

平纹编织 C/SiC 复合材料在室温和高温环境下的拉伸行为

王 锬^{1,2}, 陈刘定¹, 郑 翔¹

(1. 西北工业大学, 西安 710072 2. 中国航天科技集团四院, 西安 710025)

摘要: 通过单向拉伸试验, 对比研究平纹编织 C/SiC 陶瓷基复合材料在室温和高温 (1300°C, 包括惰性气氛和湿氧气氛) 环境下的宏观力学特性, 并采用光学显微镜和扫描电镜对试件断口进行显微观察, 分析其损伤模式和破坏机理。结果表明: C/SiC 复合材料的室温和高温拉伸行为通常表现为非线性特征, 在低应力时就开始出现损伤; 纤维与基体之间界面滑行阻力的降低使 C/SiC 复合材料在高温惰性气氛环境下的拉伸强度和破坏应变均比室温下的高; 碳纤维的氧化严重影响材料的承载能力导致高温湿氧环境下的拉伸强度和破坏应变均比室温下的低; C/SiC 复合材料室温和高温下的拉伸均呈现韧性断裂, 断口较为相似, 只是纤维拔出长度和断口的平齐程度有所不同, 其中高温惰性气氛环境下纤维拔出最长, 高温湿氧环境下试件断口有明显的被氧化痕迹; 0°纤维束表面基体开裂、明显的层间分层以及 0°纤维和纤维束的拔出和断裂同时携带 90°纤维束拔出是 C/SiC 复合材料在室温和高温下的拉伸破坏机理。

关键词: 平纹编织 C/SiC; 陶瓷基复合材料; 拉伸行为; 损伤机理

DOI 10.3969/j.issn.1005-5053.2010.1.015

中图分类号: TB332

文献标识码: A

文章编号: 1005-5053(2010)01-0078-07

陶瓷基复合材料具有高比强度、高比刚度、耐高温和低密度等优点, 同时通过纤维补强, 克服了单一陶瓷材料脆性大的缺点, 可望取代高温合金和难熔金属作为高温结构材料, 用于航空发动机的燃烧室、整体涡轮、导向叶片、微喷管以及火箭发动机的燃烧室和喷管, 大幅度提高推重比, 具有广阔的应用前景^[1]。新材料面向工程应用必须解决力学行为的表征问题, 研究材料的破坏机理有助于改进工艺, 提高其性能。国际上对编织结构陶瓷基复合材料的力学行为的研究颇为重视, 进行了较多的试验和理论研究, 但由于工艺的差别, 各国的材料表现出的力学行为不尽相同^[2-7]。

近年来, 国内陆续报道了三维编织 C/SiC 复合材料的拉压性能^[8]、剪切性能^[9]、疲劳性能^[10]、声发射响应^[11]、蠕变特性^[12]、热震行为^[13]等, 对二维平纹编织 C/SiC 复合材料也进行了一些研究^[14-18]。但是这些都局限于材料在室温环境下的力学性能研究, 作为一种可重复使用空天飞行器结构的重要候

选材料, 其在服役过程中不仅需要承受复杂的交变载荷的作用, 同时还要承受高达 1300°C 的温度和复杂的热物理化学环境。因此亟需建立 C/SiC 复合材料在复杂环境、温度和载荷交互作用下的常规力学性能完整性评价体系。鉴于此, 本研究对平纹编织 C/SiC 陶瓷基复合材料在室温和高温复杂环境下的拉伸行为进行了试验研究, 对比其在不同温度环境下的拉伸性能, 并采用断口分析的方法研究其损伤模式和破坏机理, 为该材料的优化设计和工程应用提供重要参考。

1 试验材料、设备及方法

试验用平纹编织 C/SiC 陶瓷基复合材料试样采用化学气相渗透 (chemical vapor infiltration, CVI) 工艺制造, 其主要组分材料为 T-300 碳纤维和 SiC 基体。材料的密度大约为 $2.1 \sim 2.2 \text{ g/cm}^3$, 孔隙率 15% 左右, 基体体积含量 45%, 纤维体积含量 40%。组分性能如表 1 所示。

平纹编织 C/SiC 陶瓷基复合材料加工成型后, 用金刚石线切割机将其加工成狗骨状试样。室温和高温试样分别如图 1 和图 2 所示。

收稿日期: 2009-02-20 修订日期: 2009-10-11

基金项目: 国家自然科学基金 (10372081)

作者简介: 王锬 (1963-), 男, 博士, (E-mail) chenliuding@gnail.com。

表 1 C/SC 复合材料组分性能

Table 1 component properties of C/SC composites

Component	Strength/MPa	Modulus/GPa	Failure strain/%	Density/(g/cm ³)	Thermal expansion coefficient/(10 ⁻⁶ K ⁻¹)
SiC matrix	310	400	0.7	3.2	4.8
T-300 fiber	3795	232	1.6	1.76	-0.5~0.1

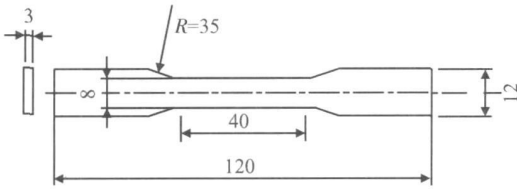


图 1 室温拉伸试验所用试样

Fig. 1 Specimen for room-temperature experiment

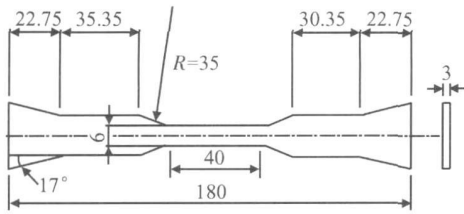


图 2 高温拉伸试验所用试样

Fig. 2 Specimen for high-temperature experiment

室温环境单向拉伸试验在 MTS810 液压伺服疲劳试验机上进行, 采用位移控制加载, 加载速率为 0.06mm/min, 位移从零开始直至试样断裂。高温环境单向拉伸试验采用西北工业大学超高温复合材料实验室的等效环境模拟系统, 如图 3 所示, 炉膛均温区为管状区域, 将其安装在 Instron8801 液压伺服疲劳试验机上下夹头之间。高温环境试验在两种模拟环境下进行, 环境参数见表 2。试验前, 先将试样从加热炉中穿过, 用燕尾形夹头固定在试验机上, 然

后进行预热, 将实验炉内充满氩气并缓慢加热至 1300°C, 保温 10 分钟后, 调节炉内环境为试验环境开始做试验。试样断裂后, 将炉内气体切换为纯氩气, 以保护试样的原始断口形貌。高温单向拉伸试验采用位移控制加载, 加载速率为 0.06mm/min, 在整个室温和高温试验过程中利用引伸计和应变仪全程采集轴向应变。试验后采用光学显微镜 (optical microscope, OM) 和扫描电镜 (scanning electron microscope, SEM) 观察试样断口, 分析其损伤模式和破坏机理。

表 2 1300°C 下两种模拟环境气体参数

Table 2 Gas parameters of two simulated environments at 1300°C

Environment	Gas composition in pressure/Pa
Environment A: inert atmosphere	Ar: 1.01 × 10 ⁶ (> 99.99% in volume)
Environment B: wet oxygen atmosphere	Ar: 80 × 10 ³ , O ₂ : 8000, H ₂ O: 12

2 试验结果及分析

图 4 是典型单向铺层陶瓷基复合材料的拉伸应力-应变曲线^[19], 由如图所示的四个阶段组成, σ_p 为比例极限, σ_{mc} 为基体启裂应力, 二者可近似看为一点。大部分陶瓷基复合材料可能只出现其中的部分阶段, 便发生断裂。陶瓷基复合材料属于基体纤维弱界面结合的材料, 所以可以认为拉伸应力-应变曲线出现的阶段越多界面结合越弱, 反之越强。而优良的拉伸性能往往对应着弱的界面结合, 因此也可以直接认为拉伸应力-应变曲线出现的阶段越多, 拉伸性能越好。Evans 等发现^[20], 平纹编织 C/SC 陶瓷基复合材料的拉伸应力-应变曲线和单向铺层陶瓷基复合材料的形状极为相似, 因此可以采用单向铺层陶瓷基复合材料的理论来分析平纹编织 C/SC 陶瓷基复合材料的应力-应变曲线。

室温拉伸应力-应变曲线如图 5 所示, 其表现出明显的非线性特征。可以发现, 平纹编织 C/SC 陶瓷基复合材料在较低应力水平 (将其定义为比例极限, 约 $\sigma = 39.4 \text{ MPa}$ 图中的 Crack appearance 点) 就

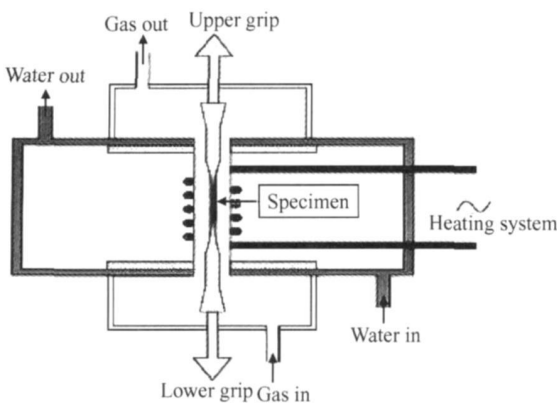


图 3 高温可控实验炉和试样安装图

Fig. 3 High-temperature experiment furnace and specimen setting up drawing

表现为非线性,此时材料制备过程中产生的裂纹开始扩展并产生新裂纹,材料开始发生损伤。随着拉伸应力的增加,切线斜率降低一段距离后,在大约 $\sigma = 159.3\text{MPa}$ 后趋于稳定直至试样断裂。其最终拉伸强度为 263.5MPa 断裂应变为 0.647% 。可以看出,由于曲线没有出现明显的斜率再上升过程,因此室温拉伸应力-应变曲线没有出现明显的裂纹饱和点。可以认为此曲线只有图 4 中的前两个阶段,界面结合相对较强。

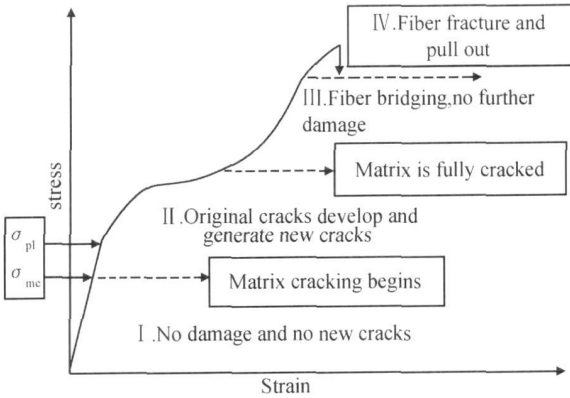


图 4 典型单向铺层陶瓷基复合材料拉伸应力-应变曲线
Fig. 4 Typical tensile stress-strain curve of unidirectional ceramic matrix composites

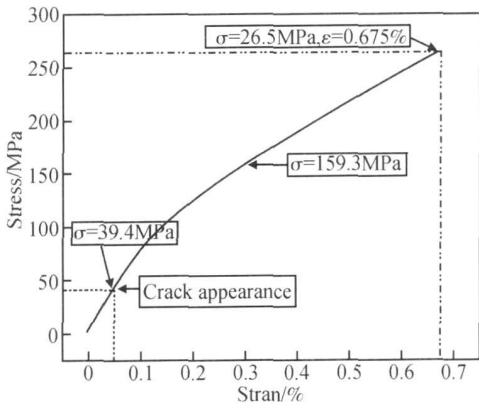


图 5 室温拉伸应力-应变曲线
Fig. 5 Tensile stress-strain curve at room temperature

高温环境 A (惰性气氛) 下的应力-应变曲线如图 6 所示,与常温下的拉伸应力-应变曲线一样,高温惰性气氛下的拉伸应力-应变曲线在低应力状态下仍表现为线弹性,当应力超过 44.3MPa 左右以后曲线斜率开始降低,直到大约 85.5MPa (裂纹饱和点),曲线斜率开始增加,并在约 137.5MPa 以后斜率保持稳定直至约 277.5MPa 随后曲线斜率出现短暂下降,最后在应力达到 284.1MPa 时整个试样发生破坏,破坏应变为 0.842% 。与图 4 相比,可以

看出此曲线出现了全部四个阶段,表明材料界面结合较弱。

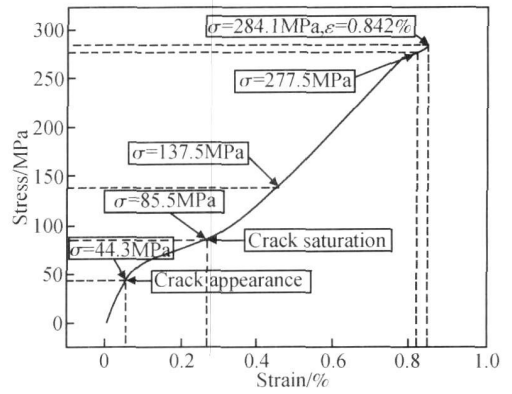


图 6 1300°C 环境 A 下的拉伸应力-应变曲线
Fig 6 Tensile stress-strain curve in environment A at 1300°C (inert atmosphere)

高温环境 B (湿氧环境) 下的拉伸应力-应变曲线如图 7 所示。可见,线弹性段很短,在 22.3MPa 左右就开始表现为非线性,此后曲线斜率开始短暂下降直到 25.4MPa (裂纹饱和点) 又开始上升。与高温环境 A 下的拉伸应力-应变曲线相比,其最明显的特征是线弹性段的斜率变低,斜率下降点和升高点的应力变低,且斜率下降阶段和升高阶段的长度变短,并且在较低应力 ($\sigma = 140.3\text{MPa}$) 斜率就开始下降,最后在 252.8MPa 整个试样发生破坏。其在此环境下的拉伸比例极限、最终拉伸强度和破坏应变分别为 22.3MPa , 252.8MPa 和 0.635% 。对比图 4 发现,与高温环境 A 一样,此环境下的应力-应变曲线也全部拥有四个阶段,因此判定材料界面结合较弱。

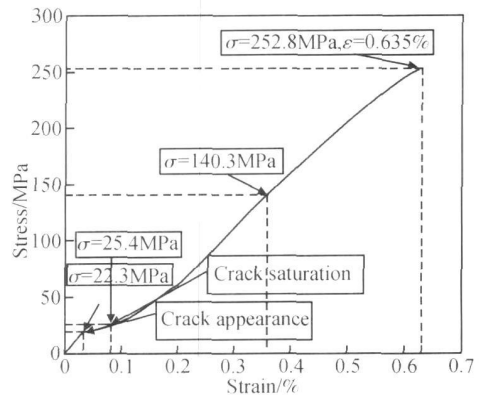


图 7 1300°C 环境 B 下的拉伸应力-应变曲线
Fig 7 Tensile stress-strain curve in environment B at 1300°C (wet oxygen atmosphere)

由图 5 图 6 图 7 可以发现, 三种环境下的应力-应变曲线都在很低的应力水平下就表现出非线性, 一方面由于 CVI 工艺本身是一个十分缓慢的气体渗透过程, 而实际的工艺并不能保证气体渗透完全充分, 这样会使得制备的材料中存在大量的基体未填满的坑凹(图 8 中 a 所示), 在这些坑凹的周围变形奇异的地方会产生应力集中。另一方面, 由表 1 可以看出, 基体的热膨胀系数比纤维要高的多, 当材料从大约 1000°C 的制备温度降到室温时, 基体的收缩大于纤维, 而纤维会约束基体的收缩, 使基体受到拉伸作用, 由于基体的破坏应变较小(约为 0.7%), 所以纤维对基体的拉伸作用在应力集中较大(如经向纤维和纬向纤维交叉点)的地方会在基体中产生微裂纹(图 8 中 b 所示), 而其余的部分则以残余热应力的形式存在与基体之中。当考虑残余热应力时, 在复合材料层合板中, 基体的启裂应力为^[18]:

$$\sigma_{m,c} = E_c \varepsilon_{m,u} - \sigma_m^R E_c / E_m \quad (1)$$

其中, $\sigma_{m,c}$ 是基体启裂时的应力, $\varepsilon_{m,u}$ 是基体的最终拉伸应变, σ_m^R 是轴向残余热应力, E_c , E_m 分别是复合材料和基体的拉伸模量。由式(1)可知, 在较低的轴向拉伸作用下, 原来的基体裂纹可能就会扩展, 基体中也可能产生新裂纹。以上两方面都是材料在低应力下就开始表现出非线性的原因。

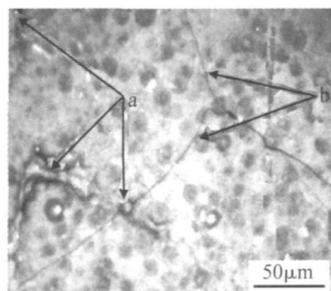


图 8 未拉伸试样表面的微缺陷 OM 图
Fig 8 OM micro-perfection morphology of specimen surface without tension

表 3 给出了平纹编织 C/SiC 复合材料在室温和高温环境下的拉伸性能参数。从拉伸性能的对比中可以发现, 高温环境 A 下的拉伸强度、破坏应变和比例极限均高于常温下的, 但是湿氧环境下的拉伸强度、破坏应变和比例极限却低于常温下的。界面层对于复合材料的性能有着至关重要的影响^[22], 如果界面粘结较强, 则当基体中的裂纹扩展到纤维时, 界面一般不发生脱粘, 而只有大量纤维的破坏, 复合材料中不再存在桥联裂纹的纤维, 因此不会起到增

韧效果。另外, 较高的界面滑行阻力也会阻止断裂纤维的从基体中的拔出。以上的两方面都会使得复合材料的强度和破坏应变降低。相反, 界面粘结变弱和界面滑行阻力的降低则可以产生较长的纤维拔出长度, 从而增加材料的拉伸强度和韧性。在高温环境 A 下, 与室温下相比由于纤维的蠕变效应、残余热应力的降低以及热失配可能引起的基体纤维界面相对滑动等都能够有效的降低界面滑行阻力, 从而产生类似弱界面结合的增韧作用, 因此其具有较高的拉伸强度和破坏应变。而在高温环境 B 下, 由于拉伸过程中, 基体裂纹逐步被拉开, 导致纤维在一定程度上被氧化而过早失效, 从而使材料模量整体降低, 所以其拉伸强度、破坏应变和比例极限比室温环境下的还低。而其性能和高温环境 A 相比降低的程度取决于碳纤维氧化的程度, 也是界面滑行阻力的降低和纤维氧化共同作用的结果。

表 3 C/SiC 复合材料的拉伸性能

Table 3 Tensile property of C/SiC Composites

Experimental condition	Tensile strength / MPa	Failure strain / %	Proportional limit / MPa
Room temperature	263.5	0.674	39.4
Environment A	284.1	0.842	44.3
Environment B	252.8	0.635	22.3

图 9 是室温拉伸试样断口显微照片, 可以发现覆盖在 0° 纤维束表面的基体发生了开裂(图 9a), 从断口的侧面(图 9b)可以发现, 存在大量的层间分层裂纹以及纤维束表面大量基体碎片的脱落。这些层间裂纹一般都出现在层与层之间结合不紧密和同层内基体与纤维结合较疏松的地方, 可以断定在拉伸的过程中裂纹在层间的扩展就是沿着这样的路径的。图 9c 显示的是纤维束内包围纤维的基体的剥落, 其在拉伸过程中纤维的拔出和断裂时产生。

图 10 显示的分别是室温(图 10a)、高温环境 A(图 10b)和高温环境 B(图 10c)的断口宏观形貌。结合其各自应力-应变曲线可以看出, 三种温度环境下均呈现韧性断裂, 断口形貌基本相似, 只是纤维拔出长度和断裂的平齐程度有所不同。断裂的位置一般发生在经向纤维和纬向纤维交接的地方, 这是因为在纤维交接的地方容易出现应力集中, 导致这些地方的应力比其它地方偏大, 可以推断裂纹在同一层面内的扩展就是沿着这样的路径的。

图 11 显示的分别是室温(图 11a)、高温环境 A(图 11b)和高温环境 B(图 11c)的断口微观形貌。

可以发现 0°纤维和纤维束的断裂和拔出同时携带 90°纤维束的拔出。对比发现, 高温环境 A 下的断口纤维拔出最长, 说明其韧性最好。由于受到纤

维氧化的影响, 高温环境 B 纤维拔出并不长。图 11c 可以看出断口有明显的被氧化痕迹。

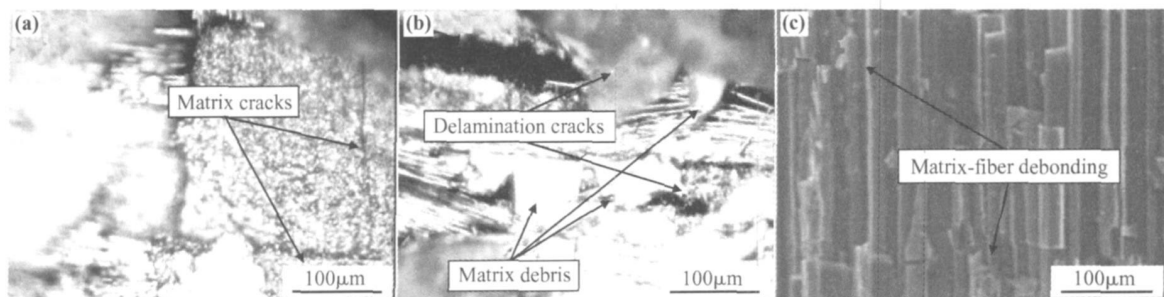


图 9 室温拉伸试样断口显微照片 (a) 基体裂纹; (b) 基体碎片和层间裂纹; (c) 基体纤维脱粘

Fig. 9 Fracture surface morphology of tensile specimen at room temperature (a) matrix cracks; (b) matrix debris and delamination cracks; (c) Matrix-fiber debonding

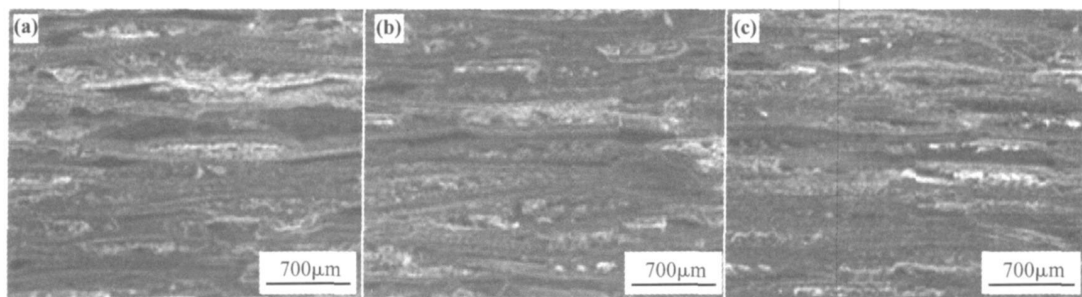


图 10 不同温度环境拉伸试样断口宏观形貌 (a) 室温; (b) 高温环境 A; (c) 高温环境 B

Fig. 10 Fracture surface morphology of tensile specimen in different environments

(a) room temperature; (b) environment A; (c) environment B

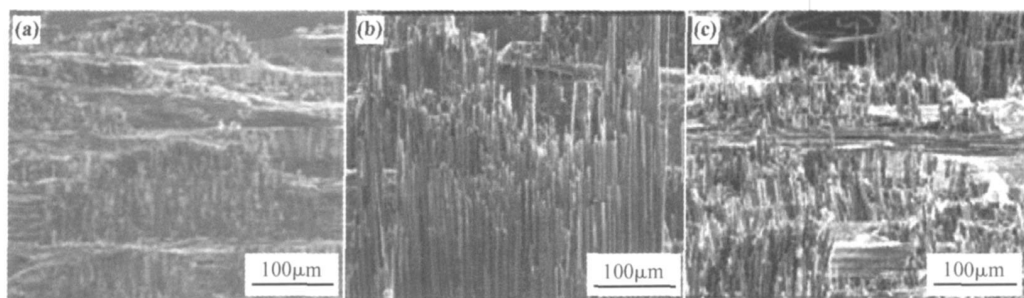


图 11 不同温度环境拉伸试样断口宏观形貌 (a) 室温; (b) 高温环境 A; (c) 高温环境 B

Fig. 11 Fracture surface morphology of tensile specimen in different environments

(a) room temperature; (b) environment A; (c) environment B

3 结论

(1) 平纹编织 C/SiC 陶瓷基复合材料的室温和高温拉伸行为通常表现为非线性特征, 线弹性段较短, 在低应力时就开始出现损伤, 其主要原因是材料

初始制备裂纹和残余热应力的存在。高温惰性气氛环境下的线弹性段比室温环境下的长, 主要是由于高温下残余热应力的降低导致基体裂纹启裂应力增大。而高温湿氧环境下的线弹性段比较短, 主要是因为纤维被氧化导致材料整体性能下降。

(2) 平纹编织 C/SiC 陶瓷基复合材料在高温惰

性气氛环境下的拉伸强度和破坏应变均比室温下的高,主要是由于高温下纤维与基体之间界面滑行阻力的降低所致。而高温湿氧环境下的拉伸强度和破坏应变均比室温下的低,主要是由于此环境下碳纤维被氧化严重影响了材料的承载能力,其也抵消了高温下界面滑行阻力降低产生的增韧作用。

(3) 从断口分析中可知,平纹编织 C/SiC 陶瓷基复合材料室温和高温下的拉伸均呈现韧性断裂,断口较为相似,纤维拔出长度和断口的平齐程度有所不同,高温惰性气氛环境下的纤维拔出最长,说明其韧性最好。高温湿氧环境下试件断口有明显的被氧化的痕迹。

(4) 0°纤维束表面基体开裂、明显的层间分层以及 0°纤维和纤维束的拔出和断裂同时携带 90°纤维束拔出是平纹编织 C/SiC 陶瓷基复合材料在室温和高温下拉伸破坏的主要方式。

参考文献:

- [1] 张立同, 成来飞, 徐永东. 新型碳化硅陶瓷基复合材料的研究进展 [J]. 航空制造技术, 2003 (1): 24-32
- [2] JACOBSEN T, BRONSTED P. Mechanical properties of two plain-woven chemical vapor infiltrated silicon carbide matrix composites [J]. J Am Ceram Soc, 2001, 84 (5): 1043-1051
- [3] CALARD V, LAMON J A. Probabilistic-statistical approach to the ultimate failure of ceramic matrix composites Part I: experimental investigation of 2D woven SiC/SiC composites [J]. Composites Science and Technology, 2002, 62: 385-392
- [4] DALMAZ A, DUCRET D, GUERJOURA R, *et al*. Elastic module of a 2.5D C_f/SiC composite: experimental and theoretical estimates [J]. Composite Science and Technology, 2000, 60: 913-925
- [5] CAMUS G. Modeling of the mechanical behavior and damage processes of fibrous ceramic matrix composites: application to a 2-D SiC/SiC [J]. International Journal of Solids and Structures, 2000, 37: 919-942
- [6] CHABOCHE J M, AIRE J. New progress in micromechanics based CDM models and their application to CMCs [J]. Composite Science and Technology, 2001, 61: 2239-2246
- [7] CAMUS G, GUILLAUMAT L, BASFE S. Development of damage in a 2D woven C/SiC composite under mechanical loading I: mechanical characterization [J]. Composite Science and Technology, 1996, 56: 1363-1372
- [8] 王波, 矫桂琼, 潘文革. 三维编织 C/SiC 复合材料的拉压实验研究 [J]. 复合材料学报, 2004, 21(3): 110-114
- [9] 王波, 矫桂琼. 三维编织 C/SiC 复合材料剪切和弯曲性能的实验研究 [J]. 机械强度, 2007, 29(1): 44-47
- [10] 杜双明, 乔生儒, 纪岗昌, 等. 3D-C/SiC 复合材料在室温和 1300°C 的拉-拉疲劳行为 [J]. 材料工程, 2002, 9: 22-25
- [11] 潘文革, 矫桂琼, 王波, 等. 声发射技术在三维编织 C/SiC 复合材料拉伸损伤分析中的应用 [J]. 无机材料学报, 2004, 19(4): 871-875
- [12] 乔生儒, 杨忠学, 韩栋, 等. 3D-C/SiC 复合材料拉伸蠕变损伤和蠕变机理 [J]. 材料工程, 2004, 4: 34-36
- [13] 任伟华, 乔生儒, 敖强. 3D-C/SiC 复合材料热震损伤行为 [J]. 材料工程, 2003, 12: 26-28
- [14] 管国阳, 矫桂琼, 张增光. 2D C/SiC 复合材料的宏观拉压特性和失效模式 [J]. 复合材料学报, 2005, 22(4): 81-85
- [15] 潘文革, 矫桂琼, 管国阳. 二维机织碳纤维/碳化硅陶瓷基复合材料损伤分析 [J]. 硅酸盐学报, 2005, 33(11): 1321-1325
- [16] 管国阳, 矫桂琼, 张增光, 等. 平纹编织 C/SiC 复合材料的失效判据 [J]. 硅酸盐学报, 2005, 33(9): 1100-1104
- [17] 孙龙生, 姚磊江, 吕国志, 等. 二维平纹编织 CVI 工艺 C/SiC 复合材料的疲劳行为 [J]. 西北工业大学学报, 2007, 25(4): 478-481
- [18] 管国阳, 矫桂琼, 张增光. 平纹编织 C/SiC 复合材料的剪切性能 [J]. 机械科学与技术, 2005, 24(5): 515-517
- [19] CHAWLA K. Ceramic Matrix Composite [M]. Second edition USA: Kluwer Academic Publisher, 2003: 298-301
- [20] EVANS A, DOMERGUE J, VAGAGNIE. Methodology for relating the tensile constitutive behavior of ceramic-matrix composites to constituent properties [J]. J Am Ceram Soc, 1994, 77: 1425-1435
- [21] XU Y, CHENG L, ZHANG L, *et al*. Microstructure and mechanical properties of three-dimensional textile Hi-Ni-cabin SiC/SiC composites by chemical vapor infiltration [J]. Journal of the American Ceramic Society, 2002, 85(5): 1217-1221
- [22] VAGAGNIE, DOMERGUE J, EVANS A. Relationships between hysteresis measurements and the constituent properties of ceramic matrix composites: I theory [J]. Journal of the American Ceramic Society, 1995, 78(10): 2709-2720

Comparison of Tensile Behavior of Plain-Woven Carbon/Silicon Carbide Composites at Room Temperature and High Temperature

WANG Kun^{1,2}, CHEN Li-ding¹, ZHENG Xiang¹

(1. Northwestem Polytechnical University, Xi'an 710072, China; 2. The Fourth Academy of CASC, Xi'an 710025, China)

Abstract Monotonic tensile experiments at room temperature and 1300°C were performed to investigate the macro-mechanical behavior of plain-woven C/SiC ceramic matrix composites (CMCs) produced with CVI technique. Two environments including inert atmosphere and wet oxygen atmosphere were simulated at 1300°C. The microstructure of specimens were observed by optical microscope and scanning electron microscope to analyse its damage mechanism. The results indicate that the responses of C/SiC composite under tensile loading at both room temperature and 1300°C are nonlinear to rupture and damage appears at very low stress level. The tensile strength and failure strain at room temperature are lower than at 1300°C in inert atmosphere but higher than at 1300°C in wet oxygen atmosphere, respectively. The main reason of the former is the decrease of interfacial sliding resistance at 1300°C in inert atmosphere. The main reason of the latter is fiber oxidation at 1300°C in wet oxygen atmosphere. The tensile specimens all break in a ductile manner. Fractography analysis shows that the fracture surfaces are almost the same in the three environments except the obviously oxidative trace in wet oxygen atmosphere. The specimens in inert atmosphere have the longest pull-out length of fiber. Matrix cracks around the 0° fiber bundles, interlaminar cracks, fracture and pullout of 0° fiber and 0° bundles along with the pullout of 90° bundles are the main damage mechanisms.

Key words plain-woven C/SiC, ceramic matrix composite, tensile behavior, damage mechanism