

[文章编号] 1004- 0609(2001)05- 0810- 05

MoSi₂ 复合材料断裂韧性的测量及评价^①

刘伯威¹, 樊毅¹, 张金生¹, 潘进²

(1. 中南大学粉末冶金国家重点实验室, 长沙 410083; 2. 广岛大学工学部机械系, 广岛 1- 4- 1 739- 8527)

[摘要] 对压痕法和单边切口梁法所测 MoSi₂ 基复合材料的断裂韧性作了研究和分析, 提出了压痕法测量 MoSi₂ 基复合材料断裂韧性的计算修正式。结果表明: 单边切口梁法的测量结果随试样切口宽度的增加而增大, 压痕法测量的结果随计算式和试验载荷的不同而异。使用上述修正式将缩小压痕法与 SENB 法的测量偏差。

[关键词] 断裂韧性; 压痕法; 单边切口梁法; MoSi₂

[中图分类号] TQ 174. 758

[文献标识码] A

1980 年前后, 由 Lawn 等人建立了压痕断裂力学理论。这一理论认为: 在压痕过程中, 压痕裂纹形成及扩展的唯一驱动力是压痕附近材料的弹/塑性形变失配所导致的残余应力^[1]。加压结束后处于平衡状态的压痕裂纹, 其尖端的残余应力场强度 K_r 在数值上等于材料的断裂韧性 K_{IC} 。目前压痕法(IM) 已被较多地应用于测量陶瓷等脆性材料的断裂韧性(K_{IC})。

压痕法测 K_{IC} 是用维氏硬度计在材料抛光面上加载, 由于在四边形压头的 4 个顶点有较大的应力集中, 在压头下方塑性区首先诱发初始裂纹, 当压力大于临界载荷时, 裂纹充分发展, 穿出表面, 形成径向/中位裂纹, 如图 1(a) 所示。图中裂纹长为 $2c$, 裂纹面与压痕对角线重合。由于材料显微组织的不均匀性, 实际观察到的裂纹形状如图 1(b) 所示。图中裂纹扩展的方向与压痕对角线方向不完全重合, 不同方向的裂纹扩展长度亦不相等。实际测量时采用分别测出自压痕各顶点扩展的裂纹长度和两条对角线的长度, 按下式(1) 求出裂纹半长 c , 压痕法的试样尺寸小、制样容易、测试速度快, 但压痕方程的表达式种类多, 计算结果往往相差较大。

$$c = (AE + BF + CG + DH + AC + BD) / 4 \quad (1)$$

单边直通切口梁法(SEN B) 通常被认为是一种研究得较为成熟的测量方法。此法虽然在国内外被广泛使用, 但因受切口宽度、切口深度以及晶粒度的影响, 因此, 国内外至今尚无统一的国家试验标准。单边切口梁法的试样尺寸代号及受力情况见图 2。

本研究的目的是通过综合评价和分析压痕法和

单边切口梁法, 寻求压痕法测量 MoSi₂ 基复合材料断裂韧性的适合计算式, 考察切口宽度对单边切口梁法测量结果的影响。

1 实验

1.1 材料制备

MoSi₂ 粉末的粒度 < 120 μm , 纯度 98% (质量分数, 下同, 除非特殊说明)。SiC 颗粒的粒度 < 104 μm , 纯度 98.5%。碳粉粒度为 30 μm , 纯度为 99.9%。将纯 MoSi₂, MoSi₂+ 2% C, MoSi₂+ 20% SiC_p(体积分数) 以及 MoSi₂+ 20% SiC_p(体积分数) + 2% C 4 种粉料在酒精介质中玛瑙球球磨 24 h, 干燥后装入石墨模中, 在氩气保护下热压成试样。热压压力为 24.5 MPa, 温度为 1 600 $^{\circ}\text{C}$, 保温时间为 50 min^[2, 3]。

Mo₂C 粉末由还原一化合法生产, 粒度为 50 μm , 纯度 99.5%。Si 粉的粒度为 74 μm , 纯度 99%。将 Mo₂C 和 Si 粉按摩尔比 1: 5 混合, 在酒精介质中玛瑙球球磨 36 h, 干燥后装入石墨模中, 在氩气保护下经反应烧结制得原位生长(in situ) SiC/MoSi₂ 复合材料。热压压力为 30 MPa, 在 1 350 $^{\circ}\text{C}$ 保温 2 h, 再在 1 700 $^{\circ}\text{C}$ 保温 1 h^[4]。

1.2 试验方法

切取上述 5 种材料, 试样尺寸为 6 mm \times 3 mm \times 20 mm。将试样的试验面以 0.5 μm 金刚石研磨膏抛光, 然后在布洛维硬度仪上, 在 98 N 和 196 N 的

① [收稿日期] 2001- 02- 15; [修订日期] 2001- 07- 12

[作者简介] 刘伯威(1965-), 男, 讲师, 工学硕士。

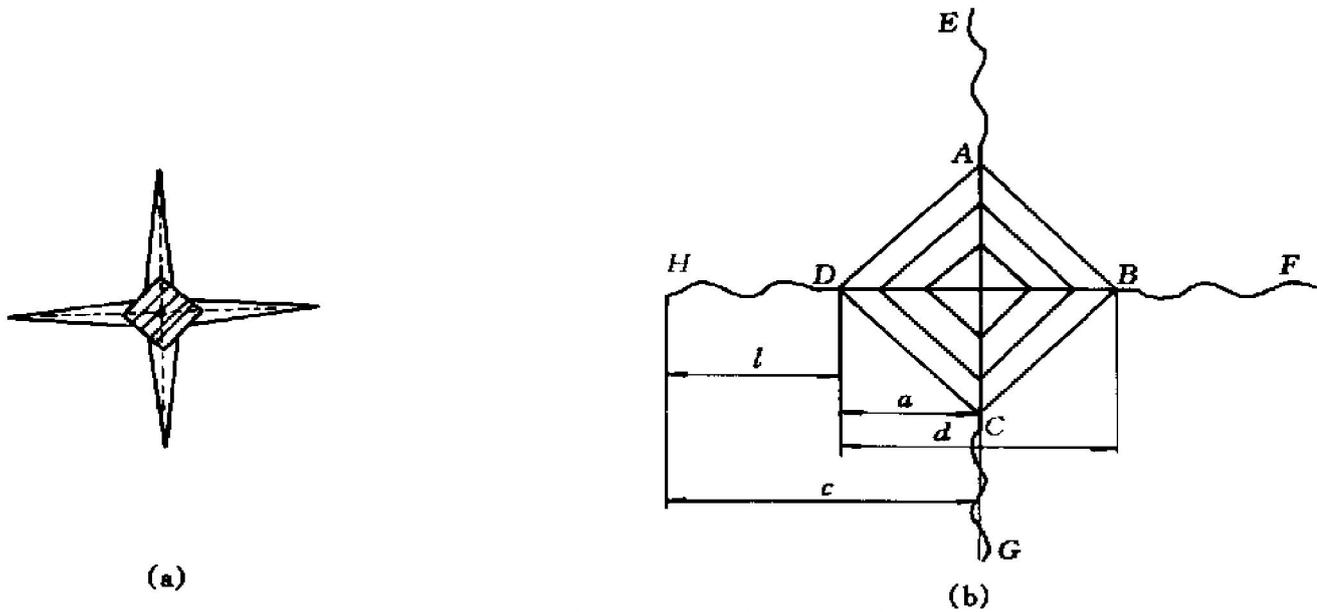


图 1 径向/中位裂纹(a)和实测裂纹示意图(b)

Fig. 1 Schematics showing radial/ median cracks (a) and empirical cracks (b)

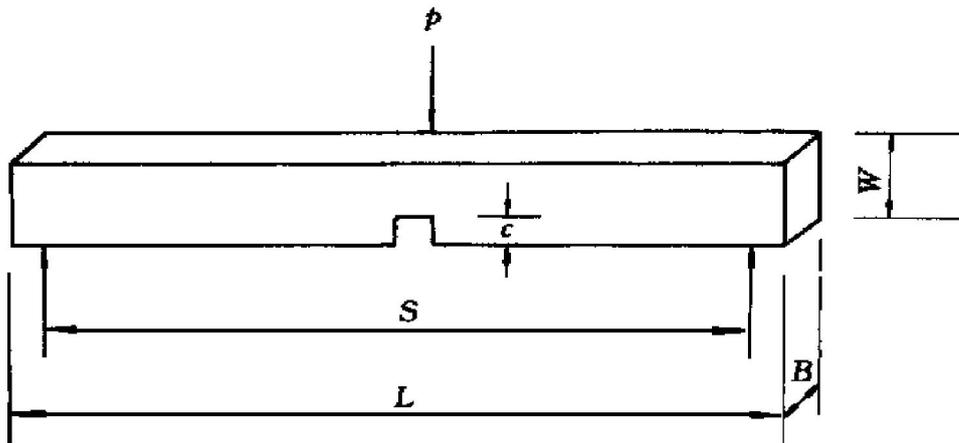


图 2 切口梁试件尺寸及受力简图

Fig. 2 Schematics showing sizes and forces of single edge notched beam

载荷下用维氏压头在试件抛光面上压出压痕。用 IBAS-2 图象分析仪测量压痕的 l , a , c 和 d 数据, 除掉非正常压痕, 但至少保证有 8~ 10 组数值, 求其平均值。将所得数据代入到式(1)~ (7)^[5~ 11]中, 求得 K_{IC} 值。

$$K_{IC} = 0.0752P(1/c)^{3/2} \quad (2)$$

$$K_{IC} = 0.016(E/H)^{1/2} F/c^{3/2} \quad (3)$$

$$K_{IC} = 0.129(c/a)^{-3/2}(E\Phi H)^{2/5} Ha^{1/2}/\Phi \quad (4)$$

$$K_{IC} = 0.035(l/a)^{-1/2}(E\Phi H)^{2/5} Ha^{1/2}/\Phi \quad (5)$$

$$K_{IC} = 0.142(c/a)^{-1.56}(E\Phi H)^{2/5} Ha^{1/2}/\Phi \quad (6)$$

$$K_{IC} = 0.047E(1- 6.64H/E)(E/H)^{2/5} d^2/c^{3/2} \quad (7)$$

式中 K_{IC} 的单位为 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$, E 为弹性模量(取

平均值 410 GPa), H 为维氏硬度(GPa, 由 $H = 1.854P/d^2$ 给出), d 为压痕对角线的平均值(μm), F 为载荷(N), c 为裂纹半长(μm), Φ 为约束因子(≈ 3), l , a , c 和 d 的关系见图 1(b)。

单边切口试样经切、磨、抛光而成。试件的受拉面用 0.5 μm 金刚石研磨膏研磨抛光。保证棱角互相垂直, 边棱纵向倒角 R0.5, B , W 尺寸在整个试件范围内的变化不大于 0.02 mm。试件尺寸的比例为: $c/W = 0.4- 0.6$, $W/S = 1/4$, $B \approx W/2$ 。

试件尺寸为 5 mm \times 2.5 mm \times 30 mm, 切口深为 2.5 mm, 跨距为 20 mm, 以线切割和金刚石锯片分别制取切口, 切口宽有 0.13 mm, 0.16 mm, 0.20 mm, 0.25 mm 和 0.30 mm 5 种规格。压头下压速率为 0.05 $\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$, 试验样本数为 5。在三点弯曲受力下, K_{IC} 值的计算式可由下式(8)给出^[12]。

$$K_{IC} = (F_c/B)(S/W^{3/2})f(C/W) \quad (8)$$

式中 $f(C/W) = 2.9(C/W)^{1/2} - 4.6(C/W)^{3/2} + 21.8(C/W)^{5/2} - 37.6(C/W)^{7/2} + 38.7(C/W)^{9/2}$

F_C 为破坏载荷(N), C 为切口深(mm), B 为试样宽(mm), W 为试样高(mm), S 为跨距(mm)。

用光学显微镜和扫描电镜测量分析材料的晶粒度, 根据 GB-3850 标准测定材料的密度。

2 结果和讨论

2.1 压痕法测断裂韧性

压痕法测得 5 种材料的断裂韧性(K_{IC}) 列于表 1 中。

从上表可以看出:

1) 由上述式(2)~(7) 6 个计算式计算出的 5 种材料的断裂韧性值, 其大小顺序基本一致(个别除外)。因此, 如果仅仅比较 $MoSi_2$ 基复合材料之间断裂韧性的大小, 用式(2)~(7) 6 个计算式中的任意一个求出的结果都认为是可以的。

2) 对同一种材料来说, 使用不同的计算式有不同的断裂韧性(K_{IC}) 值, 其中以式(6)和式(7)的结果相差最大, 达 4 倍多。

1976 年 Evans 和 Charles 通过对压痕断裂的量纲进行分析, 首先得出了 c 和 a 的关系式^[1]

$$K_{IC} \Phi H a^{1/2} = F_1(c/a) F_2(\nu, \mu, R_g/a) \quad (9)$$

式中 K_{IC} 为断裂韧性; H 为材料的维氏硬度; ν 为泊松比; R_g 为塑性变形区半径; μ 为压头与材料间的摩擦系数; Φ 为约束因子; F_1 和 F_2 是由试验确定的函数。

Evans 等人用各种材料的试验结果, 得出式(9)的具体形式为

$$K_{IC} \Phi H a^{1/2} = 0.15k(c/a)^{-3/2} \quad (10)$$

式中 k 为式(9)中 F_2 的一个修正系数, 约为 3.2。这个公式用于一般陶瓷材料所得 K_{IC} 的离散性较大, Evans 认为可达 $\pm 30\%$, 故式(10)只能用来粗略估计。许多学者从不同的角度进行研究, 获得了类似的结论, 得出的计算式也较多。不过, 如果考虑了材料的弹性模量 E 及维氏硬度的实测值, 将会提高压痕法测量 K_{IC} 的精度。上述式(2)~(7) 是不同学者根据不同的实验结果得出的计算式, 因此在用于计算 $MoSi_2$ 复合材料的断裂韧性时有较大的离散性。

3) 同一种材料在不同的载荷下有不同的断裂韧性 K_{IC} 值。纯 $MoSi_2$ 、原位生长 $SiC/MoSi_2$ 和 $C/MoSi_2$ 3 种材料, 在 98 N 的载荷下其 K_{IC} 值大于 196 N 载荷时的 K_{IC} 值; 而 $SiC_p/MoSi_2$ 和 $(SiC_p + C)/MoSi_2$ 2 种材料的情况正相反, 196 N 载荷时的 K_{IC} 值大于 98 N 载荷下的 K_{IC} 值。这是什么原因引起的呢?

经测定纯 $MoSi_2$ 的密度为 $5.98 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, 相对密度为 95.8%; 原位生长 $SiC/MoSi_2$ 的密度为 $5.50 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, 相对密度为 97.9%; $C/MoSi_2$ 的密度为 $5.60 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, 相对密度为 95.1%。3 种材料的相对密度都较高, 致密性较好, 材料中的缺陷较少。用大的载荷时, 压头下的塑性变形区所包含的缺陷少(如气孔), 于是压痕面积小, 计算式中的 a 较小; 而材料均匀使裂纹在扩展时能得到充分地发展, 因而 c/a 较大, 断裂韧性(K_{IC}) 值较小。用大载荷测量应当比小载荷更合理, 结果更接近实际。 $SiC_p/MoSi_2$ 和 $(SiC_p + C)/MoSi_2$ 的密度分别为 $5.03 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 和 $4.92 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, 相对密度分别为 89.2% 和 87.4%, 两种材料的相对密度较低, 致密性较差, 材料中的缺陷较多。与上列 3 种材料的情况正相

表 1 压痕断裂韧性(K_{IC}) 和维氏硬度

Table 1 Fracture toughness values and Vicker hardnesses measured by indentation technique

Material	H/GPa		$K_{IC}/(\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2})$											
			Eqn. (2)		Eqn. (3)		Eqn. (4)		Eqn. (5)		Eqn. (6)		Eqn. (7)	
	98 N	196 N	98 N	196 N	98 N	196 N	98 N	196 N	98 N	196 N	98 N	196 N	98 N	196 N
$MoSi_2$	7.88	7.98	2.46	2.01	3.77	3.07	4.91	4.00	4.58	4.52	5.09	4.08	1.54	1.23
$SiC/MoSi_2$	12.1	11.9	3.15	2.57	4.09	3.36	5.51	4.51	5.14	5.08	5.71	4.61	1.16	0.96
$C/MoSi_2$	10.4	10.1	2.82	2.54	3.97	3.14	5.31	4.43	5.06	4.91	5.42	4.59	1.43	0.96
$SiC_p/MoSi_2$	10.4	10.6	4.54	4.92	6.07	6.52	8.12	8.74	6.38	7.15	8.56	9.17	1.84	1.93
$(SiC_p + C)/MoSi_2$	12.2	11.7	4.87	5.12	6.34	6.62	8.57	9.65	7.04	7.89	9.43	9.75	2.11	2.76

反, 大载荷时, 压头下的塑性变形区所包含的缺陷多, 压痕面积大, a 较大; 裂纹在扩展过程中由于遇到缺陷而得不到充分发展, 裂纹偏短, c/a 值相对较小, 断裂韧性(K_{IC})值偏大。用小载荷测量比用大载荷更合理, 所测结果更接近于实际。

2.2 单边切口梁法测断裂韧性

用单边直通切口梁法(SEN B 法)测得 5 种材料的断裂韧性(K_{IC})列于表 2 中。由表 2 可见, 5 种材料的断裂韧性测量值随试样切口宽度的增加而增大。但各种材料的增幅不同, 原位生长 SiC/MoSi₂ 的增幅最大, 其次是 C/MoSi₂, 其它 3 种材料的增幅则相对较小。

表 2 5 种材料的断裂韧性(K_{IC})(SEN B 法测定)

Table 2 Fracture toughness of five types of materials(measured by SENB)

Material	$K_{IC}/\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$				
	Notch width/mm				
	0.13	0.16	0.20	0.25	0.30
MoSi ₂	4.30	5.53	4.61	4.82	4.97
SiC/MoSi ₂	4.94	5.21	5.78	6.12	6.34
C/MoSi ₂	4.92	5.12	5.67	5.77	6.02
SiC _p /MoSi ₂	5.95	6.35	6.25	6.36	6.47
(SiC _p + C)/MoSi ₂	6.70	7.2	7.36	7.32	7.40

试样的切口越窄, 相当于裂纹越尖锐。根据 Griffith 裂纹理论和弹性应力场理论知, 裂纹越尖锐, 试样在应力作用下, 裂纹尖端的塑性变形越小, 应力越集中, 于是所测得的 K_{IC} 值越接近于实际情况, 也就越是合理。因此, 在用单边切口梁法测量 MoSi₂ 基复合材料的断裂韧性时, 切口的宽度应当尽可能的小。

用单边切口梁法测量陶瓷材料的 K_{IC} 时, 由于受切口钝化的影响, 对于细晶粒陶瓷来说, 测得的断裂韧性值往往偏大, 尤其受切口宽度的影响很大。经光学显微镜和扫描电镜测量分析知, 纯 MoSi₂ 的晶粒度为 9~15 μm , SiC_p/MoSi₂ 和 (SiC_p+ C)/MoSi₂ 的晶粒度为 5~30 μm , C/MoSi₂ 的晶粒度 < 9 μm , 原位生长 SiC/MoSi₂ 的晶粒度 < 3 μm 。于是, 不难理解, 随着切口宽度的增大, 细晶粒的原位生长 SiC/MoSi₂ 的断裂韧性增幅最大, 其次是 C/MoSi₂, 其它 3 种材料的增幅则相对较小。

2.3 压痕法的计算修正式

在测量脆性材料的断裂韧性(K_{IC})时, 通常认为单边直通切口梁法(SEN B 法)是一种比较成熟的方法, 并在国内外较多使用。但由于其测量结果受到切口宽度的严重影响, 而过份要求窄的切口, 无论在国内还是在海外, 切口技术及其效率尚不足以使之广泛推行。特别是陶瓷的硬度大, 而试件尺寸精度要求高, 加工困难。因此, 压痕法测量技术尽管还不十分成熟, 但仍显得很有竞争力。

全面比较表 1 和表 2, 我们发现用压痕法测量材料的断裂韧性时, 以计算式(5)计算的结果最接近于单边切口梁法在切口宽度为 0.13 mm 时的 K_{IC} 值。经计算纯 MoSi₂, 原位生长 SiC/MoSi₂ 和 C/MoSi₂ 3 种材料在 196 N 载荷下的 K_{IC} 值, 比 SENB 法在切口为 0.13 mm 时的测量结果大 0%~5%; SiC_p/MoSi₂ 和 (SiC_p+ C)/MoSi₂ 2 种材料在 98 N 载荷时大 5%~7%。于是, 修正计算式(5)为

$$K_{IC} = 0.0336(l/a)^{-1/2}(E\Phi H)^{2/5}Ha^{1/2}/\Phi \quad (11)$$

的形式, 将使压痕法与 SENB 法的测量结果的偏差控制在 4% 以内。对于 MoSi₂ 基复合材料来说, 4% 的偏差应在测量误差范围之内。

3 结论

1) 在使用不同的计算式和不同的载荷时, 压痕法测量 MoSi₂ 基复合材料的断裂韧性有不同的值, 但各种材料的 K_{IC} 值大小顺序不变。

2) 用单边切口梁法测量 MoSi₂ 基复合材料的断裂韧性, K_{IC} 值随切口宽度的增加而增大^[3]。建议用 $K_{IC} = 0.0336(l/a)^{-1/2}(E\Phi H)^{2/5}Ha^{1/2}/\Phi$ 式计算压痕法测量 MoSi₂ 基复合材料的断裂韧性(K_{IC})。

[REFERENCES]

- [1] Lawn B R, Evans A G, Marshall D B, et al. Elastic/plastic indentation damage in ceramics: the median/radial crack system [J]. J Am Ceram Soc, 1980, 63(9/10): 574-580.
- [2] LIU Bo-wei(刘伯威), PAN Jin(潘进), FAN Yi(樊毅), et al. 掺碳 Si 颗粒对 MoSi₂ 复合材料性能的影响 [J]. Journal of the Chinese Ceramic Society(硅酸盐学报), 2001, 29(3): 204-209.
- [3] LIU Bo-wei(刘伯威), PAN Jin(潘进), FAN Yi(樊毅), et al. 2% C/MoSi₂ 复合材料的组织结构与性能 [J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals(中国有

- 色金属学报), 2001, 11(3): 466– 471.
- [4] LIU Bo-wei(刘伯威), PAN Jin(潘进). 原位生长 SiC/MoSi₂ 复合材料的制备工艺及力学性能 [J]. Powder Metallurgy Materials Science and Engineering(粉末冶金材料科学与工程), 2000, 5(3): 215– 221.
- [5] Niihara K, Morena R, Hasselman D P H, et al. Evaluation of K_{IC} of brittle solid by the indentation method with low crack-to-indent ratios [J]. J Mater Sci Lett, 1982, 1(1): 13– 16.
- [6] Anstis G A, Chantikul P, Lawn B R, et al. A critical evaluation of indentation techniques for measuring fracture toughness(I) —direct crack measurements [J]. J Am Ceram Soc, 1981, 64(9): 533– 538.
- [7] Lankford J. Indentation microfracture in the Palmqvist crack regime: implication for fracture toughness evaluation by the indentation method [J]. J Mater Sci Lett, 1982, 1(8): 493– 498.
- [8] Shetty D K, Wright I G, Mincer P N, et al. Indentation fracture of WC-Co cermets [J]. J Mater Sci, 1985, 20(5): 1873– 1882.
- [9] Laugier M T. New formula for indentation toughness in ceramics [J]. J Mater Sci, 1987, 6(3): 355– 356.
- [10] Marshall D B, Evans A G. Reply to “comment on ‘Elastics/plastic indentation damage in ceramics: the median/radial crack system’” [J]. J Am Ceram Soc, 1981, 64(8): 182– 183.
- [11] Ebrahimi F, De Aragao B J G, Castillo Gomez J R, et al. Evaluation of fracture toughness of duplex microstructures by an indentation technique [J]. Mater Sci Eng, 1994, A177: 7– 10.
- [12] GUAN Zhen- duo(关振铎), ZHANG Tai-zhong(张太中), JIAO Jin-sheng(焦金生). Physical Properties of Inorganic Materials(无机材料物理性能) [M]. Beijing: Tsinghua University Press, 1992. 58– 60.

Measurement and evaluation of fracture toughness of molybdenum disilicide matrix composites

LIU Bo-wei¹, FAN Yi¹, ZHANG Jin-sheng¹, PAN Jin²

(1. State Key Laboratory for Powder Metallurgy, Central South University, Changsha 410083, P. R. China;

2. Department of Mechanical Engineering, Hiroshima University, Kagamiyama 1- 4- 1, 739- 8527, Japan)

[Abstract] Vickers microhardness indentation and single edge notched beam specimen techniques were evaluated, and the modified equation was presented in the measurement of fracture toughness of molybdenum disilicide matrix composites. The fracture toughness value of tested material increased with the increasing of notch breadth in single edge notched beam technique, the results of Vickers indentation method had notable difference with using different equations and different applied loads. It was suggested that the above modified equation might be used to improve the accuracy of the evaluation value.

[Key words] fracture toughness; indentation technique; single edge notched beam specimen technique; molybdenum disilicide

(编辑 朱忠国)