中 国 科 学 (A 辑)
第 24 卷 第 9 期 SCIENCE IN CHINA (Series A) 1994 年 9 月

纳米级解理微裂纹的形核和扩展*

高克玮 陈奇志 褚武扬 肖纪美
(北京科技大学材料物理系,北京 100083)

摘 要

对 TiAl 金属间化合物薄膜试样在透射电子显微镜下进行了原位拉伸观察. 结果表明,当外加应力强度因子 $K_I \geq K_{Ie} = 1.4\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 时,裂尖能发射出大量位错,并能形成无位错区(DFZ),有时DFZ 是一个包围裂尖的闭合区. 测量表明,DFZ 是一个应变很高的弹性区,因此其中的应力很高,有可能等于原子键合力 σ_{th}. 当 $K_I \geq K_{Ii} = 2.4\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 后,尖缺口顶端及前方DFZ 中某一区域的应力都等于 σ_{th},从而可导致纳米级微裂纹在 DFZ 中不连续形核. 计算指出,稳态微裂纹的临界尺寸为 $a_c = 4.2\text{nm}$,它一旦形核将不会钝化成孔洞,而是连续扩展并和主裂纹相连. 解理微裂纹也能从尖缺口顶端处形核. 不论是连续形核还是不连续形核的解理微裂纹,在恒位移条件下通过塑性区中位错的增殖和运动能扩展一段距离,但很快就止裂. 必须使 $K_I \geq K_{Ip}$ 才能使解理裂纹继续扩展,故 $K_{Ie} < K_{Ii} < K_{Ip} < K_c$.

关键词 无位错区、解理微裂纹、脆性材料、透射电子显微镜

用预裂纹试样来研究脆性断裂时往往不注意微裂纹的形核. 我们对 Ti_3Al 和 TiAl 金属间化合物,用 WOL 恒位移试样进行了表面金相跟踪观察,结果表明,只有当预裂纹前端的局部塑性变形发展到临界程度,解理微裂纹才沿滑移带不连续形核[1,2]. 而且解理微裂纹形核乃至和原裂纹连接后也并不意味着试样立即脆断,因为随裂纹扩展,阻力愈来愈大,需要不断增大 K_I 才能使解理裂纹不断形核、扩展[1,2].

在透射电子显微镜(TEM)中原位观察时,所用的是带有预裂纹的薄膜试样,大多数研究者均把注意力集中在裂尖发射位错以及裂纹解理扩展的竞争过程. 争论的焦点主要在于:在裂纹解理扩展前会不会发射位错[3],发出的位错数目是很多还是很少[4],发出的位错能否运动离开裂尖[5]. 但是他们均认为,原裂纹连续地解理扩展,且裂纹一旦扩展(或新的微裂纹一旦从裂纹顶端形核)就将导致解理断裂[3-6]. 到目前为止没有人注意到解理裂纹有可能不连续形核,也许是因为不连续形核的解理裂纹很小(纳米级)或很接近裂尖或很快就和主裂纹相连,从而误认为主裂纹连续地解理扩展.

很多研究工作指出,裂尖发射位错达到平衡后,必然在裂尖前方存在一个无位错区

1993-10-26 收稿,1994-01-24 收修改稿.
* 国家自然科学基金资助项目.

(DFZ)[7—9]. 很显然,这个DFZ应当对解理微裂纹的形核起作用,但到目前为止,尚未见这方面的研究报道. 我们对奥氏体不锈钢的工作指出[10],即使是韧性材料,当裂尖发射大量位错并形成DFZ后仍有可能不明显钝化. 根据包含DFZ和塑性区选区电子衍射谱中衍射斑点的分裂可估算DFZ中的弹性应变,其值高达约0.1. 由此可知,裂尖DFZ是一个应变很高的弹性区,可利用断裂力学来估算裂尖前方DFZ中的应力. 结果表明,当外加 K_I 还远低于 K_{Ic} 时,在DFZ中离尖缺口某一范围内的应力均可等于原子键合力,从而导致纳米级微裂纹在DFZ中不连接形核或在尖缺口顶端形核. 对韧性材料,这个纳米级微裂纹一旦形核后,在恒位移条件下就钝化成孔洞(微裂纹在DFZ中形核)或缺口(微裂纹从原缺口顶端形核),它们互相连接就导致韧断[10]. 对脆性材料,情况如何呢? 裂尖是否也能发射大量位错并形成DFZ? 这个DFZ是否也是一个高应变的弹性区? 若如此,则当 K_I 达到 K_{Ic} 之前裂尖及其附近的DFZ中的应力就可等于原子键合力,从而能使纳米级解理微裂纹连续从尖缺口顶端形核或在DFZ中不连续形核. 很显然,对脆性材料,在DFZ中不连续形核的微裂纹不可能钝化成孔洞,而将会稳态扩展并和原裂纹相连. 本文将用TiAl金属间化合物来研究这些问题.

TiAl块状试样的金相跟踪表明,局部塑性变形发生在微裂纹形核之前[2]. 因此可以想到,裂尖发射位错的临界应力强度因子 K_{Ie} 应当小于纳米级微裂纹在DFZ中形核的应力强度因子 K_{Ii}. 金相观察发现裂纹能稳态的不断扩展,故可以推想在TEM中原位拉伸时,微裂纹形核后将有一个稳态扩展过程,即微裂纹长大的 $K_{Ip}>K_{Ii}$. 当外加 K_I 等于薄膜试样临界应力强度因子 K_c 时,薄膜试样就将脆断. 从而就会存在下述关系: $K_{Ie}<K_{Ii}<K_{Ip}<K_c$. 我们将用实验来验证这个关系.

1 实验过程与结果

1.1 实验过程

本文所用的材料是金属间化合物TiAl, 其成分如下(atm%): Al=49.9, Fe=0.16, O=0.12, N=0.05, 其余为Ti. 块状样品封在真空度为 1×10^{-4}Pa 的石英管内, 1250 ℃固熔1.5h后空冷,再经900 ℃, 2h均匀化处理. 组织为等轴的单相 γ. 从块状样品上截取约0.2mm的薄片,化学减薄至30nm(减薄液成分为等体积的过氧化氢和氢氟酸). 再经双喷减薄至穿孔(双喷液成分为350ml甲醇、150ml丁醇,以及50ml的高氯酸,电压为5V),最后制成薄膜拉伸试样. 在JEM100-cx型透射电子显微镜下进行原位拉伸.

1.2 无位错区及其本质

双喷试样孔边存在很多小裂纹,选择和拉伸载荷垂直的裂纹进行原位观察. 对所有试样的观察均发现在微裂纹形核或解理裂纹扩展前,裂尖将发射大量位错,而且这些位错能很快离开裂尖. 在位错发射过程中不可能发现无位错区. 只有当位错发射达到平衡时,才能反塞积在裂尖前方并形成无位错区,如图1所示. 在图1(a)中,无位错区(DFZ)的宽度 $w=85$nm, 反塞积位错群中的位错数 $N>80$. 在图1 (b)中, $w=1000$nm, $N\approx200$. 应当指出,对脆性材料,要获得平衡状态并保持一定时间(以便拍照),往往比较困难,故必须反复实验才能发现理想的DFZ.

有时从裂尖可同时发射出几组位错,这时就有可能形成一个闭合的无位错区,如图2(a)上ABCD所围的区域. 在很多情况下,一旦DFZ形成后,如继续加载,则平衡被破坏,裂尖

又能发出新的位错，这时 DFZ 的形状和尺寸就会改变，如图 2(b) 所示．比较图 2(b) 和图 2(a) 可知，加载时 DFZ 的宽度从 $w_1=100$nm 增大至 $w_2=125$nm.

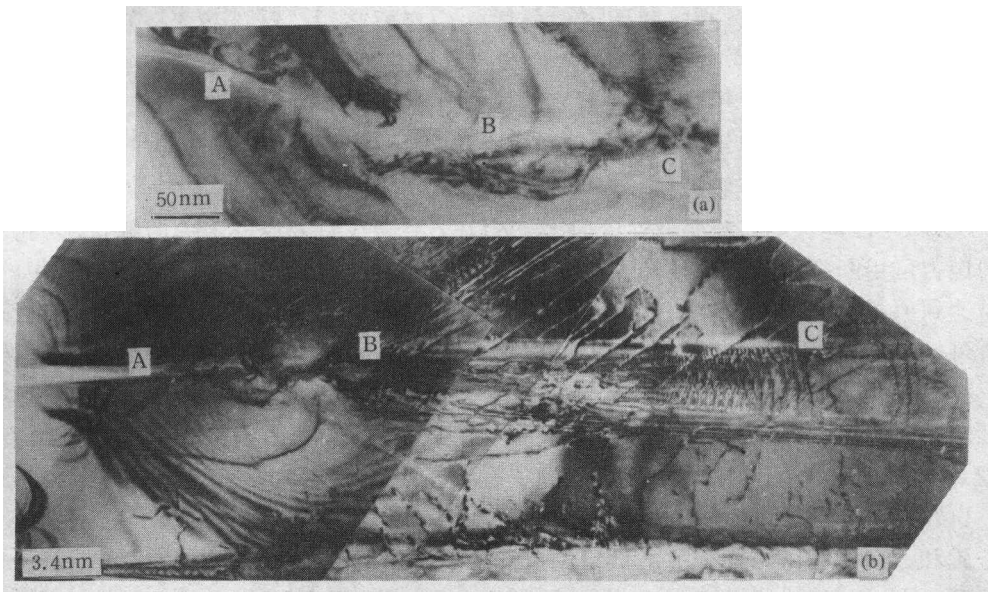

图 1　裂纹前端无位错区的形成

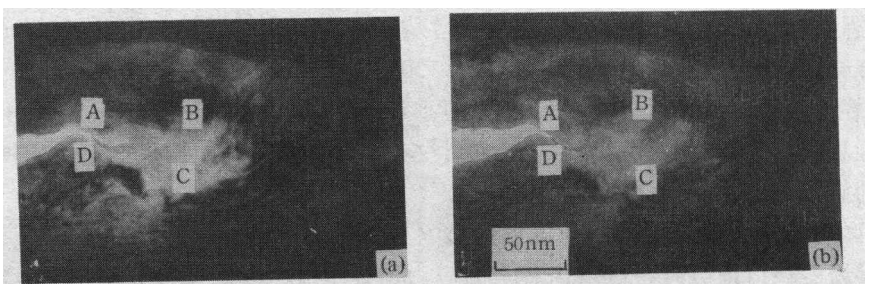

图 2　裂纹前端闭合的无位错区的形成及长大

DFZ 和反塞积塑性区的选区电子衍射谱如图 3 所示．图 3 表明，B, C 两个衍射点沿径向伸长，而高指数的 A, D 两个斑点则发生了分裂，沿径向出现了伴点．这表明，在 DFZ 中存在有弹性应变[11]．因为 DFZ 和塑性区中弹性应变相差很大，而其边界很明显（见图 1），故弹性应变在边界区陡直下降，且由于边界面积小，衍射线强度弱，故有可能使连续伸长的斑点沿径向发生分裂．设 r_1 和 r_2 分别表示强衍射斑点 $g=[111]$ 和其伴点距中心透射斑点的距离，d_1 和 d_2 是对应斑点的面间距，则 DFZ 和塑性区中弹性应变的差值为

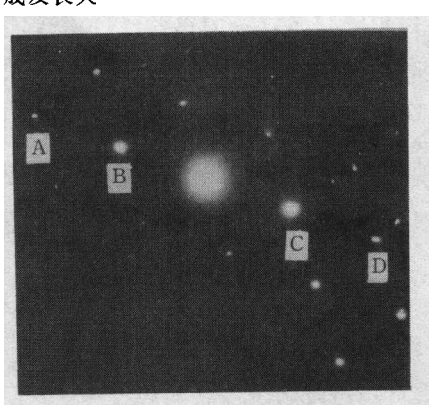

图 3　DFZ 和反塞积塑性区的选区电子衍射谱

$$\Delta\varepsilon=\frac{|d_1-d_2|}{d_1}=\frac{r_2-r_1}{r_2}=0.02.$$

因为DFZ中的弹性应变远比塑性区中的弹性应变要高，故$\Delta\varepsilon$就等于DFZ中的平均弹性应变．因为由此算出的应变远高于正常的弹性应变，故DFZ是一个高畸变的弹性区．这和韧性材料的结果相类似[10]．这表明，加载裂尖存在一个很小的高畸变弹性区(DFZ)，如图2(a) ABCD所示，在其外围是由反塞积位错群构成的塑性区，再外边则是正常的弹性区．

1.3 解理微裂纹的不连续形核

因为DFZ是一个高畸变弹性区，且形成DFZ后裂纹将变成一个尖的缺口，因此，缺口前方的应力可用断裂力学进行计算．很显然，当缺口很尖且外加K_I足够高时，DFZ中的应力很容易达到原子键合力σ_{th}．由此可知，当$K_I>K_{Ic}$，裂尖发射位错并形成DFZ后，如继续增大K_I就有可能使DFZ中某一范围内的应力均等于σ_{th}，从而可导致纳米级微裂纹在该区域内不连续形核，如图4(a)所示．在DFZ中b位置已形成一个很细的微裂纹．保持位移恒定，通过塑性区中位错的不断增殖和运动，DFZ中的微裂纹b张开，如图4(b)所示．接着微裂纹b在DFZ中向两边长大(图4(c))，最后可以和主裂纹连接．

当外加K_I较大时，裂尖DFZ中某一区域中各点的应力均等于原子键合力，因而裂纹形核的位置和方向将和微结构有关．TiAl中可能的解理面为{100}和{110}[13]．早期认为{111}也是解理面[14]．DFZ中微裂纹的解理面可能和主裂纹不同，因而微裂纹往往和主裂纹成一角度，如图5所示．在加载过程中DFZ中形成一个和主裂纹成50°的不连续微裂纹b，如图5(b)所示．保持恒位移，通过塑性区中位错的增殖和运动，b裂纹开始长大，同时形成一个很小的新裂纹c，如图5(c)．接着从主裂纹顶端沿50°方向形成一个微裂纹a，与此同时，b和c裂纹长大，在c裂纹前方又形成一个不连续的小裂纹d(图5(d))．再进一步，a和b互相连接，c和d互相连接，如图5(e)所示．由于主裂纹和微裂纹a,b互相构成一定的角度，它们应当处于不同的解理面．

1.4 微裂纹从主裂纹尖缺口处连续形核

因为尖缺口前方某一区域内各点的应力均等于σ_{th}，因此微裂纹可以在DFZ中不连续形核(这时微裂纹所在解理面往往和主裂纹解理面不同，见图4, 5)．也可择优从原裂纹(尖缺口)顶端形核，这时微裂纹的解理面就和主裂纹相同，如图6所示．图6(a)是图4(c)继续加载的结果，这时原来的裂纹已和主裂纹连接．保持恒位移，通过塑性区中位错的不断增殖和运动，裂纹顶端从B连续扩展到C，如图6(b)所示，接着从C扩展到D(图6(c))，再扩展到E(图6

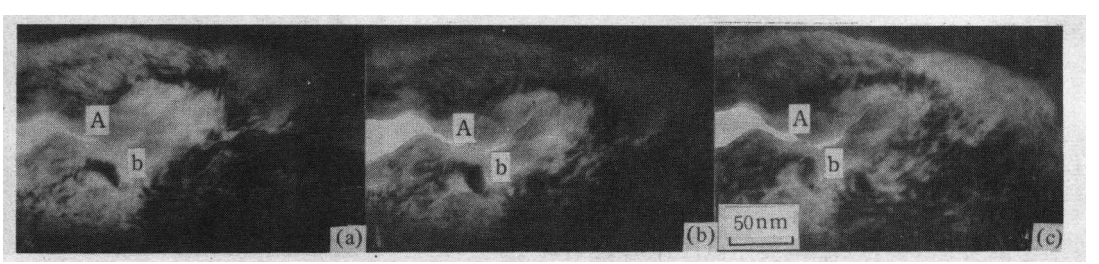

图4 微裂纹在DFZ中不连续形核

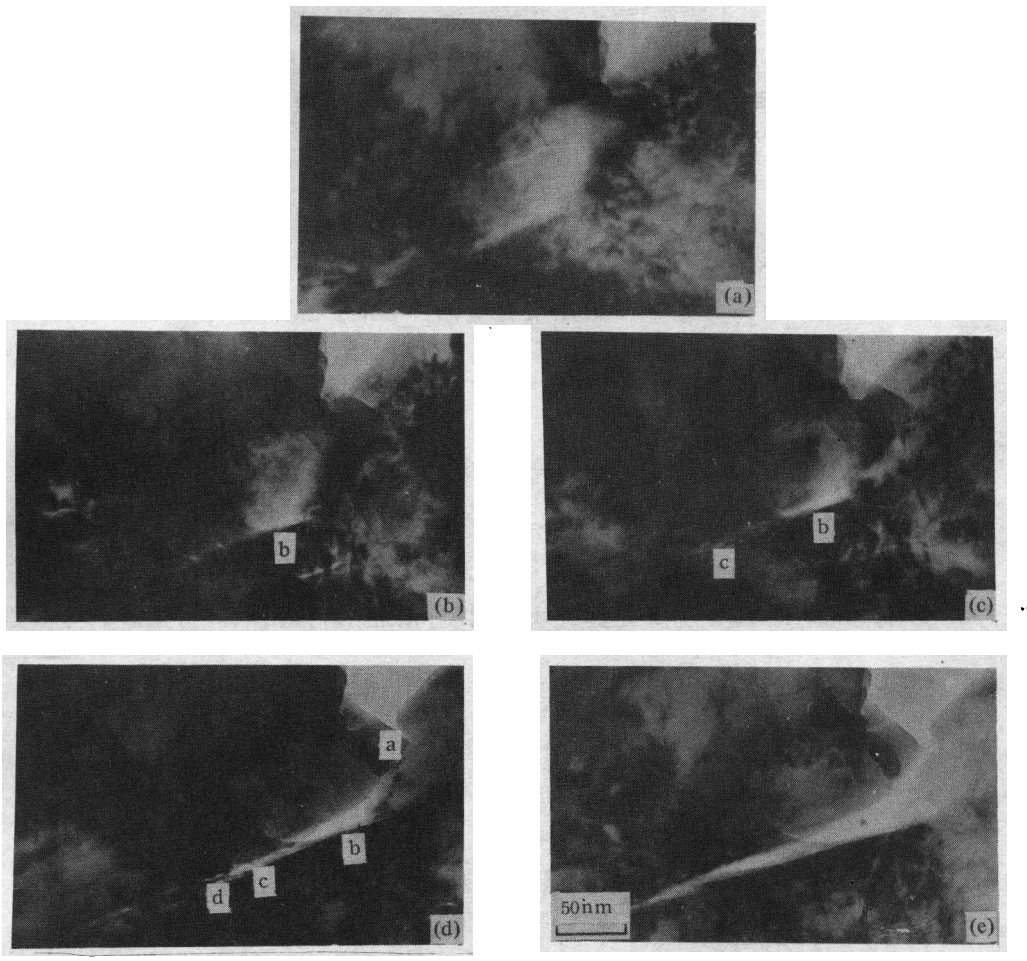

图 5　微裂纹沿不同解理面形核、扩展

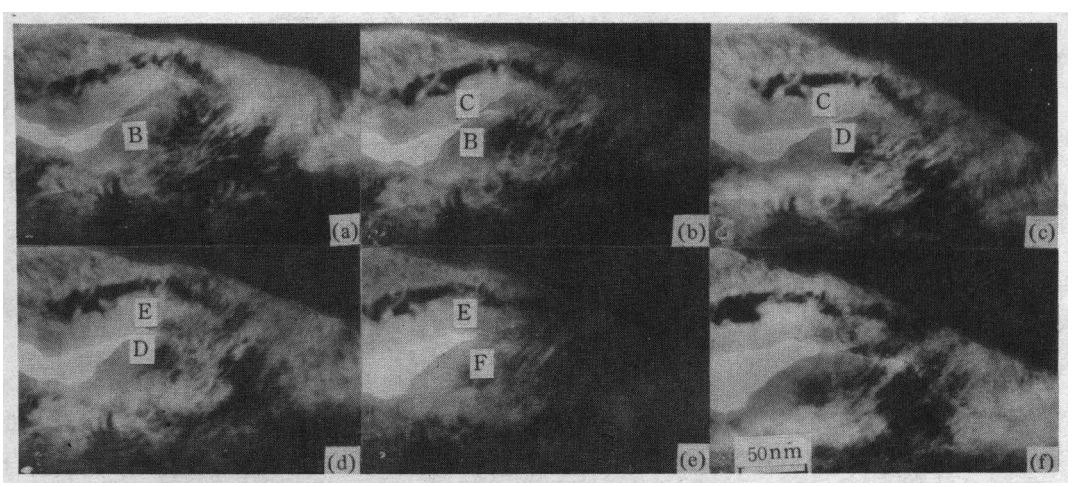

图 6　微裂纹从主裂纹顶端连续形核

(d)) 和 F(图 6(e)). 继续增大载荷,裂尖又开始发射大量的位错,与此同时裂尖明显钝化,裂尖前方 DFZ 也发生了根本的变化. 一旦裂尖明显钝化,保持恒位移,微裂纹就不从已钝化的缺口顶端形核. 这时必须继续加载,才可能从钝缺口顶端形成一个新的尖裂纹,如图 6(f)所示. 一旦尖裂纹产生,保持恒位移就可使它连续向前扩展.

2 结果讨论

2.1 位错发射和微裂纹形核条件

薄膜试样中的裂纹实际上绝大多数是混合型的,偶尔亦能遇到 I 型. 而 Ohr 的计算表明[7], 对所有金属,I 型裂纹发射位错远比 II 型和 III 型困难,故我们仅对 I 型裂纹进行讨论. I 型裂纹发射位错的临界应力强度因子 K_{Ie} 为

$$K_{Ie}=\frac{2}{\sin\varphi\cos\frac{\varphi}{2}}\left\{\frac{\mu b}{(1-\nu)\sqrt{8\pi r_c}}+\sqrt{2\pi r_c}\left[\sigma_j+\frac{\Gamma e^{3/2}\sin\varphi}{\pi r_c\left(1+\frac{e^3}{4}\right)}\right]\right\}, \tag{1}$$

其中 φ 是发射角,当 φ 约为 70° 时,K_{Ie} 有极小值,故计算时取 $\varphi=70°$;r_c 是位错心半径;σ_f 为摩擦应力,一般取材料的屈服应力;Γ 是真实表面能,目前无法精确计算,可用多种方法进行估算,例如[13]

$$\Gamma=\frac{a_0E}{108(1-\nu)}=1.07\mathrm{J/m^2},$$

其中 $a_0=4.01$ 是晶格常数,$E=1.73\times10^5$ MPa, $\nu=0.29$[16]. 位错中心半径 $r_c=d/e$[17],其中 d 是面间距,$e=2.71$,$\sigma_f=\sigma_{ys}=200$MPa[18]. 把这些数据代入(1)式可获得最小的 $K_{Ie}=1.43\mathrm{MPa\cdot m^{1/2}}$.

下面来估算微裂纹形核的有效应力强度因子 K_{Ii}. 在外加应力强度因子 K_{Ii} 作用下,裂尖发出的反塞积位错对裂尖起屏蔽作用,屏蔽应力强度因子为 K_{Id},故裂纹有效应力强度因子 $K_{If}^*=K_{Ia}-K_{Id}$,可通过整个组态的应力平衡条件来获得,即[19]

$$K_{If}^*=K_a-K_{Id}=\frac{3K_{Id}}{2\pi}\sqrt{\frac{w}{R}}\left(\ln\frac{4R}{w}+\frac{4}{3}\right), \tag{2}$$

其中 w 是 DFZ 宽度,R 是塑性区宽度. 对 I 型裂纹,裂尖发射位错后本身将钝化,从而产生一个钝化的应力强度因子 K_{Ib},故考虑位错屏蔽和裂尖钝化后,有效应力强度因子 K_{If} 为

$$K_{If}=K_{Ia}-K_{Id}-K_{Ib}. \tag{3}$$

对 II 型和 III 型,$K_{IIb}=K_{IIIb}=0$. 实际上 K_{Ib} 的影响使尖裂纹变成半径为 ρ 的缺口. 考虑位错屏蔽后有效应力强度因子为 $K_{If}^*=K_{Ia}=K_{Id}$,在它作用下,缺口前方 DFZ 中 r 处的应力为[12]

$$\sigma_{yy}=\frac{K_{Ij}^*}{\sqrt{2\pi r}}\left(1+\frac{\rho}{2r}\right)=\frac{3K_{Ia}}{2\pi\sqrt{2\pi r}}\left(1+\frac{\rho}{2r}\right)\sqrt{\frac{w}{R}}\left(\ln\frac{4R}{w}+\frac{4}{3}\right), \tag{4}$$

它在缺口顶端(坐标为 $r=\rho/2$)有极大值. 由图 1(a) 可知,$\rho=1.5$nm,DFZ 宽 $w=85$nm, $R/w=6$,如认为微裂纹在 DFZ 中心形核,则 $r_0=w/2=42.5$nm. 把这些数据代入(4)式,可知当外加应力强度因子 $K_{Ia}=5.0\mathrm{MPa\cdot m^{1/2}}$ 时,在 $r\leqslant r_0$ 的区域内各点的最大正应力 σ_{yy} 均等于原子键合力 $\sigma_{th}=0.043E$ (文献[13], p.29). 由图 4(a), 实际裂纹形核位置 $r_0=15$nm,$\rho=1.5$nm, $w=115$nm,

$R/w=6$（在图上仅给出塑性区的一部分），代入(4)式可求出，微裂纹在 $r\leqslant 15$nm 处形核，即 σ_{yy} ($r\leqslant 15$nm)$=\sigma_{th}$，所对应的外加应力强度因子为 $K_{Ia}=2.4\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$. 这个 K_{Ia} 就是使微裂纹在 DFZ 中开始形核的外加应力强度因子 K_{I_1}，即对 TiAl，$K_{I_1}=2.4\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$. 它比裂尖发射错的应力强度因子 $K_{Ie}=1.4\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 要大.

2.2 临界微裂纹尺寸

在 DFZ 中一旦形成一个长为 a 的不连续微裂纹后，单位厚试样所引起的能量变化 U 由以下几项构成. 裂纹形核后产生的表面能 $2\Gamma a$；在外加应力 σ 作用下，微裂纹张开位移为 δ，从而系统能量变化 $-a\sigma\delta/2$[20]；在形成微裂纹过程中无位错区中的应力集中 σ_{yy} 所引起的弹性能变化 $-\pi a^2\sigma^2_{yy}/4E$[20]（平面应力条件）. 由此可得

$$U=2\Gamma a-\frac{a\sigma\delta}{2}-\frac{\pi a^2\sigma^2_{yy}}{4E}. \tag{5}$$

由 $\mathrm{d}U/\mathrm{d}a=0$，可求出临界微裂纹尺寸 a_c，即

$$a_c=\frac{2E\left(2\Gamma-\dfrac{\sigma\delta}{2}\right)}{\pi\sigma^2_{yy}}. \tag{6}$$

微裂纹形核时该处 σ_{yy} 就等于 σ_{th}，即 $\sigma_{yy}=0.043E$. 对 TiAl 已算出 $\Gamma=1.07\text{J/m}_2$，由图 4(a) 可估算微裂纹的张开位移 $\delta=1$nm. 已求出裂纹形核的应力强度因子 $K_{I_1}=2.4\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$，由此可求出裂纹形核时的外加应力 $\sigma=K_{I_1}/\sqrt{\pi c}$ (c 是主裂纹长度). 计算表明，$\sigma\delta/2\ll 2\Gamma$. 由(6)式可算出临界裂纹尺寸 $a_c=4.3$nm. 由此可知，一旦微裂纹尺寸大于 4.3nm 后，它就成为稳定的解理裂纹核，否则它将闭合. 很显然，a_c 和原子键合力 σ_{th} 的选择有关，如令 $\sigma_{th}=0.1E$，则 $a_c\approx 1$nm. 由此可知，当在 TEM 中可察觉的纳米级微裂纹（其尺寸大于 5nm）一旦形核就将成为稳定的解理裂纹核.

2.3 解理微裂纹的稳态扩展

图 4 和 6 表明，解理微裂纹形核后，在位移恒定条件下有可能通过塑性区中位错增殖和运动而使微裂纹不断长大乃至和主裂纹相连. 但保持恒位移，裂纹只能扩展很短一段距离就将止裂（裂尖明显钝化或塑性区中位错停止增殖和运动）. 这时必须增大载荷（K_{Ia} 增大），才能使裂纹继续不连续和连续形核. 这表明，使解理微裂纹扩展的应力强度因子 $K_{Ip}>K_{I_1}$.

在线弹性条件下，裂尖张开位移 (COD)δ 和 K_I^2 成正比，例如 $K_I^2=\alpha E\sigma_{ys}\delta$[21]，故

$$\frac{K_I}{K_{I_1}}=\sqrt{\frac{\delta_p}{\delta_1}}. \tag{7}$$

图 4(a) 对应微裂纹形核，图 6(a) 是加载后

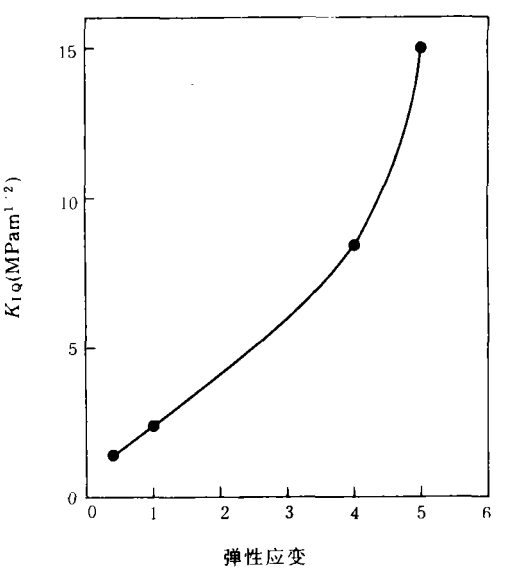

图 7　解理裂纹稳态扩展的阻力曲线

图4(a)裂纹扩展的结果．测出这两张图上原裂纹顶端的张开位移，可得 $\delta_{p(1)}/\delta_i=6$，故图6(a)对应的 $K_{Ip(1)}=2.45K_{Ii}$．图6(f)是图6(a)继续加载的结果，根据两者裂尖张开位移之比，可估算和图6(f)所对应的 $K_{Ip(2)}=1.5K_{Ip(1)}=8.45\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$．用厚试样所测出的断裂韧性 $K_{Ic}=15\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$[21]，它一般比薄试样的 K_c 要小．由此可知，$K_{Ie}<K_{Ii}<K_{Ip}<K_c$．对图4和图6这个试样，可以画出解理裂纹稳态扩展的阻力曲线，如图7所示．把它和块状试样的阻力曲线(文献[18]，图2)相比，可以看到两者极为类似．

3 结 论

(1) TiAl金属间化合物拉伸时裂尖能发射出大量位错，平衡时能形成无位错区，有时无位错区是一个包围裂尖的闭合区．

(2) 无位错区是一个应变很高的弹性区．当裂尖不明显钝化时无位错区中的应力有可能等于原子键合力．

(3) 解理微裂纹可以在无位错区中不连续形核，也可在原裂纹顶端连续形核．纳米尺寸的不连续解理微裂纹是稳定的，不会转化成孔洞．

(4) 解理微裂纹能稳态扩展．设裂尖发射位错，微裂纹形核，裂纹稳态扩展以及试样断裂所对应的临界应力强度因子分别为 K_{Ie}，K_{Ii}，K_{Ip}，和 K_c，则 $K_{Ie}<K_{Ii}<K_{Ip}<K_c$．

参 考 文 献

[1] Chu, W. Y., Thompson, A. W., *Metall. Trans. A*, 1992, **23**: 1299.
[2] 高克玮、王燕斌、褚武扬等，金属学报，1992, **28**: A321.
[3] Rice, J. R, Thomson, R., *Phil. Mag.*, 1974, **29**: 73.
[4] Argon. A. S., *Acta Metall.*, 1987, **35**: 185.
[5] Chiao, Y. H., Clark D. R., *Acta Metall.*, 1989, **37**: 203.
[6] Margh, P. G., Zielinski, W., Huang, H. *et al.*, *Acta Metall. Mater.*, 1992, **40**: 2883.
[7] Ohr, S. M., *Mater. Sci. Eng.*, 1985, **72**: 1.
[8] Pippan, R., *Acta Metall. Mater.*, 1991, **39**: 225.
[9] Lin, I. H., Thomson, R., *Acta Metall.*, 1986, **34**: 187.
[10] 陈奇志、褚武扬、肖纪美，中国科学，A辑，1994, **24** (1): 291.
[11] Hirsch., P., Howieetc., A., *Electron Microscopy of Thin Cystals*, Robert E, Krieger Pub. Comp., Huntington, New York, 1977. 364.
[12] Creager, M., Paris, P. C., *Int. J. Frac. Mech.*, 1967, **4**: 247.
[13] Cherepanov, G. P., *Mechanics of Brittle Fracture*, Mcctraw-Hill Int. Book Comp, New York, 1979, 100.
[14] Kawabata, T., Takeyono, Y., Kanai, T. *et al.*, *Acta Metall.*, 1988, **36**: 963.
[15] Kawabata, T., Izumi, O., *Scipta. Metall.*, 1987, **21**: 435.
[16] Schafrik, R. E., *Metall. Trans.*, 1977, **8A**: 1003.
[17] Hirth, J. P., *Theory of Dislocation*, 2nd ed., John Wiley and Sons Inc., New York, 1982; 230.
[18] Chu, W. Y., Thompson, A. W., *Scripta Met. Mater.*, 1977, **25**: 1991.
[19] Weertman, J., Lin, I. H., Thomson, R., *Acta Metall.*, 1983, **31**: 473.
[20] Cottrell., A. H., *Trans. AIME*, 1985, **212**: 192.
[21] 褚武扬，断裂力学基础，科学出版社，北京，1979.