

评价多孔 Si_3N_4 陶瓷断裂韧性的新方法 ——单向压缩试验

陈 猛, 金海云, 潘希德, 王红洁, 金志浩

(西安交通大学 电气设备电气绝缘国家重点实验室, 陕西 西安 710049)

摘 要: 人们常用单边梁切口法 (SENB) 评价多孔陶瓷的断裂韧性 (K_{IC}), K_{IC} 随孔隙率增加而不断下降。SENB 测试结果表明, 多孔陶瓷中的微气孔、微裂纹不仅没有起到增韧作用阻止裂纹扩展, 反而加速了扩展。而评价多孔陶瓷热震损伤抗力 (R'''') 时发现, 多孔陶瓷 R'''' 随孔隙率增加而增大, 该理论表明孔隙率增加阻止了裂纹扩展。很显然, 采用 SENB 法测定的 K_{IC} 值与微裂纹增韧以及热震损伤理论相矛盾。多孔陶瓷的单向压缩试验表明, 其 σ - ε 曲线可明显分为两部分, 即弹性变形部分和非线性部分。非线性部分出现是由于众多微裂纹亚稳扩展所致, 最终发生失稳断裂。用该法测出的断裂能, 可量化微裂纹增韧效应, 完善了多孔陶瓷断裂韧性的测试方法。

关键词: 多孔陶瓷; 断裂韧性 (K_{IC}); 单边梁切口法; 单向压缩试验; 热震损伤抗力 (R'''')

中图分类号: TG115.5⁺7

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2017)10-2883-06

陶瓷由于其共价键和离子键的特性, 决定了它具有耐高温、耐腐蚀、耐磨损等优点, 近年来被广泛应用于军工、高温气/固分离、热绝缘体、催化剂载体等工业领域。但是, 陶瓷的致命弱点——脆性问题没有得到根本的解决, 陶瓷材料的韧性差成为它在工程应用中的最主要障碍。数十年来, 国内外陶瓷领域的研究者十分重视对陶瓷增韧的研究^[1], 并取得了显著的进展, 其中相变增韧、纤维增韧、微裂纹增韧等受到人们广泛重视。

现代断裂力学中的断裂韧性 (K_{IC}) 已成为预防脆性断裂、材料和工程设计中最重要的力学性能指标之一。一直以来, 研究人员习惯于采用单边梁切口法 (SENB) 评价多孔陶瓷的 K_{IC} 值。大量实验表明, 随材料的孔隙率增加, 其 K_{IC} 值下降^[2-4], 多孔陶瓷中的微气孔或微裂纹不仅没有起到增韧作用, 反而使材料变脆了。而陶瓷的微裂纹增韧原理表明微裂纹或气孔可以提升陶瓷的韧性^[5,6], 这一观点与 SENB 法实验得到的结果相反。另外, 通过压痕法 (IM) 及阻力曲线的上升趋势, 可以定性地描述陶瓷材料的裂纹扩展的阻力行为^[7-9]。尽管得到了大量应用, 但该方法在学术界还存在一定的争议^[10]。与压痕法类似的 Hertzian contact test 法^[11,12]只能定性描述材料的裂纹扩展阻力行为, 且由于操作较压痕法繁复, 并未得到

广泛应用。

同时, 本研究注意到人们在分析陶瓷的热震破坏时, 提出了两种理论, 第 1 种即基于热弹性力学的热震断裂理论, 其抗热震断裂评价参数 R 表达式为:

$$R = \Delta T_c = \frac{\sigma_f(1-\nu)}{E\alpha} \quad (1)$$

式中, ΔT_c 是使材料发生断裂的最大温差 (临界温差), E 是材料的弹性模量, σ_f 是材料的抗断裂强度, ν 是材料的泊松比, α 是材料的膨胀系数。

第 2 种为从断裂力学出发, 得出的陶瓷的热震损伤理论, 其抗热震损伤评价参数 R'''' 表达式为:

$$R'''' = \frac{E\gamma_f}{\sigma_f^2(1-\nu)} = \frac{K_{\text{IC}}^2}{\sigma_f^2(1-\nu)} \quad (2)$$

式中, γ_f 是材料的断裂表面能^[13]。抗热震断裂理论注意的是裂纹成核问题, 一旦成核, 陶瓷材料便发生失稳扩展。抗热震损伤理论注意的是裂纹扩展问题, 显然, 增大陶瓷的断裂能或改善 K_{IC} , 能提高其热震损伤抗力。多孔材料的热震损伤抗力是随着孔隙率升高而提高的^[14-16]。

显然, 微裂纹增韧理论和抗热震损伤理论均与 SENB 法测得的实验结果相矛盾。为了解决上述矛盾, 本研究提出多孔陶瓷单向压缩试验, 简单可行地评价多孔陶瓷的断裂能或断裂韧性。采用该方法可定量描

收稿日期: 2016-09-16

基金项目: 国家自然科学基金 (51272206, 51272208)

作者简介: 陈 猛, 男, 1984 年生, 博士生, 西安交通大学材料科学与工程学院, 陕西 西安 710049, 电话: 029-82669929, E-mail: bingd600420@163.com

述多孔陶瓷的微裂纹增韧。

1 实验

本研究以 $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ 为主要原料，添加 3% 的 Y_2O_3 和 Al_2O_3 烧结助剂，加入乙醇作为分散介质，在滚筒式球磨机上球磨 20 h。将球磨后的物料放在 80 °C 恒温烘箱中干燥。干燥后的粉料过孔径 74 μm (200 目) 筛，待用。成型模具采用自制合金模具，模具直径是 60 mm。根据实验要求，调节不同的成型压力以期得到不同的孔隙率试样。最终确定的成型压力是 5、100、200 MPa。成型好的试样采用埋粉法在氮气气氛下进行烧结，氮气气压为 0.3 MPa，最高烧结温度为 1800 °C，并在最高温度保温 2 h，自然冷却。将烧结试样按国标《精细陶瓷弯曲强度试验方法》(GB6569-2006)，进行切割、粗磨、细磨等机加工处理，最终用于测试力学性能的试样标准尺寸为 3 mm×4 mm×40 mm。按上述工艺制备出 3 种不同孔隙率的试样：32%、45% 和 57%，为了便于表述，将 32%、45% 和 57% 孔隙率试样分别标记为 P32、P45 和 P57。

断裂韧性 (K_{IC}) 的测定采用 SENB 法。单向压缩测试采用上述材料加工成 4.0 mm×4.0 mm×4.8 mm 的试样，误差为 ± 0.1 mm，并对试样的棱角进行倒角处理。在室温下采用 INSTRON-1195 型万能材料试验机对试样进行压缩试验，加载速度为 0.01 mm/min；当负载首次下降 10% 时，视为试样裂纹萌生的开始；此后负载-形变曲线向下弯曲。随着变形的增加，试样完全失效时，所对应曲线上的点(形变，负载)为负载-形变曲线收敛点，收敛点以后的曲线成为收敛段。收敛段材料已经失去结构意义，不计入有效负载-形变曲线范围。加载过程中对试样进行拍照记录，观察压缩过程中试样的变形和裂纹萌生与扩展情况。

2 结果与分析

众所周知，陶瓷材料的抗压强度是抗拉强度的几倍甚至十几倍。拉伸断裂和压缩断裂的不同点在于断裂方式不一样，前者是非稳态断裂而后者是稳态断裂。在压缩过程中，材料会先生成许多短裂纹，然后每条短裂纹在应力不断增大作用下逐渐稳态扩展，直至它们互相交错而导致最后断裂。在压缩状态下，多孔材料强度的衰减是比较连续的，这与材料的抗热震损伤裂纹扩展形式相似。如图 1 所示，若在试样表面施加一均匀分布的压应力 σ_{compress} ，在该作用力下，试样纵向产生弹性收缩，横向产生弹性伸长 ϵ 。根据胡克定

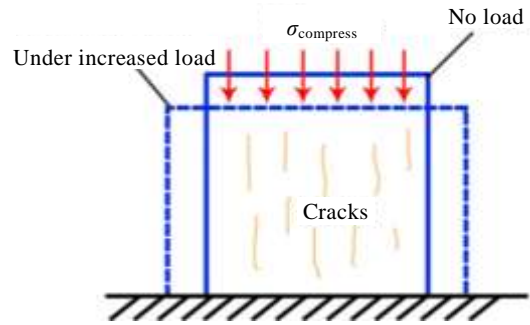


图 1 单向压缩试验过程中的加载与试样变形示意图
Fig.1 Schematic of uniaxial compression testing process

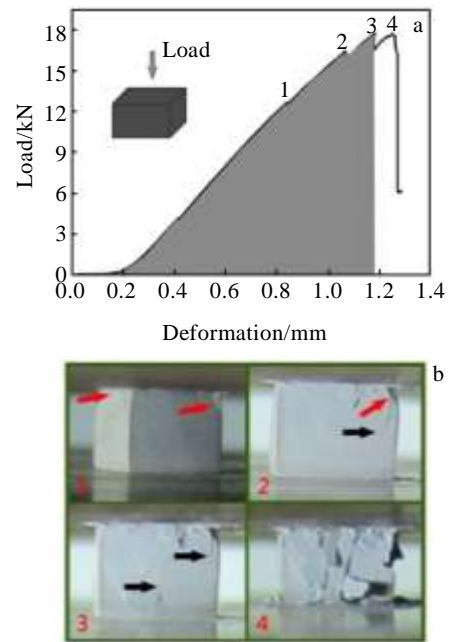


图 2 P32 试样准静态单向压缩试验的负载-形变曲线及其对应的试样形变过程照片
Fig.2 Load-deformation curve (a) and corresponding digital camera photographs (b) for a quasi-static uniaxial compression test of low porosity (32%)

律，在横向产生相应的拉伸应力 $\sigma = E\epsilon$ (E 为材料的弹性模量)，因此在压缩过程中会产生众多的平行微裂纹，导致材料内部裂纹稳态扩展。

图 2 是 P32 试样的准静态单向压缩试验的负载-形变曲线及其对应的试样形变过程照片。如图 2a 所示，该材料的最大负载达到 17.1 kN。图 2b 中的 4 张照片分别对应于负载-形变曲线上的 1、2、3、4 点时刻的试样，反映了试样在压缩过程中的断裂损伤过程。图 2b 显示，当负载达到 12 kN 时，试样的左上角开始出现小的裂纹(如红色箭头所示)。随着负载不断增加，

裂纹继续扩展, 每条裂纹形态较直, 没有偏转现象 (如黑色箭头所示)。单向压缩载荷达到 16.9 kN 时, 曲线迅速跌落。之后, 试样在载荷作用下分解成数个小碎片。该试样萌生微裂纹的数量相对较少, 在较高的弹性应力作用下产生失稳扩展。

图 3 是 P45 试样的准静态单向压缩试验的负载-形变曲线及其对应的试样形变过程照片。如图 3a 所示, 该试样的最大负载为 12.5 kN, 与 P32 试样相比显著减小。图 3b-1 对应峰值 (12.5 kN) 时样品的损伤图像。从图中可以看到, 在样品的左上角有两条明显的主裂纹萌生 (见红色箭头)。在图 3b-2 中, 可以明显看到一条折线裂纹形成 (见黑色箭头)。这可能是由于孔隙率的提升, 孔对裂纹产生的偏转作用, 从而吸收更多的能量。图 3b-3 对应于负载迅速跌落时样品损伤加剧。图 3b-4 显示整个表面被失效区域贯穿, 并出现结构的解体。

图 4 是 P57 试样的准静态单向压缩试验的负载-形变曲线及其对应的试样形变过程照片。该试样在较低的弹性应力作用下, 能萌生较多的微裂纹, 这些微裂纹随着应力不断增大, 在扩展过程中发生了钝化、偏转与分叉, 产生大量的新表面从而吸收大量的能量, 使得裂纹尖端扩展受阻, 因此出现稳态扩展。该试样

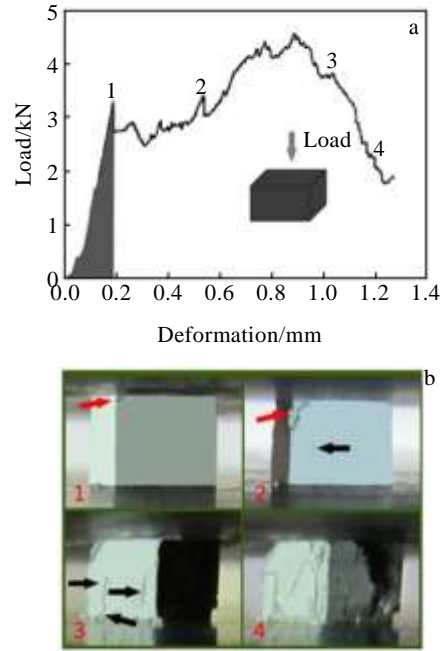


图 4 P57 试样准静态单向压缩试验的负载-形变曲线及其对应的试样形变过程照片

Fig.4 Load-deformation curve (a) and corresponding digital camera photographs (b) for a quasi-static uniaxial compression test of low porosity (57%)

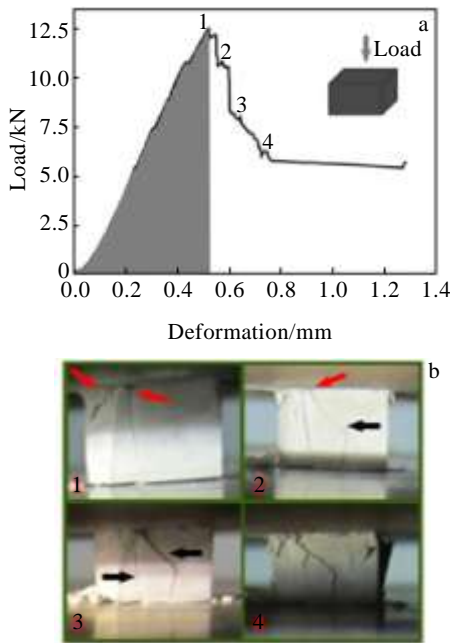


图 3 P45 试样准静态单向压缩试验的负载-形变曲线及其对应的试样形变过程照片

Fig.3 Load-deformation curve (a) and corresponding digital camera photographs (b) for a quasi-static uniaxial compression test of low porosity (45%)

的最大负载为 4.6 kN。与前两种材料对比, 最大的区别在于该材料没有出现贯穿性的裂纹, 大都是小裂纹稳态扩展 (如黑色箭头所示)。当负载不断加大时, 裂纹随之扩展变长, 直到交错在一起, 互相影响导致最终断裂。

图 2、3、4 表明, 不同孔隙率 (32%、45%、57%) 的 Si₃N₄ 多孔陶瓷, 其负载-形变曲线明显不同, 但均由两部分组成, 即负载-形变成线性关系 ($\sigma = E\epsilon$) 的弹性变形部分以及非线性变形部分。随孔隙率增大, 非线性部分所占比例不断增大, 同时试样表面出现众多微裂纹扩展痕迹。实验表明, 单向压缩试验时, 负载-形变曲线上的非线性部分的出现, 是由于众多微裂纹的亚稳扩展, 消耗了大量新的表面能, 阻止了众多微裂纹的失稳扩展, 使负载-形变曲线下的面积扩大, 最终在非线性部分的末端使材料完全失效断裂。本研究中, 基于抗压曲线围成的面积计算断裂能与弹性能的比值, 定义了无量纲韧性指标 T 。上述负载-形变曲线灰色部分代表弹性能。韧性值 T 的表达式如下:

$$T = \gamma_{fracture} / \gamma_{initiation} \tag{3}$$

式中, $\gamma_{fracture}$ 为基于抗压曲线围成面积计算的断裂能, $\gamma_{initiation}$ 为基于抗压曲线围成面积计算的弹性能。

表 1 显示了不同孔隙率下负载-形变曲线整条曲线（断裂能）和线性部分（弹性能）所占的面积，用两者的比值 T 定义了多孔陶瓷的韧性值。从表 1 可以看出，随孔隙率的增大，多孔陶瓷的韧性大幅提高，得出了与单边缺口梁法（SENB 法）完全相反的规律（见表 2），证实了多孔陶瓷中的微气孔与微裂纹确实起到了增韧作用，同时也证实了采用该法测试，试样的断裂过程并不是单裂纹失稳扩展，而是众多裂纹的亚稳扩展，最终导致失稳断裂。

用单边梁切口法（SENB 法）测定多孔陶瓷的 K_{IC} 表明，其 $\sigma-\varepsilon$ 曲线只存在线性部分，即弹性变形部分（如图 5 所示）。在加载过程中，当负载 σ 达到 σ_c ，材料随即发生失稳断裂（ σ_c 是材料抗断裂强度）。由于 SENB 法预制了长度为 c （按标准规定 c 为试样的半高长，切口宽度为 0.1~0.2 mm）的裂纹，在三点（或四点）弯曲条件下折断。由于预制裂纹的长度 c 是毫米级，在扩展过程中周围即使存在微裂纹（微米级），也无法与主裂纹竞争，只可能出现单裂纹失稳扩展。

表 1 不同孔隙率 Si_3N_4 陶瓷的韧性值

Table 1 Basic statistic for toughness index (T) of porous Si_3N_4 ceramics with different porosities

Porosity/%	32	45	57
γ_{fracture} (area)	3655.3	1142.5	372.5
$\gamma_{\text{initiation}}$ (area)	3088.9	733.6	57.86
T	1.183	1.557	6.42

表 2 不同孔隙率 Si_3N_4 陶瓷的 K_{IC} 值

Table 2 K_{IC} value of porous Si_3N_4 ceramics with different porosities

Porosity/%	32	45	57
$K_{IC}/\text{MPa m}^{1/2}$	2.75 ± 0.05	2.34 ± 0.03	1.26 ± 0.04

Note: K_{IC} values in the table are determined by SENB method

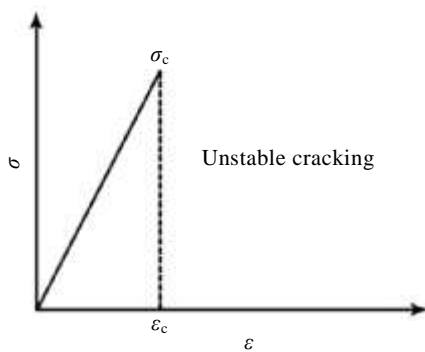


图 5 典型的 SENB 法测试断裂韧性的应力-应变曲线

Fig.5 Typical $\sigma-\varepsilon$ curve of the fracture toughness K_{IC} tested by SENB method

单向压缩试验时应力状态较“软”，软性系数：

$$\alpha = \frac{t_{\text{max}}}{s_{\text{max}}} = 2 \tag{4}$$

单向拉伸试验时应力状态较“硬”，软性系数：

$$\alpha = \frac{t_{\text{max}}}{s_{\text{max}}} = 0.5 \tag{5}$$

上式中： t_{max} ——最大切应力； s_{max} ——最大正应力。

如在应力状态较“软”的加载方式下进行单向压缩试验，则可以揭示在材料中客观存在而在拉伸状态下不能反映的塑性性能（或假塑性性能）。陶瓷的特性表明^[17,18]：陶瓷的抗压强度远远大于其抗拉强度。随压应力不断增大，垂直于压应力方向的横向拉伸应变 ε 增大。根据胡克定律，在横向产生相应的拉伸应力 $\sigma = E\varepsilon$ （ E 为材料的弹性模量）。当 σ 达到某一临界值，可能启动多孔陶瓷中的众多初始裂纹发生扩展。由于周围存在大量的微孔和微裂纹，对扩展中的裂纹尖端起到钝化作用，减小了裂尖的应力集中，阻止了初始裂纹的进一步扩展。当压应力不断增大时，可能出现众多裂纹的亚稳扩展，在众多裂纹亚稳扩展中必然消耗大量表面能，在反映材料宏观力学性能的 $\sigma-\varepsilon$ 曲线上出现非线性部分。另外，从单向压缩过程中试样表面出现很多平行的微裂纹也充分证明，它是众多微裂纹的亚稳扩展所致。

比较单边梁切口法和单向压缩法的 $\sigma-\varepsilon$ 曲线和裂纹扩展情况可以发现，前者测定的断裂韧性是反映了预制长裂纹的失稳扩展，后者 $\sigma-\varepsilon$ 曲线下所围的面积反映了众多裂纹在亚稳状态下扩展与受阻所产生的断裂能量。采用 SENB 法表征不同孔隙率 Si_3N_4 多孔陶瓷的 K_{IC} ，结果表明，多孔陶瓷的 K_{IC} 随孔隙率增加出现明显下降，而采用单向压缩试验表明，其断裂能随孔隙率增加明显提高。两种断裂试验方法得出了相反的结果。前者表明多孔陶瓷中的微孔、微裂纹不仅没有起增韧作用，反而脆化了陶瓷；而后者表明微气孔、微裂纹不仅没有脆化陶瓷，而起到了明显的增韧作用。

同时，本研究注意到，陶瓷抗热震理论经历了数十年研究，各种陶瓷专著和教科书都引用了 Hasselman 的观点——从断裂力学出发，试图把通过热弹性力学推导的热震断裂理论和通过断裂力学推导的热震损伤理论统一起来^[19]。但 Hasselman 在研究热震损伤理论时，根据大量实验结果所建立的力学模型的前提条件是，陶瓷材料单位面积上存在平均长度为 l 的 N 个裂纹，并指出裂纹扩展的动力是弹性应变能。裂纹扩展的阻力是裂纹扩展时表面能的增量。根据 Hasselman 理论，在热震损伤过程中并不是依赖一条主裂纹的失

稳扩展, 而是众多微裂纹的亚稳扩展, 产生较多新表面积 (或表面能) 阻止了裂纹的扩展。

通过观察单边梁切口法 (SENB) 和单向压缩试验的 σ - ε 曲线以及试样表面的裂纹扩展形貌, 可以明显看出, 前者属于单裂纹失稳扩展, 导致 K_{IC} 值随孔隙率增加而降低, 与 Hasselman 提出的热震理论相矛盾。而后者的 σ - ε 曲线的非线性部分和试样表面出现的众多微裂纹的亚稳扩展, 都充分证明了用单向压缩法得到的断裂能更能反映多孔陶瓷的裂纹扩展抗力。其方法简单可行, 重复性好, 是评价多孔陶瓷断裂韧性值得推荐的新方法。

3 结 论

1) 单边梁切口法 (SENB) 是多孔陶瓷材料最常用的断裂韧性 K_{IC} 的评价方法。从加载过程的 σ - ε 曲线看, 只存在弹性部分, 最终发生单裂纹失稳扩展。这种长裂纹的失稳扩展一旦发生, 周围微裂纹和微气孔不仅难以起到增韧作用, 而且加速了它的扩展, 因此随着孔隙率的增加, K_{IC} 值明显下降。

2) 从多孔陶瓷单向压缩试验加载过程的 σ - ε 曲线看, 它不仅存在弹性变形部分, 还存在非线性扩展部分, 非线性部分是由众多微裂纹的亚稳扩展引起的, 众多微裂纹的扩展增加了大量新的表面能, 从而阻止了裂纹的失稳扩展。微裂纹与微孔起到了增韧作用, 随孔隙率增加, 其断裂能和断裂韧性也明显增加。

3) 根据 Hasselman 从断裂力学建立起来的热震断裂与热震损伤统一理论, 前者适用于微裂纹一旦形成, 随后立即失稳扩展的情况; 后者适用于众多微裂纹的亚稳扩展过程。显然, 仅采用失稳断裂方式的 SENB 法评价多孔陶瓷的裂纹扩展和损伤过程是不全面的。用单向压缩试验法的结果与热震损伤理论一致, 完善了多孔陶瓷断裂韧性的测试方法。而且该方法简单可行, 数据稳定, 便于统一比较, 是评价多孔陶瓷断裂韧性值得推荐的新方法。

参考文献 References

- [1] Liang Jun(梁 军), Wang Chao(王 超), Luan Xu(栾 旭) *et al.* *Rare Metal Materials and Engineering* (稀有金属材料与工程) [J], 2009, 38(S2): 894
- [2] Wu J M, Zhang X Y, Yang J L *et al.* *J Eur Ceram Soc*[J], 2014, 34(5): 1089
- [3] Prieto A G, Lotito M D, Campos D G *et al.* *J Eur Ceram Soc*[J], 2015, 35(6): 1955
- [4] Li X M, Zhang L T, Yin X W. *J Mat Sci Tech*[J], 2012, 28(12): 1151
- [5] Liu Y G, Jia D C, Zhou Y *et al.* *Ceram Int*[J], 2011, 37(2): 647
- [6] Ang S F, Schulz A, Fernandes R P *et al.* *J Mech Behav Biomed*[J], 2011, 4(3): 423
- [7] Gong J, Chen Y, Li C. *J Noncryst Solids*[J], 2001, 279(2-3): 219
- [8] Nevarez-Rascon A, Aguilar-Elguezabal A, Orrantia E *et al.* *Int J Refract Met H*[J], 2011, 29(3): 333
- [9] Orange G, Tanaka H, Fantozzi G. *Ceram Int*[J], 1987, 13(3): 159
- [10] Zhang Qingchun(张清纯). *Journal of Inorganic Materials* (无机材料学报) [J], 1986, 1(4): 342
- [11] Cai H, Kalceff M A S, Lawn B R. *J Mater Res*[J], 1994, 9(3): 762
- [12] Wang X F, Liu J C, Hou F *et al.* *J Eur Ceram Soc*[J], 2015, 35(6): 1751
- [13] Hasselman D P H. *Mat Sci Eng*[J], 1985, 71(85): 251
- [14] Akselrod E K, Portnova A I. *Refract and Ceram*[J], 1985, 26(11): 587
- [15] Arato T, Nakamura K, Sobue M. *J Ceram Soc Jpn*[J], 1989, 97: 803
- [16] Antsifirov V N, Gilev V G, Lanin A G *et al.* *Ceram Int*[J], 1991, 17(3): 181
- [17] Holland C C, McMeeking R M. *Int J Impact Eng*[J], 2015, 81: 34
- [18] Serati M, Alehossein H, Williams D J. *J Mech Phys Solids*[J], 2015, 78: 123
- [19] Hasselman D P H. *J Am Ceram Soc*[J], 1969, 52(11): 600

A Novel Method for Evaluating the Toughness of Porous Ceramics— Uniaxial Compression Testing

Chen Meng, Jin Haiyun, Pan Xide, Wang Hongjie, Jin Zhihao

(State Key Laboratory of Electrical Insulation and Power Equipment, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract: Traditionally, the fracture toughness (K_{IC}) of porous ceramics is evaluated by single edge notched beam method (SENB). For porous ceramics, the fracture toughness tested by SENB increases with decreasing porosity, and it demonstrates that lower porosity improves the crack propagation resistance. However, previous experimental experience suggests that the thermal shock damage resistance (R''') of porous ceramics will increase with increasing porosity, indicating that the high-porosity ceramics have the better capability to improve the crack propagation resistance in thermal shock situation. The SENB method is obviously concluded to be in contradiction with the thermal shock damage theory. The uniaxial compression testing of porous ceramic shows that the σ - ε curve can be divided into two parts, linear part and nonlinear part. Due to the metastable propagation of multi-micro-crack, the σ - ε curve displays nonlinear behavior. The fracture energy measured by uniaxial compression testing can be also used to characterize the quantity of micro-crack-toughen effect, and it can improve the test method of fracture toughness for porous ceramics.

Key words: porous ceramics; fracture toughness (K_{IC}); single edge notched method; uniaxial compression testing; thermal shock damage resistance (R''')

Corresponding author: Jin Haiyun, Ph. D., Associate Professor, State Key Laboratory of Electrical Insulation and Power Equipment, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, P. R. China, Tel: 0086-29-82667942, E-mail: hyjin@mail.xjtu.edu.cn