

# NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al微叠层材料的断裂韧度测算

关春龙<sup>1</sup> 左宏森<sup>1</sup> 祁颖<sup>1</sup> 马李<sup>2</sup>

(1 河南工业大学, 郑州 450007)

(2 哈尔滨工业大学复合材料研究所, 哈尔滨 150001)

**文 摘** 利用电子束物理气相沉积技术 (EB - PVD) 制备了 NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al 微叠层复合材料。建立了具有中心穿透裂纹有限宽 NiCrAl 叠层的 I 型裂纹扩展模型, 推导出它的断裂韧度表达式, 并利用带预制裂纹的 NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al 叠层试样的四点弯曲断裂数据, 估算出 NiCrAl 的断裂韧度, 叠层后增强 Ni<sub>3</sub>Al 单体的断裂抗力。实验结果表明, 制备态 NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al 微叠层复合材料试样的拉伸断口呈现出裂纹扩展和裂纹瞬断两个区域; 随着温度的升高, 塑性增加。

**关键词** 电子束物理气相沉积, 微叠层复合材料, 断裂韧度

## Measurement and Calculation for Fracture Toughness of NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al Micro laminates

Guan Chunlong<sup>1</sup> Zuo Hongsen<sup>1</sup> Qi Ying<sup>1</sup> Ma Li<sup>2</sup>

(1 Henan University of Technology, Zhengzhou 450007)

(2 Center for Composite Materials, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001)

**Abstract** NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al micro laminated composites were fabricated by electron beam physical vapor deposition (EB - PVD). Crack expanding model of NiCrAl layer with penetrating center crack was established and fracture formula was given. Utilizing the test data of four points bending specimens of micro laminates with pre-crack, fracture toughness of NiCrAl layer was estimated. Upon laminating, the resistance to fracture of monomer Ni<sub>3</sub>Al is increased. The results show that there are two fields where the crack propagation and rupture take place in tension fractures of NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al micro laminate, and that ductility is enhanced with increasing temperature.

**Key words** EB - PVD, Micro laminated composites, Fracture toughness

### 1 引言

微叠层复合材料是将两种以上具有不同的物理、化学性能的材料按一定的层间距及层厚比交互重叠形成的多层材料, 材料组分可以是金属、金属间化合物、聚合物或陶瓷<sup>[1-2]</sup>。层间距小及多界面效应使微叠层材料在性能上优于相应的单体材料, 特别是应用于航空航天领域的微叠层金属/金属间化合物具有更为优异的高温韧性、抗蠕变能力、低温断裂强度、断裂韧度、热循环过程中的抗氧化性、较高温时的微结构热力学稳定性<sup>[3-5]</sup>。这些特点使微叠层材料受到高度重视, 现已成为世界各国的研究热点。由于 Ni<sub>3</sub>Al 金属间化合物具有较高的高温强度, 良好的热、化

学稳定性, 是极具开发价值的高温结构材料且具有很好的应用前景。但是, Ni<sub>3</sub>Al 的低温脆性及难成型性大大限制了其使用范围。通过加入韧性的镍合金, 形成金属和金属间化合物按一定的层间距交互重叠的微叠层复合材料有望改善 Ni<sub>3</sub>Al 金属间化合物的脆性和断裂韧度。

微叠层材料大多采用磁控溅射方法制备, 其主要缺点是沉积速率低并且难以获得大尺寸的叠层材料, 同时, 由于溅射出的原子团具有较大的能量, 使各层之间的扩散、混合作用加剧, 不利于获得界面清晰、明锐的叠层材料<sup>[6-7]</sup>。近年来, 电子束物理气相沉积技术 (EB - PVD) 具有工艺参数易于选择、可以精确控

收稿日期: 2008 - 01 - 08

基金项目: 河南省教育厅自然科学基金 (2008B430004)

作者简介: 关春龙, 1973 年出生, 副教授, 主要从事金属材料及复合材料的研究。E-mail: gcl\_hit@haut.edu.cn

制层厚和均匀性、沉积速率高、能够制备大尺寸多层材料等优点,在制备叠层复合材料方面最具有前景<sup>[8-9]</sup>。本文着重考察了以 EB - PVD 工艺制备的 NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al 叠层材料的微观组织和力学性能,建立了 NiCrAl 层的断裂韧度预报模型,为实现叠层材料的性能优化提供了参考。

## 2 实验

### 2.1 微叠层材料的制备

为获得 NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al 叠层材料,选取了相应的金属靶材,其名义成分(质量分数%)为 21.4Cr, 5.1Al, 余量 Ni, 0.74Cr, 22.5Al, 0.24Fe, 0.86Si, 0.99Ti, 余量 Ni, 全部采用真空熔炼方法制成。

图 1 为 EB - PVD 设备的示意图。六个电子枪(I - VI)安装在两个电子枪室中,每个电子枪的最大功率为 60 kW。其中,电子枪 II~V 用于材料的蒸发,I 和 VI 用于预热基板。在可绕垂直轴旋转的支架上安装 800 mm 的不锈钢基板。所用蒸发源材料为

100 mm × 500 mm 的 NiCrAl 和 Ni<sub>3</sub>Al 锭子,制备 NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al 叠层材料的工艺过程如下:首先以电子枪 I 和 VI 对基板进行预热,温度达到 800。蒸发沉积过程中的真空度为 60 ~ 100 mPa。为防止叠层材料同基板之间发生粘结,并使之易于从基板上剥离,需要在蒸发叠层材料之前在基板表面蒸发一层抗粘物质 CaF<sub>2</sub>,厚度 5 ~ 10 μm。然后交互蒸发 NiCrAl 和 Ni<sub>3</sub>Al 锭子,形成 NiCrAl 和 Ni<sub>3</sub>Al 层厚相同、总厚度为 0.2 mm 的 NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al 叠层材料,层间距为 0.5 μm,最后将该叠层材料从基板上剥离下来。NiCrAl 和 Ni<sub>3</sub>Al 的蒸发速率分别控制为 2 和 5 μm/min。

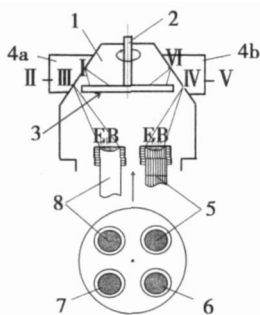


图 1 EB - PVD 装置示意图

Fig 1 Schematic drawing of EB - PVD equipment

1—真空室; 2—垂直支架; 3—旋转基板; 4a, 4b—电子枪室; 5—CaF<sub>2</sub> 锭子, 6—储备锭子; 7—NiCrAl 锭子; 8—Ni<sub>3</sub>Al 锭子; I~VI—电子枪。

### 2.2 微观组织分析及力学性能测定

将沉积后的叠层材料制备成拉伸试样,测试其在室温、500、600 和 700 的拉伸性能。试样的拉伸性能试验在 NSTRON - 5569 型万能实验机上进行,宇航材料工艺 2008 年 第 4 期

加载速率为 0.05 mm/min。四点弯曲试验在 MTS 试验机进行。为减少实验误差,对每种样品均进行 5 次拉伸试验,取其平均值作为最终结果;采用扫描电镜对拉伸试样断口形貌进行观察。

### 2.3 NiCrAl 断裂模型建立

微叠层试样表面裂纹问题简化为具有中心穿透裂纹的有限宽度叠层 I 型裂纹扩展问题。图 2 中 H 为复合梁中性层到 Ni<sub>3</sub>Al 表面的距离; t<sub>1</sub>、t<sub>2</sub> 分别为 Ni<sub>3</sub>Al 和 NiCrAl 的层厚<sup>[10]</sup>, b 为试样宽度, 2c 为裂纹长度。

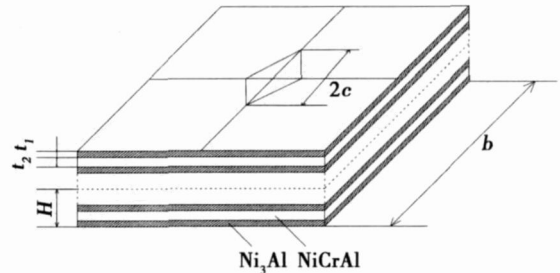


图 2 含表面裂纹 NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al 微叠层材料的断裂模型

Fig 2 Fracture model with surface crack of NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al micro laminate

有限宽板穿透裂纹的裂纹尖端应力场的应力强度因子表达式为<sup>[11]</sup>:

$$K = \sqrt{c} f(2c/b) \quad (1)$$

式中,函数 f(2c/b) 是考虑有限宽板两侧由于解除位移约束而使裂纹尖端的应力场强度因子提高的修正系数。式 (1) 可以进一步修正为<sup>[12]</sup>:

$$K = \sqrt{c} \sqrt{\sec(c/b)} F \quad (2)$$

$$F = 1 - 0.25(c/b)^2 + 0.06(c/b)^4 \quad (3)$$

简化模型确定叠层的断裂韧度 K 的关键是求解断裂时名义拉伸应力 σ<sub>0</sub>。将 NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al 叠层试样简化为复合梁模型, Ni<sub>3</sub>Al 和 NiCrAl 弯曲正应力为:

$$\sigma_x^{(1)} = E_1 (\epsilon_x^0 + z k_x) \quad (4)$$

$$\sigma_x^{(2)} = E_2 (\epsilon_x^0 + z k_x) \quad (5)$$

其中  $k_x = \frac{3M}{bE_1 t_1^3 [(\cdot, \cdot) + (\cdot, \cdot)]}$  (6)

$$(\cdot, \cdot) = 1 - \frac{3}{2} \left[ 1 + \frac{(\cdot + 1)}{1 + \cdot} \right] + \frac{3}{4} \left[ 1 + \frac{(\cdot + 1)}{1 + \cdot} \right]^2 \quad (7)$$

式中, E<sub>1</sub>、E<sub>2</sub> 分别为 Ni<sub>3</sub>Al 和 NiCrAl 的弹性模量, ε<sub>x</sub><sup>0</sup> 为 x 方向正应变, z = t<sub>2</sub>/t<sub>1</sub>, k<sub>x</sub> = E<sub>2</sub>/E<sub>1</sub>, 四点纯机械弯曲条件下, NiCrAl 层厚为 0.5 μm, 因此其拉伸应力为:

$$\sigma_x^2 = \frac{3PLE_2(t_1 + t_2 - H)}{bE_1 t_1^3 [(\dots) + (\dots)]} \quad (8)$$

$\sigma_x^2$  在断裂时即为中心穿透裂纹的有限宽度 NiCrAl

$$K_{Ic} = \frac{3PLE_2(t_1 + t_2 - H)}{bE_1 t_1^3 [(\dots) + (\dots)]} \cdot \sqrt{c} \cdot \sqrt{\sec(\dots) [1 - 0.25(c/b)^2 + 0.06(c/b)^4]} \quad (9)$$

### 3 结果和分析

#### 3.1 拉伸性能

图 3 给出了制备态 NiCrAl/NiAl 微叠层试样在不同温度下的拉伸性能。由图可知,制备态材料拉伸强度和屈服强度随温度的升高逐渐下降,当温度超过 500 后,材料塑性开始增加。

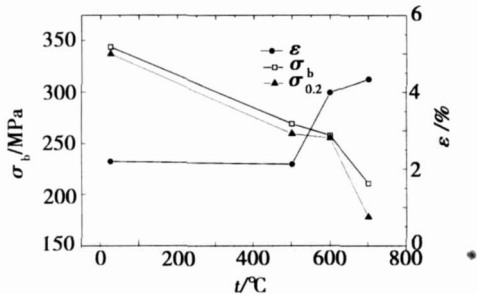


图 3 制备态 NiCrAl/NiAl 微叠层板的力学性能

Fig 3 Mechanical properties of as-deposited NiCrAl/NiAl microlaminates

图 4 为制备态微叠层试样在不同温度下的 SEM 拉伸断口形貌。可以看出材料在室温和高温时全部呈现出明显形貌不同的两个断裂区域:裂纹扩展区(即韧性区)和裂纹瞬断区(即脆性区域)。当温度小于 500,断口呈现明显的柱状晶,为明显脆性断裂,这是由于基片的温度较低,材料的蒸发速率高,当基片的表面具有一定的粗糙度时,蒸气原子遇到某些突出部位会优先形核,同时沉积的合金原子迁移率比较低导致了沉积到基板上的原子会沿一定的方向优先生长,从而形成柱状晶结构;当温度高于 500,断口中存在着少量的不同大小和深浅的韧窝,开始呈现出韧性断裂特征。这些韧窝的形成主要原因是层界面的存在使裂纹尖端钝化。当裂纹产生并扩展到界面

时,由于界面弹性模量相对较大,裂纹扩展受阻,导致裂纹尖端钝化,而沿着靠近层界面和晶界所需能量较小的方向扩展,随着载荷和位移的增加,整个晶粒被拔出,微观上也表现为脆性断裂和部分的韧性断裂,这与图 2 中材料性能变化规律相符。

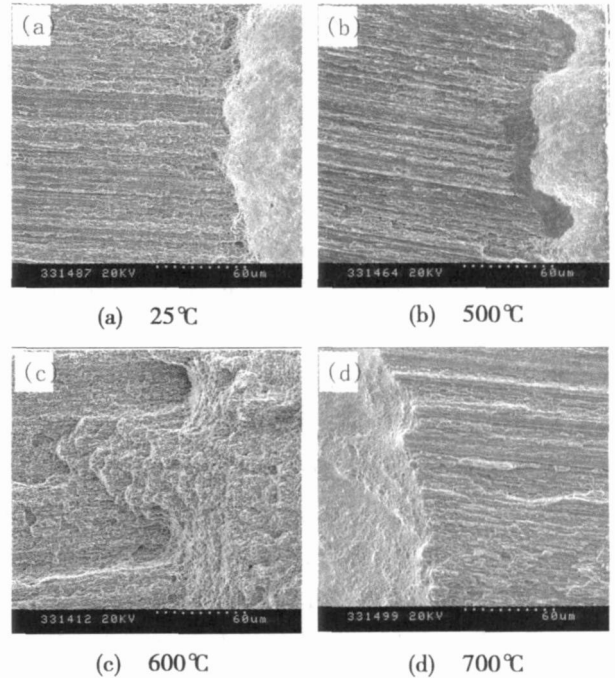


图 4 微层材料在不同温度下的拉伸 SEM 断口

Fig 4 Tensile fractures of microlaminates at different temperatures

#### 3.2 断裂模型验证

根据对叠层试样四点弯曲断裂试验结果,可以得到不同试样的断裂载荷 P,再将它们代入 (9) 式分别确定 NiCrAl 的断裂韧度,见表 1。

表 1 NiCrAl 叠层的断裂模型参数及断裂韧度

Tab 1 Fracture model parameters and fracture toughness of NiCrAl microlaminates

试样	$E_1$ / GPa	$t_1$ / $\mu$ m	$E_2$ / GPa	$t_2$ / $\mu$ m	$b$ / mm	$L$ / mm	$P$ / N	$c$ / $\mu$ m	$K_{Ic}$ / $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$
1	0.42	0.5	2.12	0.5	25.2	30.0	65	64	31.5
2	0.41	0.5	2.10	0.5	25.1	30.0	67	78	31.7
3	0.41	0.5	2.13	0.5	25.4	30.0	68	85	28.3
4	0.42	0.5	2.12	0.5	25.1	30.0	65	89	25.4
5	0.42	0.5	2.12	0.5	25.4	30.0	69	80	26.1
平均值	0.42	0.5	2.12	0.5	25.2	30.0	66.8	79.2	28.6

通过对文献 [13] 和表 1 中的数据比较, NiCrAl 的断裂韧度比 Ni<sub>3</sub>Al 断裂韧度高, 叠层后将增强 Ni<sub>3</sub>Al 单体的抗断性能。此外还发现裂纹体尺寸  $c$  越小, 断裂所需的名义应力越大。

#### 4 结论

估算出 NiCrAl 的断裂韧度, 叠层后增强 Ni<sub>3</sub>Al 单体的抗断性能。裂纹体尺寸  $c$  越小, 断裂所需的名义应力越大。制备态 NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al 微叠层复合材料试样的拉伸断口呈现出裂纹扩展区 (韧性区) 和裂纹瞬断区 (脆性区) 两个区域, 随着温度的升高, 塑性增加。制备态 NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al 在 500 以下的拉伸断口中有柱状晶形成, 表现出沿晶脆性断裂; 600 和 700 时的拉伸断口呈现韧度断裂特征。

#### 参考文献

- 1 马培燕, 傅正义. 微叠层结构材料的研究现状. 材料科学与工程, 2002; 20(4): 589 ~ 593
- 2 Wolfe D E, Singh J. Synthesis and characterization of multilayer materials and TiC/TB2 coatings deposited by ion beam assisted, electron beam physical vapor deposition (EB-PVD). Surf & Coat Tech, 2003; 165: 8 ~ 25
- 3 陈燕俊, 周世平, 杨富陶. 层叠复合材料加工技术发展. 材料科学与工程, 2002; 20(1): 140 ~ 142
- 4 Xu W H, Meng X K et al. The synthesis and mechanical property evaluation of Ni/Ni<sub>3</sub>Al microlaminates. Mater Lett, 2000; 46(5): 303 ~ 308

- 5 Van Heerden D, Gavens A J et al. Evaluation of vapor deposited Nb/Nb<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> microlaminates. Mater Sci & Eng, 1999; A261(1~2): 212 ~ 216

- 6 Xu W H, Meng X K, Yuan C S et al. The synthesis and mechanical property evaluation of Ni/Ni<sub>3</sub>Al microlaminates. Mater Lett, 2000; 46: 303 ~ 308

- 7 Banerjee R, Thompson GB, Anderson PM et al. Sputter deposited nanocrystalline Ni-25Al alloy thin films and Ni/Ni<sub>3</sub>Al multilayers. Thin Solid films, 2003; 424: 93 ~ 98

- 8 Singh J, Wolfe D E. Nano and macro-structured component fabrication by EB-PVD. J. Mater. Sci, 2005; 40(1): 1 ~ 26

- 9 Movchan B A. EB-PVD technology in the gasturbine industry: present and future. JOM, 1996; 48: 98 ~ 102

- 10 关春龙, 徐三魁, 祁颖. 热处理对 NiCrAl/Ni<sub>3</sub>Al 微叠层材料力学性能影响. 航空材料学报, 2007; 27(4): 46 ~ 49

- 11 Isida M. On the tension of a strip with a central elliptical hole. Trans. Jap. Soc. Mech. Eng, 1955; 21: 132 ~ 146

- 12 Feddersen C E. Discussion of plane-strain crack toughness testing of metallic materials. Current status of plane strain crack toughness testing of high-strength metallic materials. ASTM STP 410. ASTM International, West Conshohocken, PA, 1967: 77 ~ 79

- 13 李运菊. Ni<sub>3</sub>Al 的显微组织与力学性能研究. 西安理工大学硕士论文, 2002

(编辑 任涛)