

晶界裂纹成长的一种可能的机构和 蠕变断裂时的估计*

范 天 佑
(北京工业学院二系)

梁 振 亚
(北京大学物理系)

提 要

本文首先分析了 Hull 和 Rimmer 工作, 根据对有关实验资料的分析和我们自己的实验研究, 同时也吸取了 Hull 和 Rimmer 工作中合理部分, 提出一种新的蠕变断裂机构。由此导出蠕变断裂时间公式。理论计算与实测值的比较表明, 本文的结果较上述工作有所改进。

近十几年来, 由于生产和技术上的迫切要求, 产生了一门新的学科——断裂力学。它是固体力学与固体物理学之间的一门边缘学科; 在对断裂机理作深入探讨时, 和物理学的关系就愈发密切。继断裂力学之后, 断裂物理学也已出现。本文试图用物理学的方法结合力学的方法对蠕变断裂机理作一点探讨。

实验资料表明, 金属高温蠕变断裂为晶界断裂。一般认为断裂时间

$$t_r = t_r(\sigma_{ij}, T, f(s)),$$

即它取决于应力状态 σ_{ij} 、温度 T 和材料的组织结构 $f(s)$ 等因素的影响。

由于起作用的因素很多, t_r 的理论估计是很困难的。文献 [1] 和 [2] 将 Nabarro-Herring^[3,4] 的扩散塑性理论用于解决这一问题, 开始朝定量估计 t_r 的方向作了一些讨论, 特别是文献 [2] 的工作给人们许多启发, 但也存在不少明显的问题值得进一步探讨。例如:

1. 他们假定晶界空洞始终保持球形, 亦即空洞自形成后呈球对称地长大, 这是值得商榷的。虽然这一假定可以使计算简化, 但它缺乏充分的事实根据。同时, 他们的这一假定还同该文提出的另一基本假定——晶界扩散远远优于晶内扩散 (此假定有充分的实验根据)——相矛盾。因为文献 [2] 认为空洞长大是由于原子的扩散 (同时是空位的沉淀), 而这里扩散主要是晶界扩散 (也就是晶内扩散忽略不计), 这表明扩散是带有确定的方向性的, 因而空洞不可能呈球对称地长大。即使空洞开始为球形, 随后将变成扁平状, 更不能想像这些空洞直至它们相互联结导致金属断裂时仍然保持球形。文献 [5] 和 [6] 指出, 晶界空洞成核后, 相互联结成宏观裂纹, 裂纹的传播导致蠕变断裂。文献 [7] 等实验观测直接证实了裂纹的传播导致高温脆性断裂。我们认为这一机构比球形空洞机构更合理些。

我们还可以从力学的观点来说明。近来蓬勃发展起来的断裂力学证实了裂纹 (或类裂纹缺陷) 的传播是导致断裂的根本原因。同时根据对裂纹前缘和球形空洞周围的应力分析, 表明前者更容易传播。可见力学的分析也说明裂纹模型比球形空洞模型更为可能, 因而更接近真实的情形。

* 1977 年 5 月 13 日收到。

2. 文献[2]的实验再次证实了垂直于晶界的法向正应力对空洞(或其它形式的缺陷)长大所起的推动作用(这同力学的分析完全一致), 该文作者也提出空洞附近存在应力集中问题, 然而他们在理论推导中并没有计及空洞附近应力重新分布造成的影响, 而这一影响对缺陷的长大是不可忽略的, 必须予以考虑.

3. 作为文献[2]的理论工作的最主要结果是推出了蠕变断裂时间 t_r 公式(即该文(11)式), 该文也详细报道了实验工作, 他们测定了蠕变断裂时间, 但是文中没有公布实测值, 也没有提及其理论计算值和实测值符合到什么程度, 因而读者也无从作出比较.

此外, 他们在求解扩散方程时, 也有许多不明确之处, 因而化学势函数并没有真正确定.

我们作了与文献[2]中所介绍的条件几乎完全相同的实验. 材料为 99.95% 的工业纯铜丝, 计算长度为 150 毫米, 直径为 2 毫米, 在 2.4 公斤/毫米² 的轴向拉伸应力作用和 400°C 恒温下的真空气氛中进行. 作了密度、电阻率测量和金相观测. 发现在蠕变第二阶段(恒速阶段)的中期和末期, 三晶粒汇合处出现裂纹, 形状扁平, 类似饼状, 分布均匀, 几乎都位于与拉伸轴相垂直的晶界上, 相互之间具有一定的距离. 在蠕变第三阶段(加速阶段), 裂纹主要在径向(与拉伸轴相垂直的方向)长大, 最后联结, 导致断裂. 实验现象与文献[2]所报道的有相同之处, 也有重大的不同之处. 例如, 导致断裂的并非球形空洞而是裂纹. 其次, 我们多次测得的断裂时间($t_r - t_0$)为 15 小时, 即 0.540×10^5 秒, 如果用文献[2]的 t_r 公式计算, ($t_r - t_0$) $\sim 2 \times 10^2$ 秒, 与实验结果相比, 至少差两个数量级. 这里 t_0 是裂纹形成的时刻, t_r 是断裂的时刻.

总结上面的讨论, 可见文献[2]的断裂理论需要改进.

根据对有关实验资料的分析和我们自己的实验观测同时吸取了文献[2]中合理的思想, 提出一种蠕变断裂机构, 它以下列三条基本假定为出发点, 即:

1. 裂纹的传播是导致蠕变断裂的原因. 裂纹沿与拉伸轴相垂直的晶界上均匀分布, 它们之间存在一定距离;

2. 裂纹为圆盘状, 厚度为 h , 半径为 a (初始半径为 a_0), 相邻裂纹中心间距为 b , 即每一边长为 b 的正方形格子(简称为单位格子)中有一个圆盘状裂纹;

3. 设位于晶界上的裂纹前缘的表面环, 作为原子的扩散源, 原子由这环状体的表面沿晶界扩散(忽略点阵扩散), 这环的轴向厚度与晶界厚度相同, 即为 Δz (于是裂纹表面扩散源的面积为 $2\pi a \Delta z$), 在应力和温度作用下, 原子的扩散(同时是空位的沉淀), 使得晶界裂纹长大.

此模型的示意图如图 1 (其中 z 为拉伸轴的方向).

图中没有标出表面扩散环的径向厚

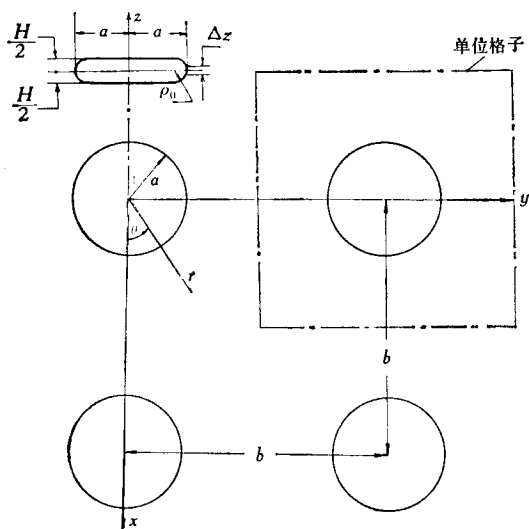


图 1

度(因为这个参数在下面的计算中可以不涉及)。

Nabarro^[3] 提出空位在外力作用下发生定向扩散导致蠕变, Herring^[4] 进一步发展了这一理论, 建立了晶体中原子扩散流密度矢量 $\mathbf{j}$ 与原子化学势 φ 的关系

$$\mathbf{j} = -\frac{D}{kT\Omega}\nabla\varphi, \quad (1)$$

其中 D 是自扩散系数, Ω 是原子的体积, k 为玻耳兹曼常数, T 为绝对温度。Herring 还根据热力学中局部平衡原理(自由能取极小值), 推出 φ 在晶界上的值为

$$\varphi = \mu_0 - \sigma_{zz}\Omega, \quad (2)$$

这里 σ_{zz} 是晶界上的法向正应力分量, μ_0 为无外力时原子的自由能。

文献[1]将此理论用于分析晶界空洞的成长。文献[2]和[8]等指出, 在 400—500℃ 下, 晶界扩散远远较晶格扩散有利(实验证明, 这种情形下晶格扩散仅占总扩散的 6%), 因而晶格扩散可以忽略, 于是(1)式可以改成

$$\mathbf{j} = -\frac{D_B}{kT\Omega}\nabla\varphi, \quad (3)$$

这里 D_B 是晶界扩散系数。

文献[1]和[2]提出原子在空洞内边界上的化学势为

$$\varphi = -\frac{2\gamma}{R}\Omega,$$

其中 R 为空洞的半径, γ 为表面张力。

我们现在采用的圆盘状裂纹模型, 在几何上和力学上都与球形空洞有显著的不同。但由于材料处于高温工作条件下, 这里的裂纹与常温及低温条件下的断裂力学中的理想裂纹又有区别。理想的裂纹, 其前缘的曲率半径很小, 近似地取为零。在高温情形下, 裂纹前缘不可避免地发生钝化, 因而裂纹前缘的曲率半径是一有限量。鉴于这一事实, 在裂纹内部接近裂纹前缘处, 原子的化学势可以期望具有与上式相近的形式, 但有一个参量具有不同的意义。我们记裂纹内部接近前缘处的原子的化学势为

$$\varphi_i = -\frac{2\gamma}{\rho_0}\Omega, \quad (4)$$

这里 ρ_0 为裂纹前缘的曲率半径(见图 1)。在裂纹外面, 晶界上原子的化学势由(2)式可得

$$\varphi = -\sigma_{zz}\Omega,$$

取无外力时的自由能 μ_0 为零。但这里 σ_{zz} 的精确计算是很困难的。作为一级近似, 利用弹性力学的结果, 分两步估计 φ 。第一步, 如果设想没有裂纹, 受轴向拉伸作用的物体, σ_{zz} 应等于外加拉伸应力 σ , 于是上式可写成

$$\varphi_1 = -\sigma\Omega. \quad (5)$$

但是仅仅到此还不够, 因为尚未计及裂纹的出现引起的应力重新分布(特别是裂纹前缘的应力集中)对化学势的贡献。第二步, 再来估计这一贡献, 但不是直接从应力出发, 而是考虑这种应力重新分布引起的能量的变化。在外加拉伸应力 σ 作用下, 物体中由于含有一个半径为 a 的圆盘状裂纹使得系统总势能的变化量为[9]

$$\Delta\varepsilon_p = -\frac{8(1-\nu^2)}{3E}\sigma^2a^3, \quad (6)$$

其中 E 为材料的弹性模量, ν 为泊松系数, (6)式右边的负号表示能量的减少. 我们粗略地将这一结果用于本计算模型, 即每一边长为 b 的正方形格子, 由于其中有一个圆盘状裂纹, 其势能改变量为(6)式所表示. 将 $\Delta\varepsilon_p$ 对一个单位格子中的原子数目除, 则得到裂纹外每一个原子自由能的改变量. 而一个单位格子中原子的数目为

$$N = \frac{(b^2 - \pi a^2)\Delta z}{Q} \simeq \frac{b^2}{Q} \Delta z. \quad (7)$$

这样, 在裂纹外, 晶界上每一个原子的自由能改变量为²⁾

$$\varphi_2 = \frac{\Delta\varepsilon_p}{N} = -\frac{8(1-\nu^2)\sigma^2 a^3 Q}{3Eb^2\Delta z}. \quad (8)$$

($\varphi_1 + \varphi_2$)便构成裂纹外每一个原子总化学势

$$\varphi_c = \varphi_1 + \varphi_2 = -\sigma Q \left[1 + \frac{8(1-\nu^2)\sigma a^3}{3Eb^2\Delta z} \right]. \quad (9)$$

因为 $\varphi_i > \varphi_c$, 所以形成化学势梯度. 设 $\mathbf{r}_0$ 表示沿裂纹径向的单位矢量. 用差商代替微商, 可得化学势梯度大小的近似值为

$$(\nabla\varphi) \cdot \mathbf{r}_0 \simeq \frac{\varphi_c - \varphi_i}{b/2} = -\frac{2Q}{b} \left\{ \sigma \left[1 + \frac{8(1-\nu^2)\sigma a^3}{3Eb^2\Delta z} \right] - \frac{2\gamma}{\rho_0} \right\}. \quad (10)$$

将(10)式代入(3)式, 得到

$$j = \frac{2QD_B}{kTb} \left\{ \sigma \left[1 + \frac{8(1-\nu^2)\sigma a^3}{3Eb^2\Delta z} \right] - \frac{2\gamma}{\rho_0} \right\}. \quad (11)$$

因为裂纹表面扩散源的面积为 $2\pi a\Delta z$, 所以裂纹的体积增长率为

$$\frac{dV}{dt} = j2\pi a\Delta zQ = \frac{4\pi aD_B\Delta zQ}{kTb} \left\{ \sigma \left[1 + \frac{8(1-\nu^2)\sigma a^3}{3Eb^2\Delta z} \right] - \frac{2\gamma}{\rho_0} \right\}. \quad (12)$$

又裂纹的体积 $V(t) = \pi a^2(t)h(t)$, 为了简化计算, 以

$$H = \frac{1}{t_r - t_0} \int_{t_0}^{t_r} h(t) dt$$

代替 $h(t)$, 那么

$$\frac{da}{dt} = 2\pi aH \frac{da}{dt}. \quad (13)$$

同时(12)式中的 ρ_0 也应是时间 t 的函数, 但 ρ_0 的变化颇难估计. 事实上, ρ_0 的变化与 $h(t)$ 的变化有关, 但 $h(t)$ 的变化相对于 $a(t)$ 的变化缓慢得多(所以刚才已用平均值代替它); 其次, 正如前面指出, 在温度的作用下, 裂纹前缘是钝化的. 根据这些物理事实, 可知 ρ_0 随时间的变化并不太大, 可以近似地假定它为一常数.

比较(12)和(13)式, 得到

$$\frac{da}{dt} = \frac{2D_B\Delta zQ}{kTbH} \left\{ \sigma - \frac{2\gamma}{\rho_0} + \frac{8(1-\nu^2)\sigma^2 a^3}{3Eb^2\Delta z} \right\}, \quad (14)$$

1) 取 $N = b^2\Delta z/Q$ 是为了计算简单, 在裂纹成长的初期, 因为 $a^2 \ll b^2$, 这是一个很好的近似; 而在裂纹接近相互联结时, 这种近似的偏差就较大.

2) 按理讲, 由于裂纹存在, 除了势能变化之外, 组合熵还会变化, 但裂纹成核主要靠滑移, 而不是空位的堆积(虽然本文不涉及成核问题, 但这是公认的结论), 因此成核前后, 空位浓度变化不会太大, 组合熵变化不大, 于是自由能的改变便由势能(内能)的改变来决定.

这就是蠕变裂纹的径向长大速率(或传播速率)。

将(14)式由 a_0 到 $b/2$ 积分(对应的时间是 t_0 到 t_r , 如前述, t_0 表示裂纹形成的初始时刻, t_r 为蠕变断裂时间, a_0 是裂纹初始半径, $b/2$ 是裂纹相互联结时的半径), 得到

$$t_r - t_0 = \frac{kTbH}{2D_B\Delta z\Omega} \int_{a_0}^{\frac{b}{2}} \frac{da}{\alpha + \beta a^3}, \quad (15)$$

其中

$$\alpha = \sigma - \frac{2\gamma}{\rho_0}, \quad \beta = \frac{8(1-\nu^2)\sigma^2}{3Eb^2\Delta z}. \quad (16)$$

经过计算, 我们得到

$$t_r - t_0 = \frac{kTbH}{2D_B\Delta z\Omega} \cdot \frac{A}{3\alpha} \left\{ \frac{1}{2} \ln \left[\frac{(A+a)^2}{A^2 - Aa + a^2} \right] + \sqrt{3} \operatorname{tg}^{-1} \left(\frac{2a-A}{\sqrt{3}A} \right) \right\} \Bigg|_{a=a_0}^{a=\frac{b}{2}}, \quad (17)$$

其中

$$A = \left(\frac{\alpha}{\beta} \right)^{\frac{1}{3}}. \quad (18)$$

这就是我们给出的蠕变断裂时间公式。

初步的分析可以看出, 断裂时间($t_r - t_0$)与物理常数 $k, \Omega, D_B, \Delta z$ 有关, 它们反映微观组织结构的影响; ($t_r - t_0$)也与物理常数 γ, E, ν 有关, 它们反映了材料的宏观物理性质的影响, 其中 E, ν 的作用是我们首次引入; 同时, 断裂时间还与缺陷的几何参量 a_0, b, ρ_0, H 有关, 粗略的数量分析可知, 裂纹愈扁、裂纹前缘曲率半径 ρ_0 愈小, 愈容易导致断裂, 这同力学上的分析完全一致, 也进一步证实了我们提出的模型的合理性; 自然, 断裂时间($t_r - t_0$)还与工作条件 T 和 σ 有关, 它们在(17)式中的作用也与实际相符。下面给出一个计算实例, 进行理论同实验的比较以及同文献[2]中(11)式的比较。

计算实例

以我们的实验给出的各参数的数值代入本文(17), (16), (18)式中, 作实例计算。其中直接测得

$$a_0 \sim 5 \text{ 微米}; \quad b \sim 20 \text{ 微米}; \quad H \sim 1.5 \text{ 微米}.$$

其余的则为实验给出的已知数据(包括从手册中查到的数据)和从实验中间接估计出来的数据。这里需要作几点说明:

D_B 为铜的晶界扩散系数, 迄今未见到在 $400-500^\circ\text{C}$ 下的实验测定值。但银在此温度范围内的 $D_B\Delta z$ 有人测定过^[10], 约为 3×10^{-15} 厘米³/秒, 有些作者^[2,8]认为铜的 $D_B\Delta z$ 应与银相近, 但 Barrett 等^[11]依据文献[10]和[12]认为铜的扩散系数应大些。在下面的计算中, 我们暂借用此值, 但后面将进行适当的讨论;

Δz 为晶界厚度, 文献[13]和[14]都有估计, 两者有些出入, 但较接近, 似乎取 5×10^{-8} 厘米是这两者最接近的值;

γ 为铜在 400°C 时的表面张力, 未见到实测值, 取其在常温下之值, 约为 1000 达因/厘米;

ρ_0 为裂纹前缘的曲率半径, 我们没有监测这个数据, 作为粗略的近似, 认为裂纹的纵

剖面在裂纹前缘处为半圆形(见图1),显然此圆的半径为 $H/2$, 我们取 $\rho_0 = H/2$.

这样,就具备了计算 $(t_r - t_0)$ 所需的一切数据:

$k = 1.38 \times 10^{-16}$ 尔格/度, $T = 400$ 度 + 273 度 = 673 度, $\sigma = 2.4$ 千克/毫米² = 2.35×10^8 达因/厘米², $D_B \Delta z = 3 \times 10^{-15}$ 厘米³/秒, $\Delta z = 5 \times 10^{-8}$ 厘米, $Q = 1.2 \times 10^{-28}$ 厘米, $a_0 = 5 \times 10^{-4}$ 厘米, $b = 2 \times 10^{-3}$ 厘米, $H = 1.5 \times 10^{-4}$ 厘米, $E = 1.06 \times 10^{12}$ 达因/厘米², $\nu = 0.35$, $\gamma = 1000$ 达因/厘米, $\rho_0 = 0.75 \times 10^{-4}$ 厘米.

将这些结果代入(17)式中,计算得到

$$t_r - t_0 = 0.420 \times 10^6 \text{ 秒}.$$

首先看出理论计算值与实测值之间仍有较大误差,但已较由文献[2]的(11)式所得出的计算值的误差小得多,这是本文结果有所改进的地方之一. 其次,计算中的重要参数 $D_B \Delta z$ 是借用银的实验值,铜应比它大,如果对此进行修正,则所得 $(t_r - t_0)$ 计算值将明显减小而可能接近实验测的结果. 第三,在建立(7)式时,作了一个粗略的近似,如果不作那个近似, $(t_r - t_0)$ 公式的推导并不困难,只是所得的计算公式冗长和复杂. 我们也用上列数据代入进行计算,所得结果比上面给出之值好一些.

蠕变断裂问题是生产中经常遇见的问题,由于在物理上非常复杂和数学描述上的困难,要得到更严密更准确的断裂理论,还必须进行大量的工作.

参 考 文 献

- [1] R. W. Balluffi, I. L. Seigle, *Acta Met.*, **5**(1957), 449.
- [2] D. Hull, D. E. Rimmer, *Phil. Mag.*, Ser. **3**, (4) (1959), 673.
- [3] F. R. N. Nabarro, *Report a Conference on Strength of Solids* (London, *Phys. Soc.*), **47**(1947), 75.
- [4] C. Herring, *J. Appl. Phys.*, **21**(1950), 437.
- [5] J. M. Greenwood, D. R. Miller, J. W. Suiter, *Acta Met.*, **2**(1954), 250.
- [6] C. W. Chen, E. S. Machlin, *AIME*, **209**(1957), 829.
- [7] Chang, H. C. (张兴铃), N. J. Grant, *AIME*, **206**(1956), 544.
- [8] R. C. Boetter, W. D. Robertson, *AIME*, **221**(1961), 613.
- [9] I. N. Sneddon, *Proc. Roy. Soc.*, (London), Ser. **A** (187) (1946), 229.
- [10] R. F. Hoffman, D. Turnbull, *J. Appl. Phys.*, **22**(1951), 634.
- [11] C. R. Barrett, O. Sherby, *AIME*, **230**(1964), 1322.
- [12] A. Kuper *et al.*, *Phys. Rev.*, **96**(1954), 1224.
- [13] J. C. Fisher, *J. Appl. Phys.*, **22**(1951), 634.
- [14] D. McLean, 杨顺华译,《金属中的晶粒间界》, 科学出版社 (1965).

A POSSIBLE MECHANISM OF THE GROWTH OF GRAIN- BOUNDARY CRACK AND AN ESTIMATION OF CREEP RUPTURE TIME

FAN TIAN-YOU

*(Second Department, Beijing Institute
of Technology)*

LIANG ZHEN-YA

(Department of Physics, Beijing University)

ABSTRACT

After a careful study of the article by Hull and Rimmer, we found that there existed some contradictions between the facts and theory put forward. Basing on the experimental data from related references and those obtained in our own laboratory, and retaining the rational basis of the above mentioned work, we suggest a new mechanism of creep rupture and derive a formula for the rupture time. The theoretical values agree fairly well with those measured. From these results, it seems that our treatment has improved some what the theory of Hull and Rimmer.