶粒也随着 Al₂O₃ 含量的增大而逐渐细化。为此, 本文作者拟在 Ti-Al-TiO₂ 反应烧结粉末体系中添加一定量的 Nb₂O₅ 活性剂以期改善增强颗粒与基体间的润湿性, 促进界面反应的进行, 细化基体晶粒, 从而也提高了增强颗粒与基体间的结合力, 获得综合性能较佳的原位复合材料, 并且研究了复合材料的显微结构和力学性能。

1 实验

实验以 Ti 粉(纯度 99.3%, 平均粒径小于 40 μm)、Al 粉(纯度 99.5%, 平均粒径小于 55 μm)、TiO₂ 粉(纯度 99%, 平均粒径为 0.5 μm)和 Nb₂O₅ 粉(纯度 99.5%, 平均粒径小于 20 μm)为原料, 以 57.46Ti-36.78Al-5.76TiO₂ 为基础配方, 分别外加 2%、6%、10%和 22%(质量分数)的 Nb₂O₅ 粉。以乙醇为保护介质用行星式球磨机进行湿混, 球料质量比为 3:1, 磨机转速为 800 r/min, 球磨时间为 2 h。球磨后的粉料经干燥、造粒, 装入内直径为 35 mm 的石墨模型内, 后在低真空

条件下以压力协助升温至 1 200 $^{\circ}\text{C}$, 并在此最高温度调节压力至 35 MPa, 保温 60 min 后随炉冷却即可。

用日本理学 D/max 2000PC 型 X 射线衍射仪分析产物的相组成。用 JSM-6700F 扫描电镜观察断面形貌。烧成后的试样经磨抛后, 以 5%HF+10%HNO₃+85%H₂O(体积分数)的混合液进行腐蚀、超声波清洗和干燥处理后, 用 NEORHOT-21 型光学显微镜观察显微组织形态。

试样表面经粗磨、细磨、抛光后, 用洛氏硬度计测其硬度, 每个硬度值为 5 点平均值。用 PT-1036PC 万能实验机进行试样的抗弯强度测试, 试样尺寸为 25 mm \times 4 mm \times 3 mm, 测试跨距为 20 mm, 加载速度为 5 mm/min。采用单边缺口试样法测量材料的断裂韧性, 三点弯曲标准试样的尺寸为 $b\times w\times L=3\text{ mm}\times 6\text{ mm}\times 30\text{ mm}$ 。首先将打磨、抛光后的试样利用 DK7725A-5 型电火花数控线切割机切一深度 $a=0.45w(\text{mm})$ 、宽度为 0.12 mm 的切口, 测试的跨距 $S=24\text{ mm}$, 压头移动速度为 0.06 mm/min。断裂时的最大载荷用 p 表示, 其计算公式为

$$K_{\text{IC}} = \frac{3pS\sqrt{a}}{2bw^2} \left[1.93 - 3.07 \frac{a}{w} + 14.53 \left(\frac{a}{w} \right)^2 - 25.07 \left(\frac{a}{w} \right)^3 + 25.80 \left(\frac{a}{w} \right)^4 \right] \quad (1)$$

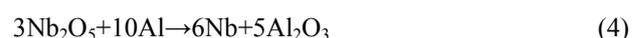
2 结果与讨论

2.1 热力学分析与相成分确定

根据对 Ti-Al-TiO₂-Nb₂O₅ 体系的前期研究结果表明^[16, 18], 整个体系的反应归纳为两个部分:



由于 NbAl₃ 的热力学数据无法获得, 在讨论 Al-Nb₂O₅ 之间的热焓变化时以下列反应为主:



关于增强相的选择, 通常先通过热力学计算判断增强相是否能够通过加入物质在基体内自动生成时, 判断的标准是反应的 Gibbs 自由能的变化是否小于零。另外一个需要考虑的条件是反应焓, 因为反应焓代表反应的热效应。在制备过程中能否节省外部热能是一个值得考虑的重要的方面。Ti-Al-TiO₂ 系的热焓变小于零, 是一个放热体系^[19], 在此只讨论其 Gibbs

自由能的变化。

采用物质 Gibbs 自由能函数法计算各温度反应时的 Gibbs 自由能变化值, 根据基尔霍夫方程计算理想状态时各温度反应的热效应。

图 1 所示为反应(2)的自由能随温度的变化。可见, 在实验烧结温度范围内, 反应(2)的标准 Gibbs 自由能变化值(ΔG)一直远小于零, 说明反应(2)是可以自动进行的。图 2 所示为反应(4)的生成焓随温度的变化。反应(4)是一个强放热反应, 释放的热量大大加快了反应的进程, 节省了外部热能。根据文献[16]关于 Nb₂O₅ 和 Al 反应的热力学分析, Nb₂O₅ 在液态铝中具有较高的化学活性, 可以通过反应(3)和(4)在基体相界面生成 Al₂O₃ 相。

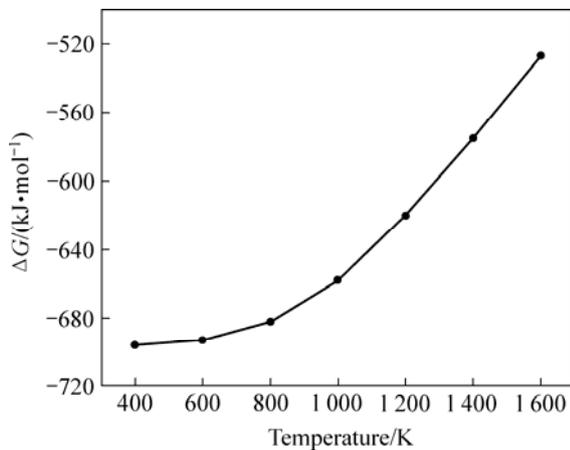


图 1 反应(2)的吉布斯自由能随温度的变化
Fig.1 Change of Gibbs free energy (ΔG) as function of temperature for Reaction(2)

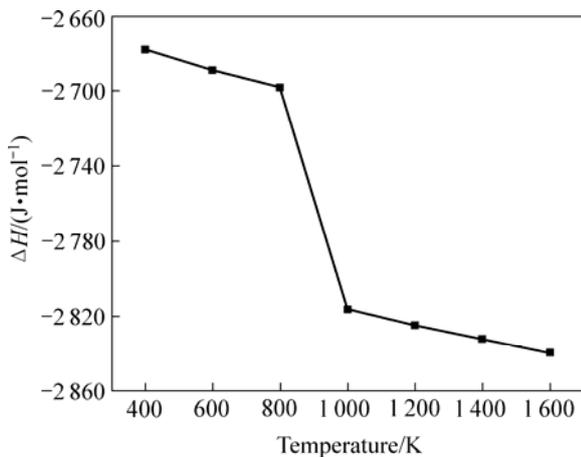


图 2 反应(4)的生成焓随温度的变化
Fig.2 Change of reaction formation enthalpy (ΔH) as function of temperature for Reaction(4)

2.2 Al₂O₃ 体积分数对微观组织的影响

图 3 所示为不同 Al₂O₃ 体积分数(不同 Nb₂O₅ 掺杂

量)的烧结产物的显微组织。图 4 所示为产物的 XRD 谱(产物主要由 γ -TiAl、 α_2 -Ti₃Al、Al₂O₃ 和少量的 NbAl₃ 相组成)。由图可见, 亮色的为基体相, 由 γ + α_2 构成双相片层状组织; 黑色的为经腐蚀后的增强相 Al₂O₃ 粒子。由图 3 可见, 基体晶界处 Al₂O₃ 颗粒尺寸比晶内的大, 随着 Al₂O₃ 体积分数的增加, 双相基体尺寸

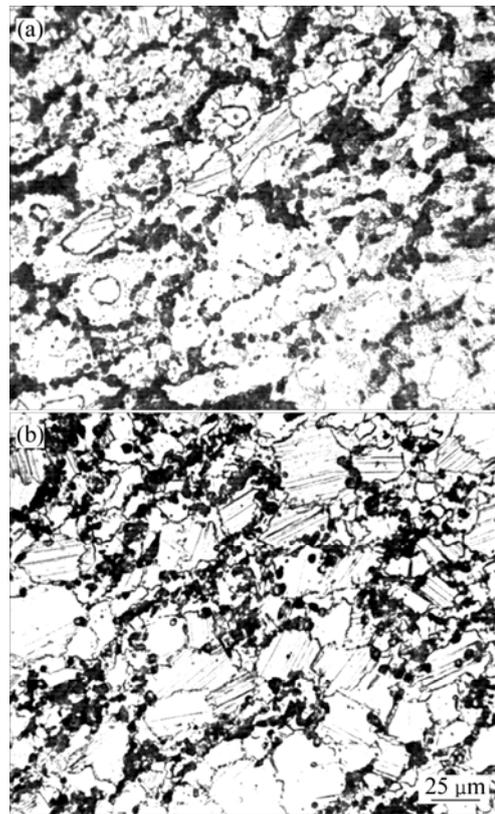


图 3 Nb₂O₅ 掺杂产物的显微组织
Fig.3 Microstructures of Nb₂O₅ doped products: (a) 2%; (b) 6%

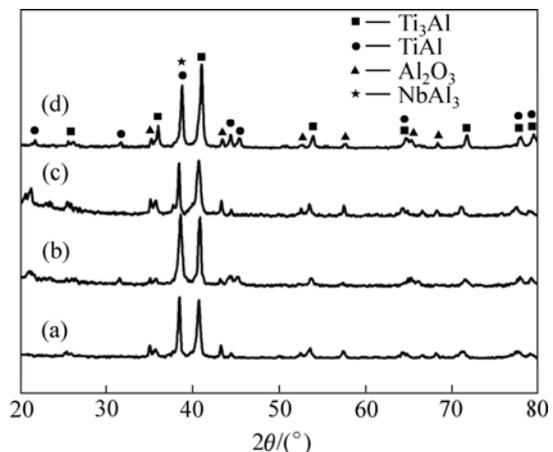


图 4 掺杂不同含量 Nb₂O₅ 合成产物的 XRD 谱
Fig.4 XRD patterns for in situ composites with different contents of Nb₂O₅: (a) 2%; (b) 6%; (c) 10%; (d) 22%

逐渐降低, 平均晶粒尺寸在 15 μm 左右。 Al_2O_3 粒子在晶界弥散分布, 部分呈枣糕式镶嵌在基体内, 而且分布于基体晶界处的 Al_2O_3 颗粒的数量也在增加, 增强相粒子的尺寸在 0.5~0.8 μm 之间。

分布在晶界上的第二相粒子具有细化晶粒的作用, 可由第二相颗粒对基体晶界移动产生阻力来进行说明^[20]。第二相颗粒对晶界移动产生的阻力(F)为

$$F = \frac{3}{2} \frac{\phi \gamma_b}{r} \quad (5)$$

式中 ϕ 为第二相所占的体积分数, γ_b 为比晶界能, r 为第二相粒子的半径。当 Al_2O_3 体积分数较小时, 即 Nb_2O_5 掺杂量低时, Al_2O_3 颗粒对双相基体晶界移动的约束力小, 基体晶粒按着自己的结晶习性生长发育; 随着第二相 Al_2O_3 颗粒体积分数的增加, Al_2O_3 颗粒对双相基体晶界移动的约束力显著增大, 大量的 Al_2O_3 颗粒均匀地分散在晶粒的周围, 对基体晶界移动的钉扎作用大大增强, 双相基体生长受阻。因此, Al_2O_3 颗粒起到了细化基体晶粒的作用。

图 5 所示为合成产物的平滑断口的低倍照片。由图可见, 随着 Al_2O_3 体积分数的增大, Al_2O_3 颗粒的分

散更趋均匀, 并连接成网状分布, 网络间包围的基体晶粒逐渐减小。此外, 由图 5(a) 可见, Al_2O_3 粒子与基体的润湿性差, 且偏聚于基体晶粒的界面, 但在图 5(c) 中其团聚程度明显改善。图 6 所示为合成产物的平滑断口的高倍照片。由图可见, 无论 Al_2O_3 体积含量是多少, 产物中都含有一定数量的气孔; 随其含量增大, 气孔明显减少。因为 Al_2O_3 颗粒含量的增加使第二相大量分散在基体晶粒的周围, 阻碍高温时基体晶界的移动, 使晶粒细化, 并且结构的均匀化程度提高, 气孔减少。同时, 随着 Nb_2O_5 掺杂量的增大, 其烧结活性和助烧结作用得到充分体现, 促进了烧结, 使得气孔数量大大减少, 孔径也减小。

2.3 力学性能

图 7 所示为掺杂不同含量 Nb_2O_5 所合成产物的相对密度与洛氏硬度。由图可见, 随 Nb_2O_5 掺杂量的增大, 合成产物的相对密度和洛氏硬度呈升高趋势, 二者的变化规律基本相同。相对密度的增大一方面与 Al_2O_3 颗粒含量的增大有关; 另一方面与结构的逐渐均匀化相关。随 Nb_2O_5 掺杂量的增大, Al_2O_3 呈弥散分布, 团聚现象减弱, 同时基体晶粒减小, 结构均匀化

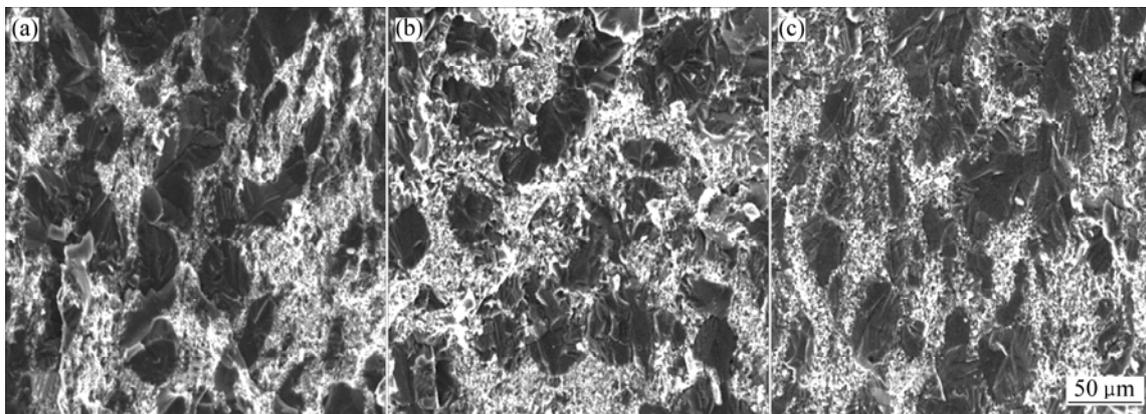


图 5 掺杂不同含量 Nb_2O_5 合成产物平滑断口的低倍显微组织

Fig.5 Low magnification SEM images of fracture surface of products with different contents of Nb_2O_5 : (a) 2%; (b) 6%; (c) 22%

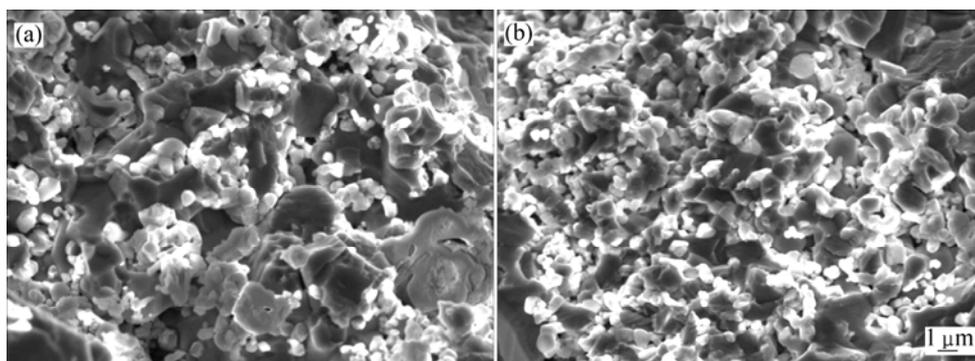


图 6 掺杂不同含量 Nb_2O_5 合成产物平滑断口的高倍显微组织

Fig.6 High magnification SEM images of fracture surface of products with different contents of Nb_2O_5 : (a) 2%; (b) 6%

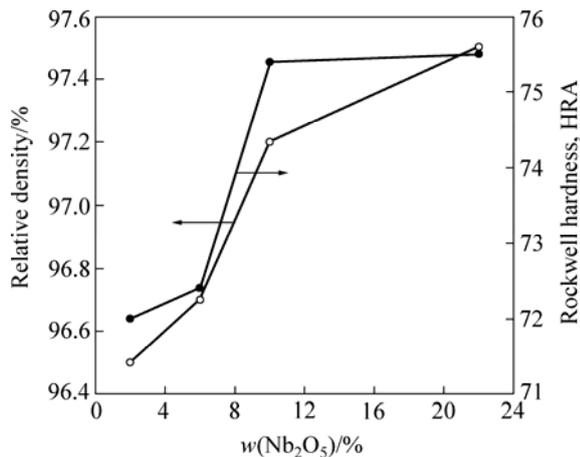


图 7 掺杂不同含量 Nb_2O_5 所合成产物的相对密度和洛氏硬度

Fig.7 Relative density and Rockwell hardness of products as function of Nb_2O_5 content

程度提高, 相对密度增大。硬度的增大与 Al_2O_3 颗粒含量的逐渐增大密切相关。当 Al_2O_3 含量较小时, 对各项性能的影响不大; 当 Al_2O_3 含量较大时, 晶粒细化、增强颗粒的弥散分布等原因使得产物的结构均匀, 气孔减少, 由此使得硬度提高。另外, Nb_2O_5 的引入, 在基体相和 Al_2O_3 增强相颗粒的界面生成高熔点的 NbAl_3 相, 填充了界面的很多空洞, 使得气孔率降低, 致密性提高, 且 NbAl_3 的硬度(室温时, HV 约为 7.5 GPa) 大于 TiAl 基体, 故合成产物的硬度也随之得到相应的改善。

由图 8 可见, 合成产物的抗弯强度和断裂韧性都在 Nb_2O_5 掺杂量为 6% 时, 达到最大, 分别为 398.38 MPa 和 $6.992 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 。当 Nb_2O_5 掺杂量超过 6% 后, 二者均呈降低趋势, 但与 Nb_2O_5 掺杂量为 2% 的复合材料相比, 其值明显要高得多。产物的强度随着 Al_2O_3 含量的增加而逐渐增大, 这与组织的细化以及组织中孔隙的减少有关。由图 3 和图 6 可见, 基体组织在不断细化, 孔隙的尺寸和数量在不断减小, 结构的均匀化程度在不断提高。因此, 产物的强度逐渐增大。抗弯强度和断裂韧性的变化规律与文献[18]的结论相似。在文献[18]中, 提高 Al_2O_3 增强相含量时, 牺牲了断裂韧性, 而抗弯强度要优于本实验的。

2.4 增韧机制讨论

根据上述对微观结构的分析表明, 本实验的增韧机制主要表现为细晶增韧。无论是裂纹的穿晶断裂还是沿晶断裂, 细晶材料总是比粗晶材料消耗更多的能量。一般而言, 细晶趋向于产生沿晶断裂, 而粗晶易

于产生穿晶断裂。沿晶断裂可以比穿晶断裂产生更弯曲的裂纹扩展路径, 消耗更多的能量, 因此, 材料的断裂韧性提高。在本实验中, 分布在晶界上的 Al_2O_3 颗粒对基体晶粒在热压过程中的生长有明显的阻碍作用, 复合材料的基体晶粒明显减小。室温断口的 SEM 照片观察表明(见图 9), 其断裂模式从穿晶断裂(掺杂 2% Nb_2O_5) 逐渐过渡为解理-沿晶混合断裂(掺杂 6% Nb_2O_5)。同时还观察到 Al_2O_3 颗粒的拔出, 以及颗

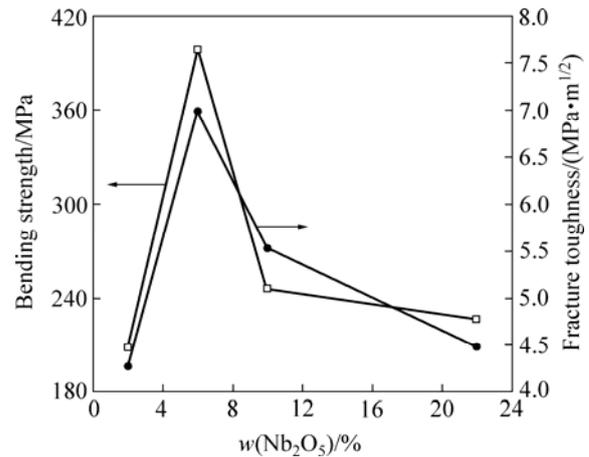


图 8 掺杂不同含量 Nb_2O_5 所合成产物的抗弯强度和断裂韧性

Fig.8 Bending strength and fracture toughness of products as function of Nb_2O_5 content

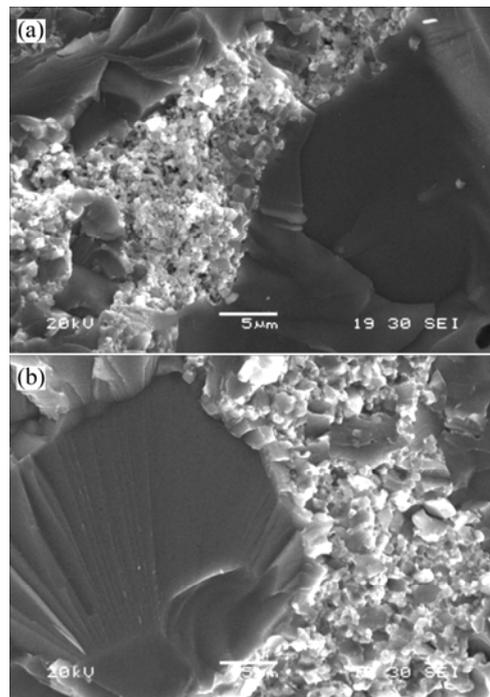


图 9 掺杂 2% 和 6% Nb_2O_5 合成产物的断口特征像

Fig.9 Characteristic images of fracture surface of sample with different contents of Nb_2O_5 : (a) 2%; (b) 6%

粒拔出后残留的横断面。颗粒的拔出与脱落亦需要消耗能量,故裂纹扩展阻力即断裂韧性明显提高。此外,由图3可见,Al₂O₃颗粒的弥散分布使得结构更加均匀,非常有利于韧性的提高。

REFERENCES

- [1] Kim Y W, Dimiduk D M. Progress in the understanding of gamma titanium aluminide[J]. JOM, 1991, 43(8): 40-47.
- [2] Kim W Y. Ordered intermetallic alloys, part III: Gamma titanium aluminides[J]. JOM, 1994, 46(7): 30-39.
- [3] 姚可夫, 乾晴行, 山口正治. 层片状双相 TiAl 合金拉伸与压缩变形行为差异[J]. 金属学报, 2000, 36(3): 308-312.
YAO Ke-fu, Inui H, Yamguchi M. Difference of deformation behaviors of TiAl polysynthetically twinned crystals in tension and compression at room temperature[J]. Acta Metallurgica Sinica, 2000, 36(3): 308-312.
- [4] Yamaguchi M, Umakoshi Y. The deformation behavior of intermetallic superlattice compounds[J]. Prog Mater Sci, 1990, 34(1): 1-148.
- [5] Chan K S. Toughening mechanisms in titanium aluminides[J]. Metallurgical Transactions A, 1993, 24A(3): 569-582.
- [6] Chan K S, Kim Y M. Relationships of slip morphology, microcracking, and fracture resistance in a lamellar TiAl-alloy[J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 1994, 25A(6): 1217-1228.
- [7] Kwai C S, Donald S S. Fatigue and fracture behavior of a fine-grained lamellar TiAl alloy[J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 1997, 28(1): 79-89.
- [8] Koczak M J, Premkumar M K. Emerging technologies for the in-situ production of MMCs[J]. JOM, 1993, 45(1): 44-48.
- [9] 付高峰, 姜 澜, 刘 吉, 孙宇飞, 张景新. 反应自生氧化铝颗粒增强铝基复合材料[J]. 中国有色金属学报, 2006, 16(5): 853-857.
FU Gao-feng, JIANG Lan, LIU Ji, SUN Yu-fei, ZHANG Jing-xin. In situ decomposed Al₂O₃ particles reinforced aluminum matrix composites[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2006, 16(5): 853-857.
- [10] Ma Z Y, Tjong S C, Wang Z G. Cyclic and static creep behavior of Al-Cu alloy composite reinforced with in-situ Al₂O₃ and TiB₂ particulates[J]. Mater Sci Eng A, 1999, A246: 177-187.
- [11] 王耐艳, 涂江平, 杨友志, 齐卫笑, 刘 芙, 张孝彬, 卢焕明, 刘茂森. 原位反应纳米 TiB₂/Cu 复合材料的制备和微结构[J]. 中国有色金属学报, 2002, 12(1): 151-154.
WANG Nai-yan, TU Jiang-ping, YANG You-zhi, QI Wei-xiao, LIU Fu, ZHANG Xiao-bin, LU Huan-ming, LIU Mao-sen. Preparation and microstructure of nanoscale TiB₂/Cu in-situ composites[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2002, 12(1): 151-154.
- [12] Tsunekawa Y, Suzuki H, Genma Y. Application of ultrasonic vibration to in situ MMC process by electromagnetic melt stirring[J]. Materials and Design, 2001, 22(6): 467-472.
- [13] 王 芬, 艾桃桃. Ti-Al-TiO₂ 系的热压合成及反应过程研究[J]. 宇航材料工艺, 2007(3): 46-49.
WANG Fen, AI Tao-tao. Hot-pressing synthesis and reaction process of Ti-Al-TiO₂ system[J]. Aerospace Materials & Technology, 2007(3): 46-49.
- [14] 艾桃桃, 王 芬, 朱建锋. Al₂O₃/TiAl 复合材料的原位合成及反应机制的研究[J]. 金属热处理, 2007, 32(4): 38-42.
AI Tao-tao, WANG Fen, ZHU Jian-feng. Reaction mechanism of In situ synthesized Al₂O₃/TiAl composite[J]. Heat Treatment of Metals, 2007, 32(4): 38-42.
- [15] 王 芬, 艾桃桃, 罗宏杰, 朱建锋. 双相 TiAl 基复合材料的强化机理分析[J]. 航空材料学报, 2007, 27(3): 11-16.
WANG Fen, AI Tao-Tao, LUO Hong-Jie, ZHU Jian-Feng. Analysis of strengthening mechanism in two-phase TiAl-based composites[J]. Journal of Aeronautical Materials, 2007, 27(3): 11-16.
- [16] 艾桃桃, 王 芬. Al-Ti-TiO₂-Nb₂O₅ 系的热扩散法合成及热力学计算[J]. 特种铸造及有色合金, 2006, 26(12): 822-824.
AI Tao-tao, WANG Fen. Thermo-dynamics calculation of TiAl-based composites fabricated by exothermic dispersion method in Al-Ti-TiO₂-Nb₂O₅ system[J]. Special Casting & Nonferrous Alloys, 2006, 26(12): 822-824.
- [17] AI Tao-tao, WANG Fen, ZHU Jian-feng. Microstructure and mechanical properties of Al₂O₃/TiAl composite[J]. Trans Nonferrous Met Soc China, 2006, 16(3): s1924-s1927.
- [18] 安世武, 王 芬, 朱建锋, 艾桃桃. 原位热压合成 Nb 掺杂 Al₂O₃/TiAl 复合材料[J]. 材料科学与工程学报, 2006, 24(3): 443-447.
AN Shi-wu, WANG Fen, ZHU Jian-feng, AI Tao-tao. Nb-doped Al₂O₃/TiAl composites synthesized by in-situ reaction hot-pressing processes[J]. Journal of Materials Science and Engineering, 2006, 24(3): 443-447.
- [19] 朱和国, 王恒志, 熊党生, 孙强金, 吴申庆. Al-TiO₂ 系 XD 合成铝基复合材料的反应机理[J]. 中国有色金属学报, 2005, 15(2): 205-209.
ZHU He-guo, WANG Heng-zhi, XIONG Dang-sheng, SUN Qiang-jin, WU Shen-qing. Reactive mechanism of composites synthesized by XD method in Al-TiO₂ system[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2005, 15(2): 205-209.
- [20] Rice R W, Freiman S W. Grain-size dependence of fracture energy in ceramics-I experiment[J]. Journal of the American Ceramic Society, 1981, 64(6): 345-350.

(编辑 陈爱华)