

## 應用使用者副程式於多晶陶瓷高溫下潛變破壞之多尺度模擬

黃仲偉<sup>1</sup>, 游濟華<sup>2</sup>

<sup>1</sup>中原大學土木工程學系；<sup>2</sup>台灣大學土木工程學系

### 摘要

在高溫下多晶陶瓷材料的破壞為跨尺度的行為，亦即微觀的行為會影響其在巨觀下的反應。本文提出一個耦合多尺度的計算模型來探討多晶材料晶粒之間潛變對主裂縫生長的影響，該模型是建立在微觀力學的理论基礎，在裂縫尖端區域係利用離散的晶粒元素與晶界元素來探討晶粒之間的膠結；而在非裂縫尖端的周遭區域則是利用連體力學來描述材料的潛變行為。晶粒邊界的組成律則考慮相關的微觀物理機制，包括晶粒邊界的黏滯性滑移以及晶粒邊界上空孔的生成與成長，而空孔的聚合會在晶界上產生微裂縫。主裂縫的延伸則是透過相鄰晶粒之間的界面微裂縫串連而成。利用本研究的耦合多尺度計算模擬可以探討晶粒微結構對裂縫生成的影響。

**關鍵字：**多晶材料、跨尺度、潛變、微觀力學、連體力學、晶粒邊界

### ABSTRACT

High temperature failure of polycrystalline ceramics spans a wide range of length scales. The micro-scale variations determine the macro-scale behaviors. In this paper, a multi-scales computational model is proposed to analyze intergranular creep crack growth in a polycrystalline aggregate in a discrete manner and based directly on the underlying physical micro-mechanisms. The crack tip process zone is used in which grains and their grain boundaries are represented discretely, while the surrounding undamaged material is described as a continuum. The constitutive description of the grain boundaries accounts for the relevant physical mechanics, such as viscous grain boundary sliding, the nucleation and growth of grain boundary cavities. Discrete propagation of the main crack occurs by linking up of the neighboring facet micro-cracks. The proposed model can be applied to study the effect of the grain micro-structure on crack growth.

**Keywords:** polycrystalline ceramics, multi-scales, creep, micro-mechanisms, continuum, grain boundaries

### 一、緒論

在高溫下多晶陶瓷材料的破壞為跨尺度的行為，亦即微觀的變化會影響其在巨觀下的行為[1]。在巨觀尺度（macroscopic）下，吾人所考慮的為試體上的裂縫造成之影響，如圖 1（a）所示；但在微觀尺度（microscopic）上晶粒邊界（grain boundary）上空孔的生成與成長（nucleation and growth of cavities）卻是影響破壞的關鍵機制，如圖 1（e）所示；而從介觀尺度（mesoscopic）上可決定這些微觀機制如何影響巨觀裂縫的行為反應。舉例而言，在圖 1（d）中可

觀察到晶粒與晶粒之間的邊界上存在著若干的空孔，而這些空孔會影響晶粒本身潛變（creep）以及晶粒之間相對滑移（sliding）的機制。當晶粒邊界上的空孔生長聚合到足夠大時便會在晶粒邊界上產生微裂縫，當微裂縫彼此串連時便會造成原巨觀試體上主裂縫的延伸，如圖 1（c）所示。若再將焦距調整至更大一點的尺度上，此時已無法分辨出多晶陶瓷材料的微觀晶粒結構，只能觀察到裂縫尖端的損壞發生（如塑性區或應力奇異區），而在裂縫尖端周遭之外的區域則無損壞狀況，材料僅會發生潛變的現象，如

圖 1 (b) 所示。

若欲完整地瞭解潛變破壞現象則必須考慮各種尺度下的力學機制，但這項工作在計算力學上相當不易。原因在於若單純利用微觀模型，則受限於計算量只能模擬局部的微小區域；而若單純採用巨觀模型，則無法充分考慮微觀機制對巨觀行為的影響。另一方面，不同尺度之間對應的特徵時間長度並不相同，且不同尺度的力學機制與應力分析（巨觀）以及材料微結構（微觀）息息相關，要將不同尺度的機制加以銜接組合有其困難。因此文獻上研究潛變破壞的方法多數是從工程上的巨觀尺度探討（top down），以非線性破壞力學與連體損壞模型為代表 [2-3]；或從材料方面的微觀尺度上（bottom up）探討空孔生成或晶界滑移所造成的影響 [4-5]，但鮮有結合不同機制的多尺度計算模擬。

本文旨在利用 ABAQUS 建構出一個探討多尺度潛變破壞的二維計算模型。在裂縫尖端區域係以大量的離散晶粒來模擬微觀機制，不同晶粒之間則透過自行定義的黏合元素（cohesive element）來模擬微裂縫，其中黏合元素的組成律是利用微觀力學的研究結果來描述，因此可以探討空孔生成與晶粒邊界的效應；另一方面，對於裂縫尖端周遭之外的區域，則利用傳統連體力學的方式來進行材料潛變的模擬，因此模型的尺寸不受限於微觀力學的微小局部範圍。此種架構亦可用於探討不同晶粒方向與形狀對巨觀行為的影響。

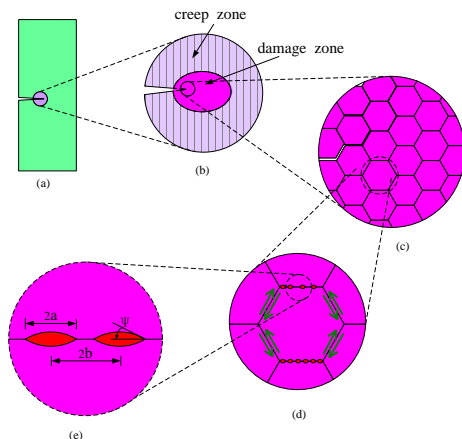


圖 1 潛變破壞的尺度效應示意圖

## 二、微觀尺度相關理論

本研究的材料模型是考慮裂縫尖端周遭區域的晶粒與遠離尖端的區域為彈性材料，並考慮潛變的影響。另一方面，裂縫尖端周遭區域內之晶粒與晶粒之間的邊界上則考慮空孔的生成、成長與聚合，並伴隨著晶粒的滑移現象。各種機制分述如後：

### 2.1 晶粒變形

晶粒之內的材料假設為均質等向彈性材料，並考慮潛變的作用，其潛變可用下式描述：

$$\dot{\epsilon}_{ij}^C = \frac{1+\nu}{E} \dot{s}_{ij} + \frac{1-2\nu}{E} \dot{\sigma}_{kk} \delta_{ij} + \frac{3A}{2} s_{ij} \sigma_e^{n-1} \quad (1)$$

上式中  $\epsilon_{ij}^C$  為潛變所造成的應變張量（strain tensor）； $E$  與  $\nu$  分別代表材料的彈性係數與鮑生比。 $\sigma_{ij}$  與  $s_{ij}$  分別代表應力張量（stress tensor）與在偏應力張量（deviatoric stress tensor）， $\delta_{ij}$  與  $\sigma_e$  分別為 Kronecker delta 與等效應力， $A$  為材料常數。而上標  $\cdot$  代表為時間增量的物理量。

### 2.2 晶界滑移

晶粒邊界一般可模擬成薄層結構，並滿足牛頓黏滯流行為（Newtonian viscous），亦即 [6]：

$$\dot{u}_s = w \frac{\tau}{\eta_B} \quad (2)$$

其中  $\dot{u}_s$  為相鄰晶界之間因為剪應力  $\tau$  作用下的相對滑移速度， $w$  為晶界厚度。而晶界的黏滯性係數  $\eta_B$  與晶界擴散有關，若晶粒邊界上含有異相雜質等不規則物則會增加黏滯性。然本文中為簡化起見，係將  $\eta_B / w$  視為獨立的材料常數。

### 2.3 晶粒邊界空孔

晶粒邊界上的空孔可利用半徑  $a$ ，半間距  $b$  以及形狀角  $\psi$  來描述，參見圖 2 (a)。本文假設形狀角在空孔成長過程皆維持定值為  $75^\circ$ ，則空孔體積  $V$  如下：

$$V = \frac{4}{3} \pi a^3 h(\psi) \quad (3)$$

上式中  $h$  為空孔形狀參數，其定義為

$$h(\psi) = [(1 + \cos \psi)^{-1} - \frac{1}{2} \cos \psi] / \sin \psi \quad (4)$$

晶粒邊界上的空孔會導致兩個相鄰晶粒的分離，此一正向分離間距可用下式描述：

$$\delta_c = V / (\pi b^2) \quad (5)$$

同樣為簡化起見，在此是採用平均的正向分離間距來取代原本離散分佈在晶界上的空孔群，如圖 2 (b) 所示。如此空孔體積與平均正向分離間距在晶粒邊界上為連續函數，而正向分離間距的時間變化率可寫成：

$$\dot{\delta}_c = \dot{V} / (\pi b^2) - 2V / (\pi b^2) \cdot (\dot{b} / b) \quad (6)$$

從上式中可看出：正向分離間距的時間變化率取決於空孔體積的時間變化率  $\dot{V}$  以及空孔半間距的時間變化率  $\dot{b}$ 。

空孔半間距的時間變化率在破壞形成期間主要源自於新空孔的生成，部分則源自於平面大變形下的效應。若在變形狀態下，空孔的密度為  $1/\pi b^2$ ；且定義  $N$  為每單位未變形晶粒邊界上的空孔密度，則其時間變化率可寫成：

$$\frac{\dot{b}}{b} = \frac{1}{2}(\dot{\varepsilon}_I + \dot{\varepsilon}_{II}) - \frac{1}{2} \frac{\dot{N}}{N} \quad (7)$$

其中  $\varepsilon_I$  與  $\varepsilon_{II}$  為晶粒邊界上之主軸對數應變，而空孔密的時間變化率則於下節討論。

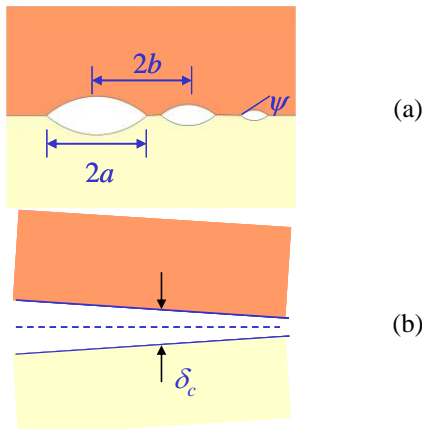


圖 2 晶粒邊界上的空孔示意圖

(a) 離散空孔；(b) 平均正向分離間距

## 2.4 空孔生成

由於目前仍無堅實的理论描述空孔生成 (cavity nucleation)，本文為簡化計算故採用現象學的模式來探討[7]。假設空孔生成是由晶粒邊界上的正向應力  $\sigma_n$  (facet normal stress) 以及局部的潛變率 (local creep rate) 所推動，其密度增加率可用下式描述：

$$\dot{N} = F_n (\sigma_n / \Sigma_0)^2 \dot{\varepsilon}_e^C \quad (8)$$

其中  $\Sigma_0$  與  $F_n$  分別為應力的正規化參數與關於空孔生成的材料參數，而  $\dot{\varepsilon}_e^C$  為有效潛變

應變率 (effective creep strain rate)。空孔一旦生成後，便按上式增加直至到達飽和的空孔密度  $N_{max}$ 。

然而上式隱含空孔在塑性變形之後便會在晶粒邊界生成，然而此與空孔實驗觀察到只在潛變後期空孔才會產生的現象並不相符。因此吾人假設必須克服臨界值之後才會產生空孔，由於空孔生成率與有效潛變應變率以及正向應力有關，因此定義控制參數  $S$  以及對應的臨界值  $S_{thr}$  如下：

$$S = (\sigma_n / \Sigma_0)^2 \dot{\varepsilon}_e^C \quad (9a)$$

$$S_{thr} = N_I / F_n \quad (9b)$$

其中  $N_I$  為空孔開始生成時對應的空孔密度。控制參數  $S$  必須大於臨界值  $S_{thr}$  之後才會驅動空孔生成。從上式中亦可看出當空孔生成的材料參數  $F_n$  值偏大時，此時對應的控制參數臨界值  $S_{thr}$  較小，代表容易生成空孔。

## 2.5 空孔成長

空孔體積的成長主要源自於分子從表面至晶粒邊界層的擴散效應以及周遭晶粒的潛變變形[8]，體積改變率可用下列方程式計算：

$$\dot{V} = \dot{V}_1 + \dot{V}_2 \quad (10)$$

其中  $\dot{V}_1$  與  $\dot{V}_2$  代表分子擴散以及潛變所造成的體積變化率。分子擴散所造成的體積變化率為：

$$\dot{V}_1 = 4\pi D \frac{\sigma_n}{\ln(1/f) - \frac{1}{2}(3-f)(1-f)} \quad (11a)$$

$$f = \max\left[\left(\frac{a}{b}\right)^2, \left(\frac{a}{a+1.5L}\right)^2\right] \quad (11b)$$

$$L = [D\sigma_e / \dot{\varepsilon}_e^C]^{1/3} \quad (11c)$$

上式中  $D$  為晶粒邊界擴散參數，而  $f$  則主要透過長度參數  $L$  來控制擴散與潛變兩種作用之間的耦合。對於  $a/L$  較小的狀況 (如  $a/L < 0.1$ )，則空孔體積的成長主要取決於擴散作用，而當  $a/L$  逐漸增加時，潛變所扮演的角色會逐漸重要。另一方面，潛變所造成的體積變化率可用下式計算：

$$\dot{V}_2 = \begin{cases} \pm 2\pi \dot{\varepsilon}_e^C a^3 h(\psi) \left[ \alpha_n \left| \frac{\sigma_m}{\sigma_e} \right| + \beta_n \right]^n, & \text{for } \pm \frac{\sigma_m}{\sigma_e} > 1 \\ 2\pi \dot{\varepsilon}_e^C a^3 h(\psi) \left[ \alpha_n + \beta_n \right]^n \frac{\sigma_m}{\sigma_e}, & \text{for } \pm \left| \frac{\sigma_m}{\sigma_e} \right| \leq 1 \end{cases} \quad (12a)$$

$$\alpha_n = 3 / (2n) \quad (12b)$$

$$\beta_n = (n-1)(n+0.4319) / n^2 \quad (12c)$$

而  $a$  與  $b$  分別代表空孔在不同時間下的半徑以及半間距，如圖 2 (a) 所示。而 (11) 式中計算所需的有效應力  $\sigma_e$  與平均應力  $\sigma_m$ ，可直接取與空孔相鄰的晶粒元素的應力值來簡化計算。

### 三、元素模型簡介

針對前述的微觀尺度相關理論，本研究欲開發相對應的數值計算方法。對於晶粒邊界的空孔生成、成長與聚合，以及晶粒本身的潛變行為一併納入考慮。利用使用者副程式 UEL 和 UMAT 分別開發各機制所對應的力學行為，其方法分述於後。

#### 3.1 晶粒元素

本文對於所欲探討的微觀區域視為六角形晶粒的集合，如圖 3 (a) 所示。其中六角形晶粒係利用兩個四邊形元素模擬，如圖 3 (b) 所示，稱之為晶粒元素 (grain element)；而晶粒元素與晶粒元素之間則是利用所謂的晶界元素 (grain boundary element) 來模擬空孔和潛變所造成的微裂縫。該晶界元素只有四個節點，且上、下的節點在微裂縫開裂之前是彼此重疊，隨著微裂縫生成與成長之後再逐漸分離，至於晶界元素的組成律將於後續討論。

晶粒元素的組成律依循均質等向彈性材料，並考慮潛變的作用，如方程式 (1) 所述。在此強調的是：ABAQUS 有提供既有的潛變模型支援方程式 (1) 所述的材料潛變組成律。但由於在後續晶界元素組成律的計算中，晶粒元素的應力資訊必須傳遞至使用者副程式 UEL 中，而 ABAQUS 所提供的 UEL 界面並不支援傳遞其他非 UEL 所定義的元素之應力資訊，為克服此一問題，本研究利用使用者副程式 UMAT 定義晶粒元素的應力與應變關係。

UMAT 是利用使用者副程式自行定義材料的力學性質，也就是在 UMAT 中必須描述該材料的應力與應變關係。對於本文所使用的潛變分析而言，其應力與應變之間的關係式如下：

$$\sigma_{ij}^{(n+1)} = \mathbf{D}(\varepsilon_{ij}^{(n+1)} - \varepsilon_{ij}^{C(n)}) \quad (13a)$$

$$\mathbf{D} = \frac{E}{(1+\nu)(1-2\nu)} \begin{bmatrix} 1-\nu & \nu & 0 \\ \nu & 1-\nu & 0 \\ 0 & 0 & 1-2\nu \end{bmatrix} \quad (13b)$$

上式中右上標括號中的  $n+1$  與  $n$  代表增量次數， $\sigma_{ij}$  與  $\varepsilon_{ij}$  分別代表應力全量與在應變全量。(13a) 式的物理意義即在於將應變全量扣除潛變所造成的應變之後，再利用等向彈性的組成律 (針對平面應變的問題) 計算對應的應力。而 (13b) 式的  $\mathbf{D}$  矩陣即為 UMAT 中所需要的 Jacobian matrix。值得一提的是 (13a) 式中潛變所造成的應變必須先將方程式 (1) 改為差分的型式再計算。而各晶粒元素計算所得的應力資訊皆儲存在 FOTRAN 程式中可設定的 common block，並藉此傳遞到後續的 UEL 之中。

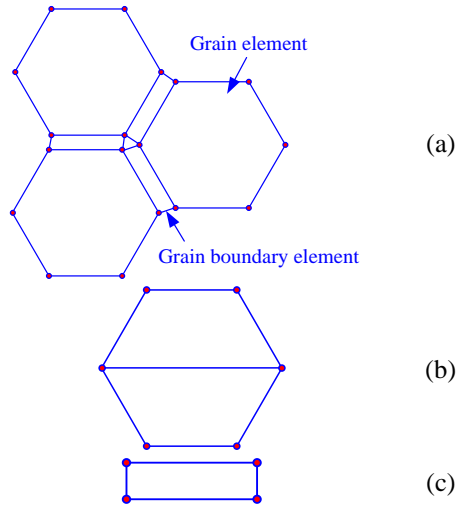


圖 3 晶粒元素與晶界元素示意圖

#### 3.2 晶界元素

將方程式 (7) 至 (12) 代入方程式 (6) 之後，可得晶粒邊界上應力與正向分離間距之間的關係，此一正向分離間距主要係由微觀理論中空孔的效應與材料潛變所造成。另一方面，晶粒滑動所造成的相對滑移改變率與剪應力之間的關係可由方程式 (2) 描述。這兩個方程式的物理意義即為定義晶粒邊界上的應力與分離間距改變率之間的關係 (law of traction and separation rate)，用以描述晶界元素的組成律。

凡是定義應力與分離間距之間的關係式在標準有限元素的模型中可用黏合元素 (cohesive element) 模擬。易言之，晶界元素就是一種廣義的黏合元素。值得注意的

是：ABAQUS 中雖然已定義不少應力一分離間距的型式提供黏合元素使用，但在本文的方程式 (2) 與 (6) 中定義的是應力一分離間距時間改變率的關係，而 ABAQUS 中並無提供任何與時間改變率 (rate form) 有關的黏合元素組成律模型，因此本研究利用使用者副程式 UEL 來定義晶界元素的組成律。

UEL 是使用者副程式自行定義元素的縮寫，在使用 UEL 開發晶界元素時，最重要的是必須定義 RHS 與 AMATRIX 兩項陣列。RHS 主要是計算該元素對系統方程式等號右邊項的貢獻，或簡單解釋為該元素對應之應力的體積分。另一方面，AMATRIX 則是定義該元素對整體勁度矩陣的貢獻；而所謂的勁度矩陣即是定義力與位移的關係。因此必須先將時間改變率的型式改為差分的型式，俾利定義晶界元素的應力與分離間距的關係。在剪應力與側向位移方面，可將方程式 (2) 改寫成：

$$\frac{\partial \tau}{\partial \Delta u_s} = \frac{\eta_B}{w \Delta t} \quad (14)$$

而在正向應力與正向位移方面，可將方程式 (6) 寫成：

$$\frac{\partial \sigma_n}{\partial \Delta \delta_c} = \frac{1}{\Delta t} \left( \frac{1}{\pi b^2} \frac{4\pi D}{\ln\left(\frac{1}{f}\right) - \frac{1}{2}(3-f)(1-f)} + \frac{V}{\pi b^2} \frac{1}{N \Sigma_0} \dot{\epsilon}_c^c \right)^{-1} \quad (15)$$

而勁度矩陣的定義如下：

$$\mathbf{D} = \begin{bmatrix} \frac{\partial \tau}{\partial \Delta u_s} & 0 \\ 0 & \frac{\partial \sigma_n}{\partial \Delta \delta_c} \end{bmatrix} \quad (16)$$

將 (14) 與 (15) 式代入 (16) 式即可得到 AMATRIX。

#### 四、結論與未來展望

本文利用 ABAQUS 的使用者副程式 UEL 自訂晶界元素的各項力學性質；同時利用 ABAQUS 的使用者副程式 UMAT 自訂晶粒元素考慮材料潛變的力學性質。前者在考慮晶粒邊界上空孔的生成、成長與聚合所產生的微裂縫，後者除考慮潛變的影響外，最重要的是透過 common block 將應力資訊傳遞給所需的 UEL，此自訂的 UEL 係為考慮時間改變率的廣義黏合元素。

利用本文所提出的多尺度計算模型可探討多晶材料晶粒之間潛變對主裂縫生長的影響，一方面考慮微觀尺度下的力學理論，一方面將此微觀理論融合在巨觀尺度下的元素組成律。利用本研究的耦合多尺度計算模擬可以探討晶粒微結構對裂縫生成的影響。

#### 五、參考文獻

- [1] P. Onck, and E.V. Giessen, "Micromechanics of creep fracture: simulation of intergranular crack growth," *Comp. Mat. Sci.*, Vol. 13, No. 2, 1998, pp. 90-102
- [2] D.R. Hayhurst, P.R. Brown, and C.J. Morrison, "The role of continuum damage in creep crack growth," *Phil. Trans. Roy. Soc.*, A311, 1984, pp. 131-158
- [3] V. Tvergaard, "Analysis of creep crack growth by grain boundary cavitation," *Int. J. Fracture*, Vol. 31, 1986, pp. 183-209.
- [4] A. Nddleman, J.R. Rice, "Plastic creep flow effects in the diffusive cavitation of grain boundaries," *Acta Metall.*, Vol. 28, 1980, pp. 1315-1332
- [5] F. Ghahremani, "Effect of grain boundary sliding on steady creep of polycrystals," *Int. J. Solids Struc.*, Vol. 16, 1980, pp. 847-862.
- [6] M.F. Ashby, "Boundary defects and atomistic aspects of boundary sliding and diffusional creep," *Surface Sci.*, Vol. 31, 1972, pp. 498-542.
- [7] B.F. Dyson., "Continuous cavity nucleation and creep fracture," *Scr. Metall.* Vol. 11, 1983, pp. 31-37.