多孔陶瓷材料力学特性的离散单元法定量模拟

周爽^{1,2}, 苏景林², 刘晓星^{2,3*}, 安百钢^{1*}, 喻寅⁴, 贺红亮⁴, 张泉⁵, 冯勇进⁵, 王晓宇⁵

1. 辽宁科技大学化学工程学院, 鞍山 114051;

2. 中国科学院过程工程研究所, 多相复杂系统国家重点实验室, 北京 100190;

3. 中国科学院大学化学与化工学院, 北京 100049;

4. 中国工程物理研究院流体物理研究所, 冲击波物理与爆轰物理实验室, 绵阳 621900;

5. 核工业西南物理研究院, 成都 610041

*联系人, 刘晓星, E-mail: xxliu@ipe.ac.cn; 安百钢, E-mail: baigang73@126.com

收稿日期: 2018-09-29; 接受日期: 2018-11-14; 网络出版日期: 2019-03-07

国家自然科学基金委员会与中国工程物理研究院联合基金(编号: U1630105)、国家自然科学基金(编号: 21576265, 51672117)和国家重点研发计划政府间国际科技创新合作专项磁约束核聚变能发展研究(编号: 2017YFE0300602)资助

摘要 本文基于离散单元法, 模拟研究了多孔陶瓷在拟静态加载条件下的力学响应特性. 在数值试样制备上, 采用各向同性压缩的方式获取不同固含率的数值试样, 然后基于Coble烧结模型计算微观颗粒之间的接触尺寸. 为考虑多体作用下固体键之间的空间耦合效应, 对经典的Hertz接触模型进行了修正, 引入了一反映晶粒间接触尺寸和晶粒间空间几何排列特性影响的校正因子. 随后以部分烧结三氧化二铝陶瓷材料为研究对象, 检验了所建立的离散单元法数值模拟方法的定量预测能力. 模拟结果表明, 所预测的有效杨氏模量和断裂强度与文献报道的实验数据能很好地定量吻合; 对于含大孔洞的部分烧结三氧化二铝陶瓷材料的模拟结果表明, 无论是孔洞之间的相互作用特性, 还是孔洞排列型式对材料有效杨氏模量和断裂特性的影响, 模拟结果都能与文献报道的理论分析结果和有限元分析结果定量吻合. 这些定量对比结果表明, 本文建立的离散单元法数值模拟方法, 可以用来定量地预测多孔陶瓷的力学特性.

关键词 多孔陶瓷, 颗粒态物料, 断裂强度, 定量预测, 离散单元法

PACS: 07.05Tp, 68.35.Ct, 71.15.Dx, 74.62.Bf

1 引言

多孔陶瓷具有耐高温、抗腐蚀、强度高、化学性能稳定等优点, 在热阻件、膜分离、仿真骨骼、固体氧化燃料/电解电池等领域得到广泛的应用^[1-3]. 在多数应用中, 多孔陶瓷的空隙率一般维持在20%–50%范

围, 以确保其实现一定的输运功能性^[4]. 多孔陶瓷的空隙来自两部分: 一部分源自于粉体颗粒烧结过程中留下的颗粒间空隙, 另一部分源自于造孔剂形成的孔洞. 在多数应用中, 实现多孔陶瓷的最优输运功能性和维持其最佳力学稳定性一般是相互矛盾的. 譬如对于固体燃料电池的电极/电解质材料, 为了保证其良好的反

引用格式: 周爽, 苏景林, 刘晓星, 等. 多孔陶瓷材料力学特性的离散单元法定量模拟. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2019, 49: 064602
Zhou S, Su J L, Liu X X, et al. Quantitative simulation of mechanical properties of porous ceramic materials by discrete element method (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2019, 49: 064602, doi: [10.1360/SSPMA2018-00332](https://doi.org/10.1360/SSPMA2018-00332)

应物和产物的扩散/输运及较大的三相反应界面, 一般需要保证一定的空隙率, 但空隙率的增大会导致其杨氏模量和断裂强度急剧下降, 从而影响其力学稳定性^[3,5]. 这主要是因为在外荷载作用下, 孔穴附近会形成应力集中, 从而容易形成裂纹. 多孔陶瓷的宏观力学属性不仅与空隙率有关, 还与其内部孔的形状、尺寸、空间分布以及晶粒尺寸、晶粒间作用属性等微观信息密切相关^[3,6-8]. 因此, 深入认识和准确预测多孔陶瓷的力学特性, 尤其是其微观结构对宏观力学特性的影响, 对于多孔陶瓷的开发和微结构设计具有重要的意义^[8].

在材料力学性能分析方面, 计算机模拟由于可以克服力学实验中样品制备及测试手段复杂/困难、多参数交互影响等局限, 正逐渐成为分析、预测材料复杂力学特性的一种有力研究辅助手段. 相较于原子尺度的分子动力学以及宏观尺度的有限元、近场动力学等方法, 从陶瓷材料基本微元-晶粒-尺度出发的离散单元法, 由于其在考虑材料微结构及处理破碎方面的独特优势, 在材料力学领域得到广泛的应用. 在离散单元法数值模拟中, 宏观连续的材料体被离散为一系列颗粒, 颗粒与颗粒之间通过假想的固体键绑定在一起, 通过计算固体键的变形得到颗粒的受力, 进而通过牛顿方程得到整个宏观材料体的力学演化^[9]. 研究人员基于离散单元法, 通过改变微观晶粒形状、晶粒尺寸分布、晶粒间相对排列形态等, 研究了撞击或压缩作用下微观结构对宏观脆性颗粒破碎特性的影响^[10-13]. Huang等人^[14]通过将热传导模型耦合入离散单元法, 模拟考察了核燃料陶瓷颗粒在受热作用下颗粒内部裂纹的形成和传播过程. Groh等人^[15]和Maheo等人^[16]通过设置晶粒间不同的相互作用参数, 研究了复合材料中微观裂纹的生成和扩展过程. Nohut^[17]基于离散单元法商业软件PFC2D, 通过设置晶粒间固体键临界断裂强度不同的概率分布, 模拟研究了残余应力对陶瓷材料断裂韧性的影响. Tan等人^[18,19]采用PFC2D模拟研究了 Al_2O_3 和SiC材料在刻蚀过程中微观裂纹的形成. Jiang等人^[20]通过在SiC材料中布置条形缺陷, 模拟考察了压缩作用下材料的破坏过程以及缺陷对宏观杨氏模量和断裂强度的影响趋势.

尽管离散单元法已被广泛用于材料力学领域的研究, 但目前绝大多数文献报道都侧重于对材料破坏过程以及参数影响规律的定性描述, 材料宏观力学响应

特性的定量预测相关文献报道还较少. Jefferson等人^[21]通过开展有限元应力分析发现, 当一个颗粒单元同时和周围几个颗粒单元发生接触且接触面积较大时, 颗粒单元间的作用力会明显偏离经典的Hertz模型预测结果. Wang等人^[22]通过实验和理论分析也观察到类似的现象. Jefferson等人^[21]基于他们的有限元分析结果, 在Hertz模型中引入一校正因子 f , f 是颗粒单元间接触面积、颗粒单元间空间排列位形和材料泊松比的函数. 基于该修正模型, Jefferson等人^[21]定量预测了材料杨氏模量随晶粒接触尺寸的变化. Fujita等人^[23]在Jefferson等人^[21]提出的接触作用模型基础上, 通过引入了固体键破坏准则, 模拟研究莫来石——三氧化二铝材料的力学行为. 在我们的前期工作中, Liu等人^[3,4]将Jefferson等人^[21]提出的单元作用模型和Fujita等人^[23]提出的固体键断裂准则引入到三维离散单元法软件dp3D, 研究了多孔陶瓷材料在拉伸和压缩作用下的力学响应特性, 定量准确地预测了材料杨氏模量、断裂强度和断裂韧性随材料空隙率的变化.

与物理实验类似, 在采用离散单元法模拟陶瓷材料力学性能之前, 必须要在数值上制备“试样”. 常见的策略是首先在计算区域中生成任何颗粒间都不存在接触的“粒子气”, 随后将其压缩至设定的空隙率, 最后以一定的准则在颗粒之间设置虚拟的固体键^[24]. 这一策略的好处是计算简单, 其最大的缺点是固体键参数的设置带有随意性和不确定性, 为了与实验结果吻合必须要对固体键属性进行试差校正^[20,24], 从而限制了数值模拟的定量预测能力. 另一种策略是基于烧结动力学, 直接模拟颗粒烧结过程^[3-5]. 这一策略的优点是, 在采用准确的烧结动力学以及足够的计算积分精度前提下, 能够从数值上给出与真实烧结材料相吻合的微观结构^[3,5], 其缺点是计算极其耗时. 本文将这两种策略的优点结合起来, 采用各向同性压缩策略将“粒子气”压缩至给定的空隙率, 随后基于烧结动力学计算出颗粒间固体键的半径, 并相应地设置固体键的力学属性.

本文的主要目的是检验所采用的数值试样制备方法和离散单元法接触模型, 能否定量地预测陶瓷材料的力学响应特性. 为此本文工作开展了两系列数值模拟: (1) 以不含大孔洞的部分烧结三氧化二铝陶瓷材料为对象, 模拟考察了其有效杨氏模量和断裂强度随空隙率的变化, 进而通过与文献报道的实验数据进行

对比, 检验数值模拟的定量预测能力; (2) 模拟研究了含两孔洞脆性材料的力学响应特性, 通过与文献报道的有限元模拟结果和理论分析结果对比, 考察了本文工作所开发的离散单元法程序对具有微观非均质结构陶瓷材料力学响应特性的定量预测能力, 以为下一步工作中模拟研究含更复杂微观结构的实际陶瓷材料奠定基础.

2 离散单元法模型

本文的离散单元法数值模拟中, 总共可存在3种不同的颗粒作用形式: 初始时刻没有绑定在一起的颗粒接触作用(Non-bonded); 绑定在一起的颗粒接触作用(Bonded); 初始时刻绑定在一起但后期固体键断裂的颗粒接触作用(Bond-broken). 下文将对这3种不同作用形式所采用模型进行简要描述, 详细的模型阐述可参考Martin等人^[25]及Liu等人^[4]的前期工作.

对于Non-bonded接触作用, 其法向力 N_c 和切向力 T_c 分别由以下公式计算:

$$N_c = \frac{4}{3} \frac{E}{1-\nu^2} \frac{a^3}{2R^*} - 2\pi w R^*, \quad (1)$$

$$|T_c| = \min \left(2 \frac{Ea}{(2-\nu)(1+\nu)} u_t, \mu |N_c| \right), \quad (2)$$

其中, E 和 ν 为材料的杨氏模量和泊松比; μ 为摩擦系数; w 为吸附能, 本文中其数值近似为2倍的表面自由能 $(2\gamma_s)$ ^[4,23]; a 为颗粒间接触半径, R^* 为等效半径 $\frac{R_1 R_2}{R_1 + R_2}$, u_t 为切向位移.

Non-bonded接触模型用于计算“粒子气”各向同性压缩过程中颗粒间作用力, 以及颗粒绑定后陶瓷材料拉伸模拟中初始时刻未发生颗粒接触但后期发生接触的颗粒间作用力. 需要指出的是, 为了尽可能避免孤立颗粒(没有和任何其他颗粒发生接触)的形成及最小化颗粒架拱^[26,27], “粒子气”压缩过程中摩擦系数 μ 取为0, 颗粒之间的黏附作用由DMT模型计算. Martin和Bordia^[28]的模拟结果表明, 采用DMT模型或者JKR模型计算颗粒间黏附作用对于压缩结果无明显影响.

对于Bonded接触作用, 其法向力 N_b 和切向力 T_b 分别由以下公式计算:

$$N_b = \frac{E}{1-\nu^2} f_N a_b u_N, \quad (3)$$

$$T_b = \frac{2E}{(2-\nu)(1+\nu)} f_T a_b u_T, \quad (4)$$

式中, u_N 和 u_T 分别为法向和切向相对位移; a_b 为颗粒间固体键的半径; f_N 和 f_T 分别为法向和切向力校正因子, 它们反映的是当一个颗粒同时和几个颗粒绑定在一起时, 固体键之间的空间耦合效应^[29]. 依据Jefferson等人^[21]的研究结果, 采用以下公式计算:

$$f_N = \frac{1 + a^* \left[\frac{\pi}{6} (1-\nu^2)(1+2a^*) - a^* \right]}{\sqrt{1-a^{*2}} - \varphi \left(a^* + a^{*2} \left[\frac{\pi}{6} (1-\nu^2)(1+2a^*) - a^* \right] \right)}, \quad (5)$$

$$f_T = \frac{1 + a^* \left[\frac{\pi}{6} (1-\nu^2)(1+2a^*) - a^* \right]}{\sqrt{1-a^{*2}}}, \quad (6)$$

式中, a^* 为无量次半径($a^* = a_b/R^*$). φ 为反映固体键之间相互作用的几何作用因子. 理论上, φ 的数值可通过颗粒上固体键的空间相对位置计算得到. 但对于离散单元法数值模拟来说, 每一个时间都要更新每一个固体键所对应的 φ 的数值显然太过耗时. 因此, 受计算能力的限制, 本文对于所有的固体键, φ 都设置为常数 φ 值由实验数据拟合得到, 这也是本数值模拟工作中所用到的唯一一个拟合参数.

切向力会导致颗粒发生旋转. 对于绑定在一起的颗粒, 由于固体键的存在, 它们之间的相对旋转显然会受到限制. 有鉴于此, 本模型在法向和切向方向上引入了转动阻力矩 M_N 和 M_T , 如图1所示.

$$M_N = -\frac{8ER^{*3}}{(2-\nu)(1+\nu)} f_T a^{*3} \theta^N, \quad (7)$$

$$M_T = -\frac{2ER^{*3}}{(2-\nu^2)} f_N a^{*3} \theta^T, \quad (8)$$

其中, θ^N 和 θ^T 分别表示法向和切向方向相对转动角度.

当颗粒间固体键所受到的应力 σ_b 大于某一临界应力 σ_c 时, 固体键会发生断裂. 基于Zimmermann等人^[30]和Fujita等人^[23]的研究结果, σ_c 由以下公式计算得到:

$$\sigma_c = \sqrt{\frac{E}{1-\nu^2} \frac{\Gamma}{\pi a_b}}, \quad (9)$$

其中, Γ 为固体键的断裂韧度, 其值近似为2倍的表面自由能 $2\gamma_s$ ^[23]. 本文不考虑穿晶破裂, 仅考虑拉伸和剪切所导致的固体键破坏, 断裂准则如下:

$$\sigma_{\text{tension}} = -\frac{N_b}{\pi a^{*2} R^2} + 4 \frac{|M_b^T|}{\pi a^{*3} R^3} > \sigma_c, \quad (10)$$

图 1 绑定在一起的颗粒对接触的三种状态. (a) 初始状态; (b) 固体键断裂; (c) 颗粒再次发生接触

Figure 1 Three possible states of initially bonded particles. (a) Initially bonded status; (b) bond-broken status; (c) re-contact after fracture.

$$\sigma_{\text{shear}} = \frac{T_b}{\pi a^* R^2} + 4 \frac{|M_b^N|}{\pi a^* R^3} > \sigma_c. \quad (11)$$

颗粒间固体键断裂后, 这两个颗粒仍然可能会发生接触(Bond-broken). 本文考察的是材料在拟静态加载情况下的破坏过程, 颗粒之间的相对平动和转动位移较小. 因此, 假设固体键断裂之后, 当这两个颗粒之间的距离小于它们初始时刻的距离 h_0 时(见图1), 它们之间再次发生接触作用.

$$N_{bb} = N_b - 2\pi\omega R^*, \quad (12)$$

$$T_{bb} = \min(T_b, \mu N_{bb}). \quad (13)$$

式(12)右侧第二项表示由于固体键断裂形成新自由表面导致的黏附作用. 固体键断裂之后, 颗粒间可在法线方向自由旋转($M_N=0$), 但颗粒接触面会对切向方向的

相对旋转产生阻碍作用(M_T), 如图1所示.

3 数值试样制备

图2给出了数值试样的制备过程. 首先在计算域中随机生成给定数目的颗粒, 且保证任何颗粒之间不存在几何接触. 颗粒的粒径在 $(0.95, 1.05)\bar{d}$ 之间随机生成, 以避免形成规则晶格结构. 在 z 方向, 计算域的上下边界设置为边壁, 在 x 和 y 方向设置为周期性边界. 模拟中, 始终保持 $\sigma_{xx}=\sigma_{yy}=\sigma_{zz}$, 以 $\Delta\sigma=10^{-7}E$ 为增量, 基于应力伺服机制^[26], 将“粒子气”压缩至不同的应力状态(图2(a)→图2(b)). 对于压缩后的试样, 首先将 x 和 y 方向边界由周期性边界改为自由表面, 随后以颗粒之间的距离 h_0 为标准, 当 $h_0 < (R_1 + R_2)$ 时, 在这两个颗粒之间设

图 2 (网络版彩图)数值试样制备过程

Figure 2 (Color online) Procedure of sample generation.

置固体键(图2(b)→图2(c)). 需要指出的是, 在压缩过程中, 颗粒间接触面半径 a 的计算没有考虑颗粒的变形($\sqrt{R_1^2 - a^2} + \sqrt{R_2^2 - a^2} = h_b$). 显然, 如果将固体键的半径设置为 a 会导致颗粒质量不守恒. 在实际的粉体烧结过程中, 粉体颗粒之间固体键的形成是由质量扩散所导致^[31]. 因此, 基于Martin和Bordia^[32]的研究结果, 本研究工作中采用Coble模型^[33]计算颗粒间固体键的半径 a_b :

$$a_b^2 = 4R^*h_b. \quad (14)$$

为了在数值试样中构造给定尺寸的孔洞, 模拟中以物料质心为对称点, 依据孔洞之间的距离 l 和方位角 θ , 确定孔洞 x 和 z 方向位置; 随后以孔洞直径 D_{pore} 为标准, 确定厚度为试样 y 方向厚度的圆柱形区域, 将所有质心位于该圆柱形区域的颗粒删除(图2(c)→图2(d)).

制备得到数值试样后, 将底部边壁固定, 上部边壁以速度 εH (ε 为应变率, H 为试样高度)向上匀速运动以拉伸试样直至试样断裂. 模拟中 ε 取值足够小以确保系统处于拟静态, 即 $I = \varepsilon \bar{d} / \sqrt{\sigma_{zz} / \rho} \ll 10^{-3}$ ^[27]. 为了加快数值模拟的进度, 模拟中在确保 $I = 10^{-3}$ 的前提下依据 σ_{zz} 数值逐步放大颗粒密度以增大时间步长^[26,27]:

$$\Delta t = 0.02 \sqrt{m^* / \left(f_N \frac{E}{1 - \nu^2} a_b \right)},$$

$m^* = m_1 m_2 / (m_1 + m_2)$ 与试样尺寸和应变率 ε 取值无关, 模拟考察了尺寸分别为 $20\bar{d} \times 20\bar{d} \times 60\bar{d}$, $30\bar{d} \times 10\bar{d} \times 90\bar{d}$, $30\bar{d} \times 30\bar{d} \times 90\bar{d}$ 三组试样(数字分别代表试样在 x , y , z 三个方向的尺寸, 见图2), 在应变率 $\varepsilon = 10^{-5}$, 10^{-6} s^{-1} 条件的拉伸结果. 图3给出了模拟得到的无因次杨氏模量

(E/E_{material})和断裂强度(σ_f). 可以发现, 当试样的最小尺度大于等于 $10\bar{d}$ 、应变率 $\varepsilon \leq 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ 条件下, 试样尺寸和应变率的取值对模拟得到的宏观杨氏模量和断裂强度的影响基本可忽略.

为了检验数值模拟的定量预测能力, 本文开展了两个系列拉伸数值模拟: (1) 以不含大孔洞的宏观均质试样(图2(c))所示为对象, 考察其有效杨氏模量和拉伸断裂强度随空隙率的变化. 模拟中将材料物性设置三氧化二铝材料物性, 颗粒平均直径 $\bar{d}$ 设置为 $1 \mu\text{m}$, 如表1所示, 以便与Ostrowski等人^[34]报道的实验结果进行定量对比. (2) 以含有两孔洞的试样(图2(d))为对象, 考察不同孔排列下试样的力学响应特性. 这部分工作的主要目的是检验本工作所建立的离散单元法数值模拟方法在研究局部应力集中现象上的定量预测能力, 以便为后续模拟研究含复杂孔洞结构试样力学响应特性奠定基础. 不同于含多个大孔洞试样, 外荷载作用下含两孔洞试样内部的应力分布及断裂强度, 文献中有相关理论分析和有限元数值模拟的报道^[35-38], 从而便于对比本文模拟结果和文献报道结果. 基于图3的模拟结果, 本文对于无大孔洞的宏观均质试样, 试样尺寸统一取为 $30\bar{d} \times 30\bar{d} \times 90\bar{d}$. 对于有大孔洞的试样, 为了避免边界效应, 试样尺寸取为 $120\bar{d} \times 10\bar{d} \times 240\bar{d}$. 应变率 ε 设置为 10^{-6} s^{-1} . 为了考察模拟结果的重复性, 对于每一系列算例, 采用不同的随机数生成5组不同的“粒子气”以制备不同的模拟试样, 下文中所有的模拟数据点都是5个试样模拟结果的平均值. 需要指出的是, 由于几何效应, 边壁附近的空隙率一般要大于试样中心的空隙率^[39]. 由于本文重点是探究试样本身的力学响应特性而非边界效应, 因此在所有的模拟算例

图3 (网络版彩图) 试样尺寸(a)和应变率(b)对模拟结果的影响

Figure 3 (Color online) Influences of sample size (a) and strain rate (b) on simulation results.

表 1 模拟参数设置

Table 1 Simulation parameter setting

参数	数值
Material	Alumina (Al_2O_3)
Young's modulus (E)	400 GPa
Poisson's ratio (ν)	0.25
Surface energy (γ_s)	1 J m ⁻²
Friction coefficient (μ)	0.5
Particle size ($\bar{d}$)	1 μm

中, 将壁面附近约 $8\bar{d}$ 区域中的所有固体键的断裂强度设置为无穷大, 以避免裂纹在边壁附近产生.

4 结果与讨论

4.1 宏观均质试样模拟结果

图4给出了拉伸作用下典型的试样破坏过程, 颗粒的颜色代表与该颗粒相连的固体键的断裂个数. 图5给出了对应的应力应变曲线. 模拟中应力即可以通过上(下)边壁的受力计算得到($\sigma_{zz, \text{up-wall}}$, $\sigma_{zz, \text{bottom-wall}}$), 也可以通过颗粒之间的接触力计算得到^[40]

$$\sigma_{jk, \text{pp}} = \frac{1}{V} \sum_{\text{contacts}} (R_1 + R_2 - h) n_j (N n_k + T_k), \quad (15)$$

其中, V 试样体积, n 为法向接触向量. 本文所有模拟算例中, 在试样完全被断裂之前, $\sigma_{zz, \text{up-wall}}$, $\sigma_{zz, \text{bottom-wall}}$ 和 $\sigma_{zz, \text{pp}}$ 三者之间的误差小于1%. 这再次证明了模拟试样

确实处于近似力平衡的拟静态加载状态.

图4表明, 随着拉伸的进行, 试样内部逐步发生固体键的断裂. 通过追踪固体键的断裂顺序发现, 这些断裂的固体键半径都较小. 对于图4所示的模拟算例, 固体键的平均半径 $\bar{a}_b / (0.5\bar{d})$ 约等于0.457. 分析结果表明, 在应力达到峰值之前断裂的固体键的半径 $a_b / (0.5\bar{d})$ 都小于0.597. 由式(3)可以看出, 在发生同等变形(u_N)的条件下, a_b 越小, 固体键所受到的应力越大, 因此更容易发生断裂. 值得注意的是, 这些较弱的固体键的断裂并没有改变宏观应力随应变的变化规律, 如图5所示. 图5给出了图4所示试样破坏过程所对应的应力-应变曲线以及固体键断裂数目随应变的变化. 可以看到, 在应力 $\varepsilon_{zz} < 0.09\%$ 范围, 已经发生了一些固体键的断裂, 但应力随应变呈线性单调增大这一趋势没有发生变化. 当应变达到0.1%左右, 在试样自由表面形成明显的微裂纹(图4(c)), 该裂纹迅速沿水平方向扩展(图4(d)), 最终导致试样完全断裂(图4(e)). 与此相对应, 应力在裂纹扩展过程中急剧下降, 见图5中应力-应变曲线的c-e区间. 本文没有考虑穿晶破坏, 固体键只能因拉伸(Tension)或者剪切(Shear)作用而发生断裂, 见式(10)和(11). 可以看到, 在应力单调上升阶段(应力-应变曲线的a-c区间), 固体键的断裂主要源自于拉伸作用, 剪切作用导致的固体键断裂基本可忽略. 一旦导致试样完全破坏的裂纹开始形成(图4(c)), 在裂纹的水平传播过程中会有一部分固体键因剪切作用而断裂. 但是相比于拉伸作用, 剪切作用导致的固体键断裂

图 4 (网络版彩图)典型的试样拉伸断裂过程. 相对密度 $D=0.76$

Figure 4 (Color online) Typical fracture process of sample under tensile loading. Relative density $D=0.76$.

图 5 (网络版彩图) 拉伸作用下典型的应力-应变曲线. 相对密度 $D=0.76$

Figure 5 (Color online) Typical stress-strain curve during tensile loading. Relative density $D=0.76$.

所占比重较低, 绝大多数固体键都是因为拉伸作用而断裂.

基于应力-应变曲线可得到材料的宏观杨氏模量和断裂强度. 图6给出了杨氏模量随试样相对密度 ($D = \sum V_p / V$, V_p 为颗粒体积) 的变化规律. 图中实验数据引自 Ostrowski 等人^[34] 报道的实验结果. 在他们的实验中, 陶瓷试样由平均粒径为 $1 \mu\text{m}$ 的三氧化二铝粉末经高温烧结制得. 图6表明, 数值模拟结果与几何作用因子 $\bar{\nu}$ 的取值密切相关, 对于给定的相对密度, 杨氏模量 E 随 $\bar{\nu}$ 的增大而增大. 图6中也给出了 Hertz 模型, 即 $f_N = f_T = 1.0$ 时的模拟结果. 可以看到, Hertz 模型的预测结果明显偏离了实验值, 且与实验值的偏差随相对密度的增大而增大. 这主要是因为颗粒间接触面积随着相对密度增大而增大, 从而导致更强的固体键空间耦合效应^[21,29]. 图6表明, 当 $\bar{\nu} = 0.37$ 时模拟结果与实验结果能很好地定量吻合. 对于泊松比 $\nu=0.25$ 的情况, 依据 Jefferson 等人^[21] 的有限元分析结果, $\bar{\nu}$ 的数值位于 $(-0.5, 0.38)$ 区间, 具体值与颗粒间相对排列结构有关. 基于图6的模拟结果, 在下文讨论的所有模拟算例中, $\bar{\nu}$ 都设置为 0.37 . 需要特别指出的是, 当 $\bar{\nu} = 0.37$ 时, 在所考察的相对密度范围内模拟结果都能和实验结果定量吻合. 这说明对于给定的多孔陶瓷材料, 只要有一个杨氏模量的实验数据以校正 $\bar{\nu}$ 的取值, 就能模拟预测其他相对密度下的杨氏模量. 这也说明本文所采用的接触模型具有很好的预测能力.

图7对比了模拟得到的断裂强度和实验数据. 实验

图 6 (网络版彩图) 杨氏模量随试样相对密度的变化规律

Figure 6 (Color online) The variations of Young's modulus versus the relative density of sample.

数据是由四点弯曲加载实验得到. 四点弯曲加载下, 导致试样破坏的裂纹源自于变形度最大的自由表面, 该自由表面显然主要承受拉应力的作用. 因此, 尽管模拟中所采用的简单拉伸加载与实验中试样的加载方式存在差异, 但考虑到材料的破坏机理类似, 我们认为这两组数据应具有可比性. 图7表明, 在所考察的相对密度范围内, 数值模拟结果与实验数据都能很好地定量吻合. 需要指出的是, 数值模拟预测的断裂强度与固体键断裂初度 Γ 的取值密切相关, 见式(9). 参考 Fujita 等人^[23] 的研究结果, 在本研究工作中 Γ 近似为 2 倍的表面自由能 ($2\gamma_s$). 对于微米级的三氧化二铝晶粒, 其表面自由能约为 1 J m^{-2} 左右^[23,41]. 图7所示的模拟结果与实

图 7 (网络版彩图) 断裂强度随相对密度的变化

Figure 7 (Color online) Variations of fracture strength with relative density.

验数据良好的定量吻合说明, 在微观颗粒尺度, 将因烧结而黏连在一起的两个陶瓷粉末颗粒之间的固体键的断裂韧度可近似为2倍的表面自由能.

4.2 孔洞空间排列形式对力学响应特性的影响

为了考察孔洞之间的相互作用对材料宏观力学响应特性的影响, 本文开展了两系列模拟算例: (1) 将孔洞之间的方位角 θ 固定为 0° , 即孔洞水平排列(垂直于拉伸方向), 改变孔洞之间的距离 l ; (2) 固定孔洞之间的距离 l , 改变孔洞之间的方位角 θ . 模拟中, 孔洞的直径 D_{pore} 固定为 $12\bar{d}$.

图8给出了 $\theta=0^\circ$, $l=6d$ 条件下, 试样破坏之前应力等高图(σ_{zz})和试样的破坏过程. 由图8(a)可以看到, 在平行于拉伸方向, 孔洞两侧的应力为负值, 表明该区域晶粒受到压缩而非拉伸作用; 在垂直于拉伸方向, 孔洞

两侧形成了明显的应力集中, 应力显著大于其他区域的应力. 定性上, 孔洞附近的这种应力分布形式与文献报道的有限元模拟结果^[2,7]一致. 由于孔洞造成的应力集中效应, 裂纹最先在孔洞边缘生成(图8(b)–(d)), 随后沿水平方向扩展, 最终导致试样被破坏.

图9(a)给出了试样被破坏前相同应变(ε_{zz})条件下, 不同孔间距下两孔之间的局部应力分布(σ_{zz}). 对比 $l=6d$ 和 $l=16d$ 模拟结果可以发现, 较小的孔间距显著提高了孔边缘处的应力. 由于裂纹首先是由孔边缘处生成, 因此这一结果说明减小孔间距会降低试样的断裂强度. 对于 $l=16d$ 和 $30d$ 工况, 孔边缘处应力近似相等, 说明此时孔间距对试样断裂强度的影响不大. 由孔边缘开始应力逐步下降, 直至 $x \approx 6d(0.5D_{\text{pore}})$ 处, 达到饱和值. 图9(b)给出了孔间距对试样杨氏模量和断裂强度的影响. 与图9(a)结果一致, 随着孔间距的增大, 断

图 8 (网络版彩图) σ_{zz} 等高图(a)和裂纹传播过程((b)–(d)). $\theta=0^\circ$, $l=6d$

Figure 8 (Color online) The contours of σ_{zz} (a) and the fracture process (b)–(d). $\theta=0^\circ$, $l=6d$.

图 9 (网络版彩图) (a) 不同孔间距下孔之间的 σ_{zz} 分布; (b) 孔间距对杨氏模量和断裂强度的影响($D_{\text{pore}}=12d$, $\rho=0.02$)

Figure 9 (Color online) (a) The variations of σ_{zz} in between the two pores for different pore distances; (b) the influence of pore distance on Young's modulus and fracture strength ($D_{\text{pore}}=12d$, $\rho=0.02$).

裂强度和杨氏模量先单调增加; 当孔间距 l 达到一临界值(约等于孔直径 D_{pore})后, 断裂强度和杨氏模量近似保持恒定. 定量上, 这一结果与Meguid和Shen^[35]的理论分析结果以及Schneider等人^[38]的有限元模拟结果吻合. Meguid和Shen^[35]分析了不同加载条件下两个孔洞之间的相对排列对于孔边缘处应力分布的影响. 按照他们得到的理论计算公式, 当孔间距约等于孔直径时, 孔边缘处的应力不再随孔间距变化. Schneider等人^[38]基于有限元数值模拟, 考察了不同Weibull模数条件下孔间距对试样断裂强度的影响, 他们的数值模拟结果也表明, 当孔间距大于孔直径后, 其对断裂强度的影响近似可忽略.

图10给出了孔洞之间的方位角 θ 对试样断裂强度和杨氏模量的影响. 模拟中固定 $l=16d$, $D_{\text{pore}}=12d$. 对于每一个 θ 值, 尽管不同随机数生成的试样之间的断裂强度有所不同, 但如果观察每一个 θ 值下试样的平均断裂强度 σ_f , 可以发现 σ_f 随 θ 呈非单调变化: σ_f 在 $\theta \approx 30^\circ$ 附近达到一最小值. 该临界角度非常接近Meguid和Shen^[35]的理论结果. 他们的分析结果表明, 在 $\theta=30^\circ$ 条件下孔洞边缘的应力集中效应最明显. Hu和Chen^[36]基于有限元数值模拟, 分析了孔洞之间的方位角对材料杨氏模量的影响. 他们的模拟结果也表明, 当方位角 θ 由 0° 增大到 45° 时, 杨氏模量在 30° – 40° 之间出现了一个极小值.

图9和10表明, 在相同空隙率情况下, 不同试样得到的断裂强度会有所不同. 断裂强度的这种随机性由两方面因素构成: 相同的孔排布情况下, 不同随机数生成的试样之间断裂强度有所差别(图9和10中每一个

图 10 (网络版彩图)杨氏模量和断裂强度随孔洞方位角的变化($\rho=0.02$)

Figure 10 (Color online) Variations of Young's modulus and fracture strength versus the arrange angle of pores ($\rho=0.02$).

数据点对应的误差); 不同的孔排布情况下平均断裂强度之间有所差别. 前者主要是由本研究工作中孔洞的构造方式导致: 对于选定的孔洞质心位置, 以其半径为标准构造一虚拟圆柱, 任何质心落在该虚拟圆柱内的颗粒都被删除. 这使得孔洞表面会粗糙不平. Keleş等人^[42]的有限元模拟表明, 孔洞表面的粗糙度对于材料的宏观断裂强度有一定影响. 基于图7可以推测, 孔洞表面的粗糙度对材料断裂强度的影响会随孔洞尺寸的增大而减弱. 孔洞排列型式对断裂强度的影响主要是源自于存在一临界孔洞间距, 只有当孔洞之间的距离大于这一临界值后, 试样的平均断裂强度才近似保持不变. 由图9和10可以看出, 对于所考察的孔洞尺寸, 孔洞排列方式对于试样断裂强度的影响更明显, 最大

误差可达到 25 MPa, 而孔洞表面粗糙度导致的最大误差约为 10 MPa.

相同空隙率下断裂强度的这种随机性可用 Weibull 模数刻画, Weibull 模数越大, 则随机性越弱. Fan 等人^[1]基于文献中报道的数据以及他们自己的实验结果, 统计分析了不同材料的 Weibull 模数随空隙率下的变化趋势. 他们发现 Weibull 模数随空隙率呈 U 型分布: 在空隙率 $(1-\rho) < 0.1$ 或 $(1-\rho) > 0.5$ 范围内, Weibull 模数数值要比 $0.1 < (1-\rho) < 0.5$ 范围内数值大. Keleş 等人^[2,7,42]基于有限元数值模拟也得到了类似的结果: 在保持孔洞直径不变的条件下, 当空隙率由 0 增大到 31%, Weibull 模数先急剧下降, 随后在一较窄的范围内随机波动. 图 9 和 10 表明, 只有当孔洞之间的间距大于某一临界值时, 孔洞之间的空间排列型式对断裂强度的影响才近似可忽略. 这也解释了为何空隙率较小时 Weibull 模数较大: 只有当空隙率足够小, 使得试样中孔洞的间距都大于临近间距时, 不同孔洞空间排列对于断裂强度的影响才近似可忽略, 导致较大的 Weibull 模数; 当空隙率较大, 试样中某些孔洞的间距小于临界距离时, 试样的

断裂强度与孔洞排列型式密切相关, 不同的孔洞排列型式会得到不同的断裂强度, 从而导致较小的 Weibull 模数.

5 结论

本文基于离散单元法数值模拟, 通过在作用力模型中引入同一颗粒单元上不同固体键之间的空间耦合效应, 从微观晶粒尺度出发模拟研究了多孔陶瓷材料的力学响应特性. 在数值试样的制备上, 本文通过开展各向同性压缩以制备不同空隙率的数值试样, 并基于烧结理论计算颗粒之间的几何接触属性. 模拟预测的材料宏观杨氏模量和断裂强度, 以及材料内部孔洞之间的相互作用特性, 都能与文献中报道的实验数据和有限元/理论分析结果很好地定量吻合, 证明了本文所采用的离散单元法数值模拟方法的合理性和可靠性, 从而为后续进一步深入研究多孔陶瓷的力学响应特性, 尤其是多孔陶瓷微结构对其宏观力学响应特性的影响, 奠定了基础.

参考文献

- 1 Fan X, Case E D, Ren F, et al. Part I: Porosity dependence of the Weibull modulus for hydroxyapatite and other brittle materials. *J Mech Behav Biomed Mater*, 2012, 8: 21–36
- 2 Keleş Ö, García R E, Bowman K J. Deviations from Weibull statistics in brittle porous materials. *Acta Mater*, 2013, 61: 7207–7215
- 3 Liu X, Martin C L, Bouvard D, et al. Strength of highly porous ceramic electrodes. *J Am Ceram Soc*, 2011, 94: 3500–3508
- 4 Liu X, Martin C L, Delette G, et al. Elasticity and strength of partially sintered ceramics. *J Mech Phys Solids*, 2010, 58: 829–842
- 5 Liu X, Martin C L, Delette G, et al. Microstructure of porous composite electrodes generated by the discrete element method. *J Power Sources*, 2011, 196: 2046–2054
- 6 Roberts A P, Garboczi E J. Elastic properties of model porous ceramics. *J Am Ceramic Soc*, 2000, 83: 3041–3048
- 7 Keleş Ö, García R E, Bowman K J. Stochastic failure of isotropic, brittle materials with uniform porosity. *Acta Mater*, 2013, 61: 2853–2862
- 8 Bruno G, Kachanov M. Microstructure-property connections for porous ceramics: The possibilities offered by micromechanics. *J Am Ceram Soc*, 2016, 99: 3829–3852
- 9 Sun Q C, Liu X X, Zhang G H, et al. The mesoscopic structures of dense granular materials (in Chinese). *Adv Mech*, 2017, 47: 263–308 [孙其诚, 刘晓星, 张国华, 等. 密集颗粒物质的介观结构. *力学进展*, 2017, 47: 263–308]
- 10 Antonyuk S, Khanal M, Tomas J, et al. Impact breakage of spherical granules: Experimental study and DEM simulation. *Chem Eng Process-Process Intensif*, 2006, 45: 838–856
- 11 Pizette P, Martin C L, Delette G, et al. Compaction of aggregated ceramic powders: From contact laws to fracture and yield surfaces. *Powder Tech*, 2010, 198: 240–250
- 12 Nguyen D H, Azéma E, Sornay P, et al. Bonded-cell model for particle fracture. *Phys Rev E*, 2015, 91: 022203
- 13 Dosta M, Dale S, Antonyuk S, et al. Numerical and experimental analysis of influence of granule microstructure on its compression breakage. *Powder Tech*, 2016, 299: 87–97
- 14 Huang H, Spencer B, Hales J. Discrete element method for simulation of early-life thermal fracturing behavior in ceramic nuclear fuel pellets.

- Nucl Eng Des, 2014, 278: 515–528
- 15 Groh U, Konietzky H, Walter K, et al. Damage simulation of brittle heterogeneous materials at the grain size level. *Theor Appl Fract Mech*, 2011, 55: 31–38
- 16 Maheo L, Dau F, André D, et al. A promising way to model cracks in composite using discrete element method. *Compos Part B-Eng*, 2015, 71: 193–202
- 17 Nohut S. Prediction of crack-tip toughness of alumina for given residual stresses with parallel-bonded-particle model. *Comput Mater Sci*, 2011, 50: 1509–1519
- 18 Tan Y, Yang D, Sheng Y. Study of polycrystalline Al_2O_3 machining cracks using discrete element method. *Int J Mach Tools Manuf*, 2008, 48: 975–982
- 19 Tan Y, Yang D, Sheng Y. Discrete element method (DEM) modeling of fracture and damage in the machining process of polycrystalline SiC. *J Eur Ceramic Soc*, 2009, 29: 1029–1037
- 20 Jiang S, Li X, Tan Y, et al. Discrete element simulation of SiC ceramic with pre-existing random flaws under uniaxial compression. *Ceramics Int*, 2017, 43: 13717–13728
- 21 Jefferson G, Haritos G K, McMeeking R M. The elastic response of a cohesive aggregate—A discrete element model with coupled particle interaction. *J Mech Phys Solids*, 2002, 50: 2539–2575
- 22 Wang F C, Feng J T, Zhao Y P. The head-on colliding process of binary liquid droplets at low velocity: High-speed photography experiments and modeling. *J Colloid Interface Sci*, 2008, 326: 196–200
- 23 Fujita H, Jefferson G, McMeeking R M, et al. Mullite/alumina mixtures for use as porous matrices in oxide fiber composites. *J Am Ceramic Soc*, 2004, 87: 261–267
- 24 Potyondy D O, Cundall P A. A bonded-particle model for rock. *Int J Rock Mech Min Sci*, 2004, 41: 1329–1364
- 25 Martin C L, Bouvard D, Delette G. Discrete element simulations of the compaction of aggregated ceramic powders. *J Am Ceramic Soc*, 2006, 89: 3379–3387
- 26 Thornton C, Antony S J. Quasi-static deformation of particulate media. *Philos Trans R Soc A-Math Phys Eng Sci*, 1998, 356: 2763–2782
- 27 Liu X, Papon A, Muhlhaus H. Numerical study of structural evolution in shear band. *Philos Mag*, 2012, 92: 3501–3519
- 28 Martin C L, Bordia R K. Influence of adhesion and friction on the geometry of packings of spherical particles. *Phys Rev E*, 2008, 77: 031307
- 29 Jauffrès D, Martin C L, Lichtner A, et al. Simulation of the elastic properties of porous ceramics with realistic microstructure. *Model Simul Mater Sci Eng*, 2012, 20: 045009
- 30 Zimmermann A, Hoffman M, Flinn B D, et al. Fracture of alumina with controlled pores. *J Am Ceramic Soc*, 1998, 81: 2449–2457
- 31 Bouvard D, McMeeking R M. Deformation of interparticle necks by diffusion-controlled creep. *J Am Ceramic Soc*, 1996, 79: 666–672
- 32 Martin C L, Bordia R K. The effect of a substrate on the sintering of constrained films. *Acta Mater*, 2009, 57: 549–558
- 33 Coble R L. Initial sintering of alumina and hematite. *J Am Ceramic Soc*, 1958, 41: 55–62
- 34 Ostrowski T, Ziegler A, Bordia R K, et al. Evolution of Young's modulus, strength, and microstructure during liquid-phase sintering. *J Am Ceramic Soc*, 1998, 81: 1852–1860
- 35 Meguid S A, Shen C L. On the elastic fields of interacting defense and main hole systems. *Int J Mech Sci*, 1992, 34: 17–29
- 36 Hu Y, Chen Y. The M-integral description for a brittle plane strip with two holes before and after coalescence. *Acta Mech*, 2009, 204: 109–123
- 37 Radi E. Path-independent integrals around two circular holes in an infinite plate under biaxial loading conditions. *Int J Eng Sci*, 2011, 49: 893–914
- 38 Schneider T, Greil P, Schober G. Strength modeling of brittle materials with two- and three-dimensional pore structures. *Comput Mater Sci*, 1999, 16: 98–103
- 39 de Klerk A. Voidage variation in packed beds at small column to particle diameter ratio. *AIChE J*, 2003, 49: 2022–2029
- 40 Christoffersen J, Mehrabadi M M, Nemat-Nasser S. A micromechanical description of granular material behavior. *J Appl Mech*, 1981, 48: 339–344
- 41 Kang S J L, Jung Y I. Sintering kinetics at final stage sintering: Model calculation and map construction. *Acta Mater*, 2004, 52: 4573–4578
- 42 Keleş Ö, Garcia R E, Bowman K J. Failure variability in porous glasses: Stress interactions, crack orientation, and crack size distributions. *J Am Ceram Soc*, 2014, 97: 3967–3972

Quantitative simulation of mechanical properties of porous ceramic materials by discrete element method

ZHOU Shuang^{1,2}, SU JingLin², LIU XiaoXing^{2,3*}, AN BaiGang^{1*}, YU Yin⁴,
HE HongLiang⁴, ZHANG Quan⁵, FENG YongJin⁵ & WANG XiaoYu⁵

¹ School of Chemical Engineering, University of Science and Technology Liaoning, Anshan 114051, China;

² State Key Laboratory of Multi-Phase Complex Systems, Institute of Process Engineering, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China;

³ School of Chemistry and Chemical Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

⁴ Nation Key Laboratory of Shock Wave and Detonation Physics, Institute of Fluid Physics, Chinese Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China;

⁵ Southwestern Institute of Physics, Chengdu 610041, China

In this work, the mechanical response of porous ceramic was investigated by performing discrete element method (DEM) simulations. Isotropic packing strategy was adopted to prepare numerical samples with different densities. For each numerical sample, the contact size between particles was calculated using Coble's sintering model. To account for the spatial coupling effect between solid bonds under multi-contact condition, the classic Hertz contact model was modified by introducing a correct factor which reflects the influences of contact size in-between grains and the geometrical arrangement of grains. The quantitative predicting ability of the built DEM framework was then evaluated by using the partially sintered alumina ceramic as investigated system. It was demonstrated that the predicted effective Young's modulus and fracture strength are both in quantitative agreement with experimental data. As to partially sintered alumina ceramic containing large pores, both the interaction behavior between pores and the influence of the geometrical arrangements of pores on effective Young's modulus and fracture strength predicted by the theoretical analyses or finite element method were successfully captured by our DEM simulations. All these quantitative comparisons demonstrate that the built DEM framework can be used to quantitatively model the mechanical properties of porous ceramics.

porous ceramic, particulate material, fracture strength, quantitative prediction, discrete element method (DEM)

PACS: 07.05Tp, 68.35.Ct, 71.15.Dx, 74.62.Bf

doi: [10.1360/SSPMA2018-00332](https://doi.org/10.1360/SSPMA2018-00332)