

Si₃N₄陶瓷蠕变性能 MSP 评价方法的理论与实验研究

陈刚¹, 翟鹏程¹, 张清杰²

(武汉理工大学 1. 理学院; 2. 材料复合新技术国家重点实验室, 武汉 430070)

摘要: 基于薄板弯曲蠕变模型, 对 MSP(Modified Small Punch)蠕变试验进行了理论研究, 建立了材料蠕变应力指数 n 的评价公式. 采用有限元分析软件 MARC 对 MSP 蠕变试验进行了数值模拟, 将数值模拟采用的 n 值与评价结果 n 值进行了比较, 12Cr1MoV 钢和含 Cr9% 的钨合金钢分别相差 1.6% 和 2.7%; SUS304 不锈钢的 MSP 蠕变试验结果与传统单轴拉伸蠕变实验结果相差仅为 2.9%, 数值模拟结果的一致性与两种实验结果的吻合验证了理论公式的有效性. 在此基础上, 通过对多孔 Si₃N₄ 陶瓷蠕变性能的研究, 发现多孔 Si₃N₄ 陶瓷在温度为 1000℃ 条件下不仅具有较好的延展性, 而且有一定的蠕变变形; 应用材料蠕变应力指数的理论公式, 得到了多孔 Si₃N₄ 陶瓷材料的应力指数. 研究结果表明, MSP 蠕变试验方法在非金属材料高温蠕变性能的评价上具有广阔的应用前景.

关键词: MSP; Si₃N₄ 陶瓷; 蠕变性能

中图分类号: O39

文献标识码: A

Theory and Experiment Research on MSP Evaluation Method for Si₃N₄ Ceramic Creep Properties

CHEN Gang¹, ZHAI Peng-Cheng¹, ZHANG Qing-Jie²

(1. School of Science, Wuhan University of Technology, Wuhan 430070, China; 2. State Key Laboratory of Advanced Technology for Materials Synthesis and Processing, Wuhan University of Technology, Wuhan 430070, China)

Abstract: Theory research of MSP(Modified Small Punch) creep test was performed based on the thin plate bending creep model and the theory formula of creep stress exponent was established. A numerical study was carried out to simulate MSP creep tests by using the finite element software MARC. The creep stress exponent adopted in the numerical simulation was compared with the evaluation result. It is found that differences are 1.6% and 2.7% for 12Cr1MoV steel and tungsten-alloyed 9% Cr steel, respectively. The difference between the MSP creep test result of SUS304 stainless steel and the traditionally uniaxial creep test result is only 2.9%. The validity of the theory formula is verified by the consistency of numerical simulation results and by the excellent agreement with the experimental results. Based on the research of the creep properties of Si₃N₄ ceramic, it is found that there are both preferable ductibility and obvious creep deformation at 1000℃. The creep stress exponent of Si₃N₄ ceramic is obtained by using the theory formula. The results indicate that the MSP creep test method has wide application for the evaluation of high temperature creep properties of nonmetal materials.

Key words: MSP; Si₃N₄ ceramic; creep properties

SP(Small Punch)试验技术是由 Ames 实验室的 Baik 和 Kameda 等在上世纪 80 年代初首先提出的一种使用小试样评价材料力学性能的测试方法^[1]. 上世纪 90 年代, 日本东北大学的 FGMs 研究组为了评

价陶瓷-金属功能梯度材料, 对 SP 试验法进行改良, 成功地开发了更适合于评价脆性材料力学性能的 MSP(Modified Small Punch)试验装置^[2].

目前在 SP 蠕变试验研究领域, 不同的实验室分

别进行了 SP 蠕变试验^[3-7], 试验得到的“三阶段”的蠕变曲线与单轴拉伸蠕变实验的结果非常相似. 通过对试验结果的对比研究, 各研究者一致认为 SP 蠕变试验可以有效获取材料的蠕变性能参数, 证明了 SP 试验法用于测定材料蠕变性能的可行性.

日本的 Saucedo-Munoz 等^[8]对 SUS316 未服役材料和在役材料进行 SP 蠕变试验, 并从蠕变性能、断裂时间、微观组织等方面进行比较, 指出在大载荷下, 新材料的蠕变强度高于服役材料, 而在低载荷下则相反. Komazai 等^[9]利用 SP 方法对含 Cr9% 的钨合金钢的蠕变性能进行了评价, 并用载荷代替应力得到了材料的蠕变载荷指数. Hyde 等^[10]使用方形压头测定焊缝的蠕变性能, 提出了载荷和应力、挠度和应变之间的关系. Dobes 等^[11]针对铁铝合金 Fe28Al3Cr0.02Ce, 在 873K 下研究了载荷和最小挠度率之间的关系, 得到了类似的 Norton 方程.

杨镇等^[12]基于薄膜拉伸理论推导了 12Cr1MoV 试样中心应变与挠度的关系以及试样中心等效力与载荷、挠度之间的关系. 陈玉新等^[13]应用 SP 蠕变试验技术评定了 SUS304 材料的高温力学性能. 熊智等^[14]采用 MSP 方法评价了 PLZT 压电陶瓷的强度; 而江莞等^[15-17]采用 MSP 方法评价了 Mo/PSZ 系复合材料和 MoSi₂ 基复合材料的高温强度和 TBTT 等高温力学性能, 证明了 MSP 方法评价陶瓷材料的有效性.

在已有的研究报道中, 国内外对 SP 蠕变试验技术的理论研究较少, 缺乏有效的理论模型; SP 蠕变试验主要应用于金属材料的蠕变性能研究, 而对非金属材料蠕变性能评价的研究报道较少, 且 MSP 蠕变试验方法自身的理论基础尚不明确.

本文基于 MSP 蠕变试验方法的理论研究, 建立了材料蠕变应力指数评价的计算公式, 通过数值模拟和对 SUS304 金属材料的实验研究, 验证了理论公式的有效性. 在此基础上, 研究了多孔 Si₃N₄ 陶瓷的高温蠕变行为, 获得了材料的蠕变性能参数, 评估了 MSP 蠕变试验法在非金属材料中的应用前景.

1 材料蠕变应力指数的理论公式

基于薄板弯曲蠕变模型, 文献[18]给出了圆平板夹支情况下面中心挠度 δ_c^e 的表达式:

$$\delta_c^e = \frac{3^{\frac{n+1}{2}} (2n+1)^n a^2}{4n^n h^{2n+1}} \left(\frac{P}{8\pi J^e} \right)^n \Omega(t) \tag{1}$$

对应稳定蠕变阶段, 取 $\Omega(t) = At$ 是时间 t 的函数, 将其代入(1)式并对时间 t 求导得试样中心挠度率:

$$\dot{\delta}_c^e = \frac{3^{\frac{n+1}{2}} (2n+1)^n a^2}{4n^n h^{2n+1}} \left(\frac{P}{8\pi J^e} \right)^n A \tag{2}$$

其中 A 和 n 是与材料相关的参数, a 和 h 分别是试样自由部分的半径与试样厚度, P 是外载荷, 而 J^e 仅与材料的蠕变应力指数 n 有关, 对于确定材料它是常数. 因此, 对具体某种材料, A 、 n 和 J^e 都是常数, 在实验装置中, 试样夹具的下模孔半径 a 也是常数.

考虑两个不同厚度的试样在不同的载荷水平 P_1 和 P_2 下进行试验, 可得到不同的试样中心挠度率, 则:

$$\dot{\delta}_{c1}^e = \frac{3^{\frac{n+1}{2}} (2n+1)^n a^2}{4n^n h_1^{2n+1}} \left(\frac{P_1}{8\pi J^e} \right)^n A \tag{3}$$

$$\dot{\delta}_{c2}^e = \frac{3^{\frac{n+1}{2}} (2n+1)^n a^2}{4n^n h_2^{2n+1}} \left(\frac{P_2}{8\pi J^e} \right)^n A \tag{4}$$

由(3)、(4)式可得:

$$\frac{\dot{\delta}_{c1}^e}{\dot{\delta}_{c2}^e} = \frac{h_2}{h_1} \left(\frac{P_1}{P_2} \frac{h_2^2}{h_1^2} \right)^n \tag{5}$$

由(5)式得材料蠕变应力指数 n 的计算公式为:

$$n = \ln \left(\frac{\dot{\delta}_{c1}^e h_1}{\dot{\delta}_{c2}^e h_2} \right) / \ln \left(\frac{P_1}{P_2} \frac{h_2^2}{h_1^2} \right) \tag{6}$$

(6)式是圆板试样在周边夹支情况下得到的蠕变应力指数 n 的计算公式.

同样对于圆平板试样周边简支的情况, 试样中心挠度记为 δ_c^s , 推导其表达式为

$$\delta_c^s = \frac{7 \times 3^{\frac{n+1}{2}} (2n+1)^n a^2}{4n^n h^{2n+1}} \left(\frac{7P}{8\pi J^s} \right)^n At \tag{7}$$

与圆板试样在周边夹支情况相同推导, 可得材料蠕变应力指数 n 的计算公式为

$$n = \ln \left(\frac{\dot{\delta}_{c1}^s h_1}{\dot{\delta}_{c2}^s h_2} \right) / \ln \left(\frac{P_1}{P_2} \frac{h_2^2}{h_1^2} \right) \tag{8}$$

(8)式是圆板试样在周边简支情况下得到的蠕变应力指数 n 的计算公式, 与圆板试样在周边夹支情况下得到的蠕变应力指数 n 的计算公式(6)式完全相同. 从(1)和(7)式可知, 圆板在周边简支和周边夹支两种情况下试样中心挠度率计算公式存在差异, 但材料的蠕变应力指数 n 的计算公式是相同的, 这表明不论圆板试样被夹支或被简支, 都可以通过(6)或(8)式得到材料的蠕变应力指数 n 值. 对于相同厚度的试样, (8)式还可以简化为

$$n = \ln \left(\frac{\dot{\delta}_{c1}^s}{\dot{\delta}_{c2}^s} \right) / \ln \left(\frac{P_1}{P_2} \right) \tag{9}$$

(6)或(8)式是基于薄板弯曲蠕变模型得到的, 尽管 MSP 蠕变试验中试样的受力状态与薄板弯曲蠕变模型很相似, 而模型是建立在小变形假设和集中

载荷基础上, 将材料的蠕变应力指数 n 的计算公式应用于 MSP 蠕变试验还需要加以验证.

2 理论公式的数值模拟验证

2.1 MSP 蠕变试验的有限元模型

采用有限元分析软件 MARC 对 MSP 蠕变试验进行数值模拟研究, 通过比较数值模拟输入参数 n 值与基于数值模拟分析结果试样中心挠度率和外载荷评价材料的 n 值, 两者基本一致来验证理论公式的正确性.

江莞等^[16]给出了高温 MSP 蠕变试验装置示意图. 装置由加载系统、上下模具、升温系统和传感系统组成. 由于模具、试样以及载荷的轴对称性, 计算模型采用轴对称模型, 载荷、边界条件以及网格划分模型见图 1. 作者曾采用该计算模型得到了含 Cr9% 的钨合金钢在外载为 478N 时的试样中心挠度随时间的变化曲线, 与实验得到的曲线基本一致, 验证了 MSP 蠕变试验有限元分析模型的有效性^[19].

有限元分析所选用试样材料为: 12Cr1MoV 钢和含 Cr9% 的钨合金钢, 材料的各性能参数分别是在温度为 580 和 650℃ 得到的, 恒定外载荷分别为: 443、478、509 和 552N. 12Cr1MoV 钢在温度为 580℃ 时的弹性模量 $E = 171\text{GPa}$, 泊松比 $\mu = 0.31$, 稳定蠕变阶段的蠕变性能参数满足 Norton 方程 $\dot{\epsilon} = 8.714e - 17\sigma^{5.61}$. 含 Cr9% 的钨合金钢在 650℃ 时的弹性模量 $E = 162\text{GPa}$, 泊松比 $\mu = 0.3$, 稳定蠕变阶段的蠕变性能参数满足 Norton 方程 $\dot{\epsilon} = 2.45e - 35\sigma^{13.5}$. MSP 蠕变试验有限元分析模型包含 2946 个节点和 5494 个轴对称三角形单元.

2.2 数值模拟结果与讨论

通过有限元分析得到不同载荷水平下试样中心的最小挠度率, 利用试样中心的挠度率与外载荷对材料的蠕变性能进行评价. 图 2 为 12Cr1MoV 钢和含 Cr9% 的钨合金钢在外载为 443、478、509、552N 时不同载荷水平下进行有限元分析得到的载荷和最小挠度率之间的双对数关系图, 采用 Origin7.5 对数据进行线性回归, 分别得到 12Cr1MoV 钢和含 Cr9% 的钨合金钢的蠕变应力指数为 5.7 和 13.86.

表 1 给出了通过线性回归得到的蠕变参数与输入的参数, 比较发现 n 值相差非常小, 12Cr1MoV 钢和含 Cr9% 的钨合金钢分别相差 1.6% 和 2.7%. 结果表明: 在 MSP 蠕变试验中利用试样中心的挠度率同载荷对材料的应力指数 n 进行评价能够获得较好的精度, 从数值模拟的角度验证了材料蠕变应力指数理论公式的有效性.

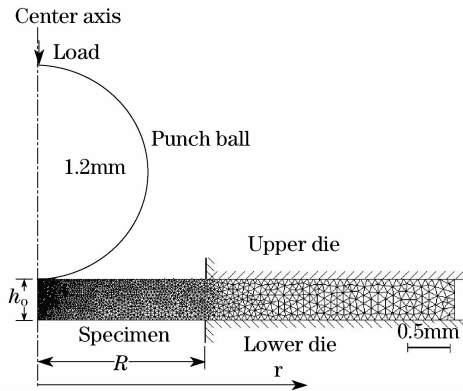


图 1 MSP 蠕变试验有限元模型
Fig. 1 FEM model of MSP creep tests

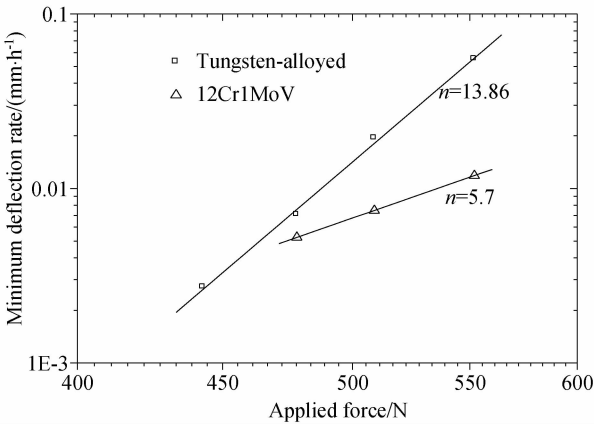


图 2 载荷与最小挠度率的双对数关系图
Fig. 2 Curves of minimum deflection rate to applied force

表 1 通过线性回归得到的参数与输入的参数比较
Table 1 Creep parameters of imported and obtained after linear regression

Materials	Input (n)	Gained (n)	Error
12Cr1MoV	5.61	5.70	1.6%
Tungsten-alloyed	13.50	13.86	2.7%

3 理论公式的实验验证

进行 SUS304 不锈钢的 MSP 蠕变试验, 从试验的角度验证材料蠕变应力指数的理论公式. 试样制作成薄圆片, 其尺寸为 $\phi 10\text{mm} \times 0.5\text{mm}$. 试验的恒定温度为 600℃, 在三种不同载荷水平 (250、300、350N) 下进行 MSP 蠕变试验, 得到试样中心挠度的时间历程曲线如图 3 所示.

从图 3 得到 SUS304 不锈钢材料在 250、300 和 350N 载荷条件下试样中心最小挠度率为 0.006、0.025 和 0.09mm/h, 代入式 (9) 得到 SUS304 材料 600℃ 下的蠕变应力指数: $n = 8.058$. 文献[20]利用单轴拉伸蠕变试验得到同样材料的蠕变应力指数 $n = 8.297$, MSP 蠕变试验的结果较单轴拉伸蠕变实验的 n 值略小, 两者相差仅为 2.9%. 结果表明: 采用 MSP

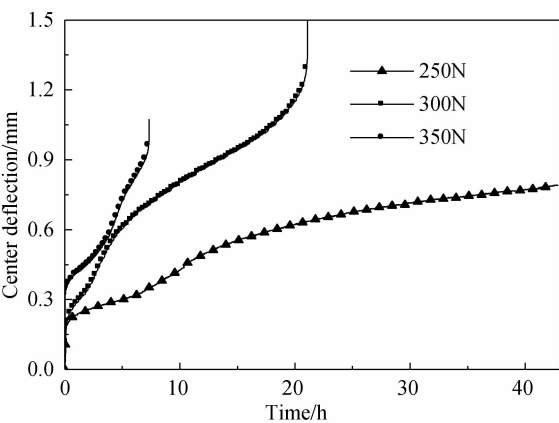


图 3 不同载荷水平试样中心挠度的时间历程曲线
Fig. 3 Center deflection plots as a function of time under different load levels

蠕变试验评价材料的重要蠕变参数-蠕变应力指数能够获得很好的精度,并且从实验的角度再次验证了(9)式的有效性.

4 多孔 Si₃N₄ 陶瓷材料的蠕变性能评价

4.1 试验方案与试样制作

多孔 Si₃N₄ 陶瓷组分配比为: Si₃N₄85%、ZrP₂O₇15%,其孔隙率为 21.4%,图 4 为试样表面的扫描电子显微镜照片.材料制备工艺为:使用 ϕ 10mm 的石墨模具,常压且烧结温度 1000℃,烧结过程采用氮气(N₂)气氛保护.材料制备完成后,接下来加工试样.先对圆柱块材料进行切割加工,得到 ϕ 10mm \times 0.55mm 的圆片,再精磨圆片的上、下表面接近试样尺寸,最后对圆片表面进行抛光,使其厚度方向上的偏差精确到 0.01mm.

试验的恒定温度为 1000℃,在该温度条件下得到试样的极限载荷为 27.5N,选取两种不同载荷水平(15、20N)下进行 MSP 蠕变试验,得到试样中心挠度的时间历程曲线,利用获得的理论公式(9)评价多孔

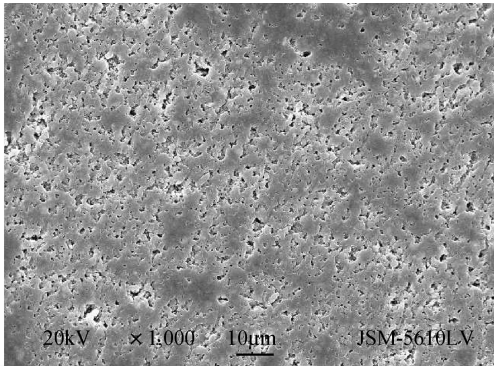


图 4 多孔 Si₃N₄ 陶瓷 SEM 图片
Fig. 4 SEM image of porous Si₃N₄ sample

Si₃N₄ 陶瓷的蠕变应力指数 n 值,并对 MSP 蠕变试验的整个变形过程进行分析.

4.2 试样的宏观变形分析

多孔 Si₃N₄ 陶瓷 1 号和 2 号试样分别在载荷水平 15 和 20N 下进行 MSP 蠕变试验.图 5 反映的是试验结束后多孔 Si₃N₄ 陶瓷 1 号试样变形实物正反两面的照片,从照片可以看出,试样与下模接触部分变形很小,基本与试验前状态一致;试样与球形压头接触部分变形量较大,该区域发现明显裂纹,但试样中心挠度率并没有显著提高,也就是说多孔 Si₃N₄ 陶瓷带裂纹工作时还具有较高的强度,而且所发生的变形形式也说明该材料在高温条件下具有较好的延展性.

为了考察该材料的断裂形式,2 号试样通过增加载荷至 30N 导致断裂.图 6 给出了多孔 Si₃N₄ 陶瓷 2 号试样变形实物图,发现试样的断面并非出现在试样与压头接触区域,而是发生在接触与支撑边缘之间,表明试样断裂主要因弯曲所致,而非剪切破坏.多孔 Si₃N₄ 陶瓷试样变形实物图结果表明:多孔 Si₃N₄ 陶瓷在温度为 1000℃ 条件下具有较好的延展性,试样的断面发生在接触与支撑边缘之间,表明试样断裂主要因弯曲所致而非剪切破坏.

4.3 多孔 Si₃N₄ 陶瓷蠕变应力指数的评价

多孔 Si₃N₄ 陶瓷 1 号和 2 号试样分别在载荷水平 15 和 20N 下进行 MSP 蠕变试验,加载速率为 0.1N/s.图 7 给出了多孔 Si₃N₄ 陶瓷在载荷为 15 和 20N 所得到的试样中心挠度的时间历程曲线,从图中可以看出多孔 Si₃N₄ 陶瓷有较大的蠕变变形.

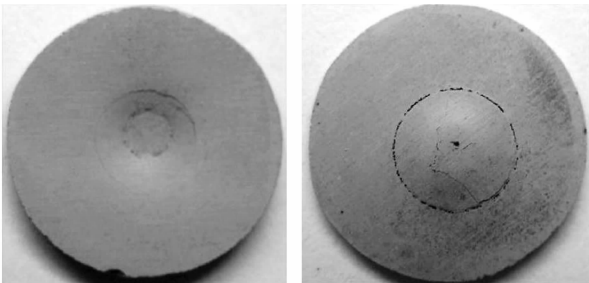


图 5 多孔 Si₃N₄ 陶瓷 1 号试样变形实物图
Fig. 5 Photographs of porous Si₃N₄ specimen deformation(tag 1)

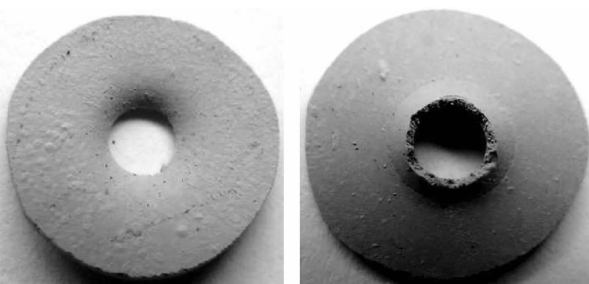


图 6 多孔 Si₃N₄ 陶瓷 2 号试样变形实物图
Fig. 6 Photographs of porous Si₃N₄ specimen deformation(tag 2)

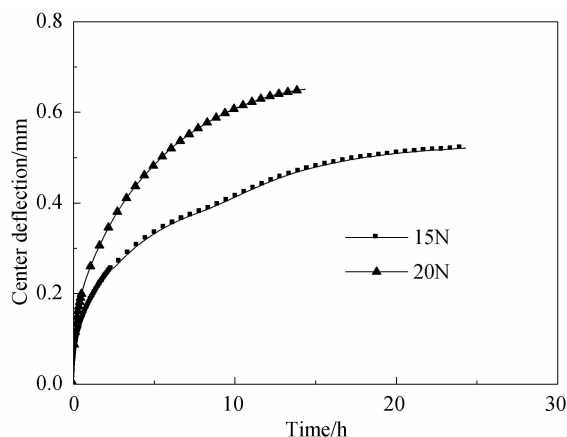


图7 不同载荷水平试样中心挠度的时间历程曲线

Fig. 7 Center deflection plots as a function of time for different load level

因试验中断导致实验曲线不完整,仅包含蠕变变形的第一、第二阶段(部分),没有破坏阶段的实验曲线.但通过这样的曲线仍然可以获得恒速阶段的试样中心挠度率,进而得到多孔 Si_3N_4 陶瓷的蠕变应力指数 n .与SUS304金属试样蠕变曲线不同的是,多孔 Si_3N_4 陶瓷的蠕变曲线第一、第二阶段分界并不是很明显,或者说没有明显的拐点.

将多孔 Si_3N_4 陶瓷在载荷15和20N条件下试样中心最小挠度率为0.002和0.0089mm/h,代入(9)式得到多孔 Si_3N_4 陶瓷材料1000℃下的应力指数: $n=5.19$.

5 结论

基于薄板弯曲蠕变模型得到了评价材料蠕变应力指数 n 值的理论公式,并通过数值模拟和实验方法对该理论公式的有效性进行了验证.通过对多孔 Si_3N_4 陶瓷蠕变性能的初步研究,发现多孔 Si_3N_4 陶瓷在温度为1000℃条件下不仅具有较好的延展性,而且在恒载作用下有较大的蠕变变形.应用材料蠕变应力指数的理论公式,得到了多孔 Si_3N_4 陶瓷材料的应力指数,结果表明MSP蠕变试验方法在非金属材料

材料高温蠕变性能的评价上具有广阔的应用前景.

参考文献:

- [1] Baik J M, Kameda J, Buck O. *Scripta Metallurgica*, 1983, **17** (12): 1443-1447.
- [2] Li J F, Kawasaki A, Watanabe R. *J. Jpn. Inst. Metals*, 1992, **56**: 1450-1456.
- [3] Dobes F, Milicka K. *Materials Science and Engineering A*, 2002, **336**(1/2): 245-248.
- [4] Dobes F, Milicka K. *Journal of Testing and Evaluation*, 2001, **29** (1): 31-35.
- [5] Ule B, Sustar T. *Materials at High Temperatures*, 2001, **18** (3): 163-170.
- [6] Dobes F, Milicka K. *Materials Characterization*, 2008, **59** (7): 961-964.
- [7] Ule B, Sustar T, Dobes F, et al. *Nuclear Engineering and Design*, 1999, **192** (1): 1-11.
- [8] Saucedo-Munoz M L, Komazaki S, Takahashi T, et al. *Journal of Materials Research*, 2002, **17** (8): 1945-1953.
- [9] Komazaki S, Hashida T, Shoji T, et al. *Journal of Testing and Evaluation*, 2000, **28** (4): 249-256.
- [10] Hyde T H, Sun W, Becker A A. *Int. J. Mech. Sci.*, 1996, **38** (10): 1089-1102.
- [11] Dobes F, Milicka K, Kratochvil P. *Intermetallics*, 2004, **12** (12): 1397-1401.
- [12] Yang Z, Wang Z W. *International Journal of Pressure and Piping*, 2003, **80** (6): 397-404.
- [13] 陈玉新, 凌祥, 涂善东. *实验力学*, 2005, **20** (2): 219-225.
- [14] 熊智, 彭青松, 白光照, 等(XIONG Zhi, et al). *无机材料学报* (Journal of Inorganic Materials), 2005, **20** (6): 1379-1384.
- [15] 江莞, 熊智, 王连军. *稀有金属材料与工程*, 2007, **36** (2): 343-346.
- [16] 江莞, 王刚, 吴历斌, 等(JIANG Wan, et al). *无机材料学报* (Journal of Inorganic Materials), 2002, **17** (4): 827-832.
- [17] 江莞, 白光照, 王刚, 等(JIANG Wan, et al). *无机材料学报* (Journal of Inorganic Materials), 2002, **17** (5): 1034-1040.
- [18] 穆霞英. *蠕变力学*. 西安:西安交通大学出版社, 1990:88-99.
- [19] Zhai P C, Hashida T, Komazaki S, et al. *Journal of Testing and Evaluation*, 2004, **32** (4): 298-303.
- [20] 尤英俊. 小冲孔试样高温蠕变损伤的有限元模拟. 南京:南京工业大学硕士论文, 2004.