

國立臺灣大學工學院材料科學與工程學系

碩士論文

Department of Materials Science and Engineering

College of Engineering

National Taiwan University

Master's Thesis

應用離散元素法與同步輻射 X 光斷層掃描探討不同固相

分率半固態鋁合金之晶粒形貌變化與變形機制

Investigation of Grain Morphology Evolution and

Deformation Mechanisms in Semi-Solid Aluminum Alloys

with Varying Solid Fractions Using Discrete Element Method

and Synchrotron X-ray Tomography

黃克宸

Ke-Chen Huang

指導教授：蘇德徵 博士

Advisor : Te-Cheng Su, Ph.D.

中華民國 115 年 3 月

March, 2026



國立臺灣大學碩士學位論文

口試委員會審定書

MASTER'S THESIS ACCEPTANCE CERTIFICATE
NATIONAL TAIWAN UNIVERSITY

(論文中文題目) 應用離散元素法與同步輻射 X 光斷層掃描探討
(Chinese title of Master's Thesis) 不同固相分率半固態鋁合金之晶粒形貌變化
與變形機制


(論文英文題目) Investigation of Grain Morphology Evolution and
(English title of Master's Thesis) Deformation Mechanisms in Semi-Solid
Aluminum Alloys with Varying Solid Fractions
Using Discrete Element Method and Synchrotron
X-ray Tomography

本論文係 **黃克宸** (R12527070) 在國立臺灣大學材料科學與工程學系、所完成之碩士學位論文，於民國 114 年 7 月 25 日承下列考試委員審查通過及口試及格，特此證明。


The undersigned, appointed by the Department / Graduate Institute of Material Science and Engineering on 25th/July/2025 have examined a Master's Thesis entitled above presented by **Huang, Ke-Chen** (R12527070) candidate and hereby certify that it is worthy of acceptance.

口試委員
Oral examination committee:

蘇德徵 
(指導教授 Advisor)

陳俊杉 

鍾雲吉 

張慰慈 

系(所、學位學程)主管 Director: **蔡豐羽** 

誌謝



碩士求學生涯轉瞬即逝，時光荏苒，終於來到了畢業的時刻。能夠順利完成這篇論文，我衷心感謝蘇德徵老師在整個研究過程中的悉心指導與無私協助。此外也感謝我的父母長期以來的支持與陪伴，是你們讓我能夠無後顧之憂地專注於研究工作，同時也誠摯感謝此次擔任我論文口試委員的陳俊杉老師、鍾雲吉老師與張慰慈博士，您們所提出的寶貴意見與鼓勵，讓我的論文更加完善與成熟。

此外特別感謝姚靈恩學長這兩年來在學術與實驗上的耐心指導與協助，從我初入半固態合金領域一無所知，到如今能夠具備基礎的研究能力並完成本篇論文，您的引領與啟發功不可沒。同時也感謝黃浩銓學長與柯映亘學長，在研究初期遭遇瓶頸時，給予我許多寶貴的建議與技術支援。也感謝同屆夥伴敬堯、錫淵與于慧，這段時間在課業與研究上彼此扶持、互相打氣，是你們讓這段求學旅程不再孤單；也謝謝梁凱裕學長與碩一學弟吳旻鴻，平時與我談天解悶，甚至還教我玩魔術方塊，在研究壓力之下增添了不少樂趣。此外，也感謝實驗室的每一位同學持續營造良好且活潑的氛圍，讓我能更自在地面對各項挑戰。

我也要感謝科技部的經費支持，讓本研究得以順利進行。此外非常感謝國家同步輻射研究中心的所有研究人員在實驗過程中所提供的協助，特別感謝曾英碩博士協助製作臨場觀察用的加熱爐，以及宋艷芳博士在 3D 晶粒重構技術上的耐心協助，幫助我克服了重重困難。

最後，感謝所有在這段求學路上曾經幫助過我的人，正因為有你們的支持與陪伴，我才能順利完成這段碩士旅程。

摘要




鑄造是一項人類傳承千年的傳統金屬加工工藝，其低廉的成本與高效的生產能力，使其在製造業中扮演著重要角色。然而，與其他加工方法相比，鑄造工藝通常在相對高溫的環境下進行。在金屬冷卻過程中，由於固液體積差異、表面氧化物生成，以及固液間對氣體溶解度的不同，鑄件內部常產生孔洞。目前最有效消除孔洞的方法之一，是在凝固過程中施加壓力，藉由擠壓初晶晶粒以促使其移動與變形來填補孔洞。但後續研究發現，若施加壓力過大，不僅無法消除孔洞，反而可能導致孔洞擴張，甚至造成鑄件破裂。此外，由於鑄件內部不同位置冷卻速率不一，導致晶粒形貌與尺寸差異顯著，使得受壓行為也存在不均。因此，理解壓力與初晶晶粒運動行為之間的關係，成為鑄造工藝優化的重要研究方向。

隨著同步輻射技術的進展，研究發現晶粒在半固態階段呈現出類似於土壤顆粒的準剛性特性，這促使學者開始以土壤力學的角度探討晶粒的運動行為。Altuhaifi 等人便以三軸壓縮試驗研究半固態鋁合金晶粒的機械性質。然而，由於實驗設備限制，其研究未能深入觀察晶粒受剪後的微觀運動過程。因此本研究參考 Su 等人的方法，利用第六代離散元素法模擬軟體 Particle Flow Code 3D (PFC3D)，模擬半固態鋁合金的三軸壓縮行為。我們首先以 Avizo 重建同步輻射斷層掃描所得之晶粒結構，並導入 PFC 模擬系統中。接著採用 Su 等人於排水壓縮測試中提出的接觸模型，以 Hertz 模型模擬顆粒與牆體間的非線性接觸，並以 Burgers 模型描述顆粒間的黏彈性作用，所需參數則依據文獻中提出的微觀壓縮模型決定。

此外，為了提高模擬效率，我們參考 Ng 等人提出的方法，透過增加顆粒質量以提升時間步長，降低總計算量。根據微觀模型評估結果，即使質量增加，只要系統維持連續接觸狀態，應力-應變曲線的變化趨勢幾乎不受影響。因此，本研究將伺服牆之最大應變速率設定為 $5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ ，以確保整體顆粒系統處於準靜態

(quasi-static) 狀態。



三軸壓縮測試中，首先施加圍壓以模擬鑄造過程中晶粒所受環境壓力，隨後自試樣上方以固定應變速率施加軸向偏應力，觀察顆粒在剪切作用下的運動行為。剪切階段結束後，我們將模擬所得之偏應力、體積應變與孔隙率變化，與 Altuhafi 等人之實驗結果進行比較。模擬結果顯示，在固相率較高 (550°C) 的條件下，施加偏應力後試樣體積呈壓縮趨勢，與 Altuhafi 等人觀察到的膨脹現象不符。為探究差異原因，我們建立了混合接觸模型 (mixed contact model)，並進一步發現體積應變在剪切過程中呈現先壓縮後膨脹之行為。我們推測此差異可能源於模擬中忽略了間隙液體壓力對晶粒運動的影響。

相較於 Su 等人進行的排水壓縮模擬，本研究在三軸剪切條件下更明顯觀察到晶粒滑移與變形對宏觀機械性質的影響，並深化了對間隙液體在半固態行為中所扮演角色的理解。此外，我們亦進一步分析剪切過程中的接觸力分佈與應力傳遞變化，為未來探索高壓鑄造中晶粒行為提供了新的模擬視角與參考依據。

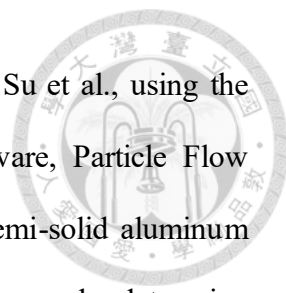
關鍵字：半固態鋁合金、同步輻射、離散元素法、三軸壓縮測試、接觸力學



Abstract

Casting is a traditional metal processing technique that has been passed down for thousands of years. Due to its low cost and high production efficiency, it plays a vital role in the manufacturing industry. However, compared to other processing methods, casting is typically carried out at relatively high temperatures. During the cooling process, internal porosity often forms in the castings as a result of volume differences between solid and liquid phases, the formation of surface oxides, and differing gas solubility between the solid and liquid states. One of the most effective ways to eliminate such porosity is to apply pressure during solidification. This compressive force promotes the movement and deformation of primary solid grains to fill in the voids. However, subsequent studies have shown that excessive pressure can not only fail to eliminate porosity but may even enlarge the voids or cause cracking in the castings. Additionally, variations in cooling rates across different regions of the casting result in significant differences in grain morphology and size, leading to uneven responses to applied pressure. Therefore, understanding the relationship between pressure and the motion of primary grains has become a key research direction in the optimization of casting processes.

With advances in synchrotron radiation technology, studies have revealed that grains in the semi-solid state exhibit quasi-rigid behavior similar to that of soil particles. This finding has led researchers to analyze grain motion from a geomechanics perspective. For instance, Altuhafi et al. conducted triaxial compression tests to investigate the mechanical properties of semi-solid aluminum alloys. However, due to experimental limitations, their study was unable to capture the detailed micro-scale motion of grains under shear.

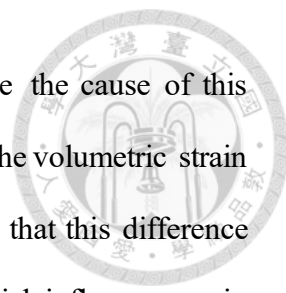


To address this, the present study adopts the approach proposed by Su et al., using the sixth-generation Discrete Element Method (DEM) simulation software, Particle Flow Code 3D (PFC3D), to simulate the triaxial compression behavior of semi-solid aluminum alloys. We first reconstructed the grain structure from synchrotron tomography data using Avizo, and then imported it into the PFC simulation system. The contact model follows that used by Su et al. in drained compression tests: the nonlinear contact between particles and walls is modeled using the Hertz contact law, while the viscoelastic behavior between particles is described using the Burgers model. The required parameters are determined based on micro-scale compression models reported in the literature.

To improve computational efficiency, we adopted the method proposed by Ng et al., increasing the particle mass to enlarge the time step and thus reduce total computation time. According to the micro-scale model evaluation, even with increased mass, the stress–strain response remains nearly unaffected as long as continuous contact within the system is maintained. Therefore, the maximum strain rate of the servo-controlled walls was set to $5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ to ensure quasi-static conditions for the entire granular system.

In the triaxial compression test, confining pressure was first applied to simulate the ambient pressure experienced by grains during casting. Axial deviatoric stress was then applied from the top of the specimen at a fixed strain rate to observe grain motion under shear. After the shear phase, the simulated results—such as deviatoric stress, volumetric strain, and porosity evolution—were compared with the experimental results from Altuhafi et al.

The simulation results revealed that under higher solid fraction conditions (550 °C), the specimen exhibited volumetric compression after applying deviatoric stress, which



contrasts with the dilation observed by Altuhafi et al. To investigate the cause of this discrepancy, a mixed contact model was developed. It was found that the volumetric strain exhibited a compress-then-dilate trend during shearing. We speculate that this difference arises from the simulation's omission of interstitial liquid pressure, which influences grain movement.

Compared to Su et al.'s drained compression simulation, this study more clearly observes the influence of grain sliding and deformation on macroscopic mechanical behavior under triaxial shear conditions. It also deepens our understanding of the role of interstitial liquid in semi-solid behavior. Furthermore, we analyzed contact force distributions and stress transmission during shear, providing new simulation perspectives and references for investigating grain behavior in high-pressure casting applications.

Keywords: semi-solid aluminum alloy, synchrotron radiation, discrete element method, triaxial compression test, contact mechanics



目次

誌謝	ii
摘要	iii
Abstract	v
目次	viii
圖次	xiii
表次	xxvii
縮寫詞列表	xxix
符號列表	xxx
Chapter 1 前言	1
Chapter 2 文獻回顧	3
2.1 晶粒形貌在不同凝固階段的變化	3
2.1.1 成核	3
2.1.2 介面能對晶粒形貌的影響	7
2.1.3 熱流對晶粒形貌的影響	10
2.1.4 平衡凝固模型	12
2.1.5 Scheil 凝固模型	13



2.1.6	穩態溶質擴散	15
2.1.7	組成過冷	17
2.2	晶粒形貌在半固態熱機階段的變化	19
2.2.1	鋁合金連續動態再結晶機制	19
2.2.2	鋁合金球化熱處理	22
2.3	同步輻射 X 光造影技術應用在合金凝固與糊狀區現象	25
2.3.1	X 光衰減理論	25
2.3.2	半固態合金的同步輻射 X 光成像	32
2.3.3	半固態合金的同步輻射 X 光斷層掃描	34
2.4	缺陷形成的機制	38
2.4.1	孔洞形成的機制	38
2.4.2	宏觀偏析現象	46
2.5	半固態合金變形機制	56
2.5.1	單軸壓縮	56
2.5.2	枝晶接觸	63
2.5.3	三軸壓縮測試以及臨界狀態土壤力學	67
2.5.4	排水壓縮	74
2.6	顆粒流變性質	79



2.6.1	顆粒間的交互作用	79
2.6.2	顆粒流動狀態	82
2.6.3	破壞準則	86
2.7	離散元素法	96
2.7.1	離散元素法在半固態合金上的應用	96
2.7.2	離散元素法原理	98
2.7.3	離散元素法形狀設計	105
2.7.4	接觸模型	108
2.7.5	伺服剛性壁與伺服柔性壁	117
Chapter 3	研究流程與方法	121
3.1	實驗流程	121
3.2	試片製備	122
3.2.1	實驗材料製備	122
3.2.2	Avizo 影像重構與晶粒尺寸及球度分析	124
3.2.3	顆粒模型設計與建模	127
3.3	微觀模擬	129
3.3.1	尋找適合的接觸模型參數	129
3.3.2	顆粒尺寸對應力應變的影響	130



3.3.3	顆粒密度對時間步長以及應力應變的影響	131
3.4	三軸壓縮模擬	132
3.4.1	15Cu-570°C	132
3.4.2	15Cu-550°C	136
3.4.3	混合碰撞模型	138
3.4.4	模擬後處理	141
Chapter 4	結果與討論	142
4.1	微觀模擬結果	142
4.1.1	顆粒尺寸對於應力應變曲線的影響	142
4.1.2	顆粒密度對於應力應變曲線的影響	144
4.2	三軸壓縮測試	147
4.2.1	三軸壓縮碰撞參數設定	147
4.2.2	15Cu-570°C三軸壓縮結果	148
4.2.3	15Cu-550°C三軸壓縮結果	161
4.2.4	混合模型	166
4.2.5	各三軸壓縮模擬最終臨界狀態	173
Chapter 5	結論	175
Chapter 6	未來工作	177

參考文獻 179



圖次



圖 2.1-1 吉布斯自由能與溫度之間的變化圖[7]。	3
圖 2.1-2 胚核與液體之間的介面示意圖[7]。	4
圖 2.1-3 自由能與晶胚關係圖[7]。	5
圖 2.1-4 異質基底成核示意圖[7]。	6
圖 2.1-5 $f(\theta)$ 與浸潤角變化圖[7]。	6
圖 2.1-6 傑克森模型示意圖[7]。	7
圖 2.1-7 自由能與已佔位的表面空位的關係圖[8]。	8
圖 2.1-8 傑克森模型預測晶粒形貌例圖[8]。	9
圖 2.1-9 凝固時產生突起後溫度梯度的變化[9]	11
圖 2.1-10 液體溫度高於接面時溫度與距離關係圖[9]。	11
圖 2.1-11 液體溫度低於接面時溫度與距離關係圖[9]。	11
圖 2.1-12 槓桿法則示意圖[10]。	12
圖 2.1-13 Scheil 溶質溶液濃度關係圖[7]。	13
圖 2.1-14 為對 Scheil 模型進行部分修改後的溶質溶液關係圖[8]。	16
圖 2.1-15 固液介面在 dt 時間內濃度變化圖[8]。	16
圖 2.1-16(a)為透過 2.1.3 節中的模型推導的濃度分佈曲線。圖(b)為利用濃度分佈 曲線代入 Eq. 2.1-31 後得到的液相線溫度分佈曲線圖。(c)為發生組成過冷時	

的臨界溫度分佈圖。圖(d)為組成故過冷溫度分佈圖[12]。.....	17
圖 2.1-17 晶粒形貌與液體溫度梯度、凝固速度以及溶質濃度關係圖[12]。.....	18
圖 2.2-1 由晶界附近的晶格扭轉造成的連續動態再結晶示意圖。(a)表示晶界滑移再三相點的部份應力集中導致塑性變形集中(b)差排密度差導致高角度晶界遷移所形成的鋸齒狀結構(c)由於部份的差排移動以及部分的晶界滑移形成的殼層結構(d)由於晶界滑移導致殼層結構中的突起剪切產生次晶[13].....	20
圖 2.2-2 (次)晶界錯位角隨著應變變化圖(a)高度合金化且含有細小顆粒並在低溫下的變化圖(b)低合金含量材料在高溫下(大於0.5倍的熔點)的變化圖[13].....	21
圖 2.2-3 微剪切帶促進次晶形成過程：(a)多個含有高密度位錯的微剪切帶；(b)次晶在微剪切帶附近形成；(c)次晶通過旋轉和長大形成再結晶晶粒。[18].....	22
圖 2.2-4 奧斯特瓦爾德熟化[21]	22
圖 2.2-5 聚結反應[21]	24
圖 2.3-1 固相率對透射歸一化強度 τ 的影響，針對 Al-15Cu (重量百分比) 合金的液相與固相 α -Al 進行分析，並計算相應的對比參數 χ [29]，入射光子能量為 15 keV，樣品厚度為 150 μm 。Al-Cu 合金的 X 光吸收係數與密度數據分別來自[30]和[31]。.....	27
圖 2.3-2 歸一化透射強度 τ 隨樣品厚度和光子能量的變化：(a) 液相與 (b) 固相的 Al-15Cu (重量百分比) 合金且固相率為 0.5。Al-Cu 合金的 X 光吸收係數與密度數據分別來自[30]和[31]。.....	27
圖 2.3-3 入射光子能量對透射歸一化強度 τ 的影響，針對 Al-15Cu (重量百分比) 合金的液相與固相 α -Al 進行分析，並計算相應的對比參數 χ [29]。該合金	



的固相率為 0.5，樣品厚度為 150 μm 。Al-Cu 合金的 X 射線吸收係數與密度數據分別來自[30]和[31]。..... 28

圖 2.3-4 為固相率對透射歸一化強度 τ 的影響，針對 Fe-2C（重量百分比）合金的液相與固相 $\gamma\text{-Fe}$ 進行分析，並計算相應的對比參數 χ [29]。入射光子能量為 15 keV，樣品厚度為 150 μm 。圖中顯示，使用 15 keV 光子能量並不適合用於鋼材的 X 光成像。Fe-2C 合金的 X 光吸收係數與密度數據分別來自[30]和[29, 32]。..... 29

圖 2.3-5 歸一化透射強度 τ 隨樣品厚度和光子能量的變化：(a) 液相與 (b) 固相的 Fe-2C（重量百分比）合金且固相率為 0.5。Fe-2C 合金的 X 射線吸收係數與密度數據分別來自[30]和[29, 32]。..... 29

圖 2.3-6 入射光子能量對透射歸一化強度 τ 的影響，針對 Fe-2C（重量百分比）合金的液相與固相 $\gamma\text{-Fe}$ 進行分析，並計算相應的對比參數 χ [29]。該合金的固相率為 0.5，樣品厚度為 150 μm 。Fe-2C 合金的 X 光吸收係數與密度數據分別來自[30]和[29, 32]。..... 30

圖 2.3-7 純 Fe 的固液界面透射影像。光子能量：(a) 16 keV，(b) 18 keV，(c) 20 keV，(d) 24 keV，(e) 28 keV。(f)為界面的特寫圖。透射影像顯示，在 16 keV 時具有良好的對比度，但信噪比較低；而在 28 keV 時，影像擁有較高的信噪比，但對比度較弱[29]。..... 30

圖 2.3-8 超低碳鋼（25 ppm C）和高碳鋼（0.45 質量百分比 C）枝晶的快照：(a) 超低碳鋼在冷卻速率為 0.17 K/s，(b) 高碳鋼在冷卻速率 1.67 K/s。超低碳鋼和高碳鋼的生長速度分別為 100 $\mu\text{m/s}$ 和 540 $\mu\text{m/s}$ （光子能量 21 keV）[29]。..... 31

圖 2.3-9(a) Al-15Cu 和 (b) Fe-2C (重量百分比) 合金系統的對比參數 χ ，作為試片厚度和光子能量的函數其固體率為 0.5。[31].....	31
圖 2.3-10 臨場同步輻射 X 光照相技術應用於 Al-3.5Ni (重量分率%) 定向凝固實驗，冷卻速度從 1.5 $\mu\text{m/s}$ 轉變至(a) 4 $\mu\text{m/s}$ 和(b) 8 $\mu\text{m/s}$ [52]。.....	33
圖 2.3-11(a)剪切單元的示意圖，為了清晰呈現圖像，z 方向有所延伸。(b)樣品小區域的放大圖。(c)變形前樣品底部與剪切單元 (由六幅 X 射線照片拼接而成)，包含邊界壁與推板的疊加圖。虛線框表示變形過程中的視場範圍，而較小的點線框則為分析區域[63]。.....	33
圖 2.3-12 臨場斷層掃描觀測未變形的半固態 Al-Cu 合金 (每 1° 記錄一幅圖像，曝光時間 33ms)，其公稱固相率分別為 0.64、0.73、0.87 和 0.93。(a) 橫截面 (xy) 重建切片 (比例尺 1 mm)；(b) 分離晶粒的 3D 渲染圖 (比例尺 500 μm)；(c) 來自不同樣品的典型晶粒，顯示隨著固相率增加，球形度 Ψ 逐漸降低 (比例尺 300 μm) [4]。.....	35
圖 2.3-13 臨場同步輻射斷層掃描實驗裝置的示意圖[51]。.....	35
圖 2.3-14 (a) 針對 3 \times 3 切片在角度 $\theta=0^\circ$ 和 90° 下的投影結果。(b) 投影結果為正弦圖 (sinogram)，即投影角度與投影強度的關係圖，其中包含兩行數據，分別為[7,9,7] [6,9,8][74]。.....	36
圖 2.3-15 星形偽影 (Star Artefact) 的示意圖(a) 用於生成投影的原始切片。(b-g) 使用反投影算法進行重建，投影數量分別為 1、3、4、16、32 和 64，並在 360° 範圍內均勻分佈。隨著投影數量的增加重建結果逐漸趨近於原始切片 [74]。.....	37
圖 2.4-1 液體與固體體積隨著溫度的變化圖。.....	38



圖 2.4-2 鋁氫相圖，圖(a)與圖(b)分別表示了在高溫和低溫下氫氣在固體與液體的溶解度。 39

圖 2.4-3(a)表示了由體積變化引起的收縮壓力造成的孔洞。(b)顯示了由於氣體的析出所產生的孔洞。[75]..... 39

圖 2.4-4 孔洞在不同介面上的異質成核現象(a)孔洞在平面基板上成核(b)孔洞在凹陷基板上成核[85]。 43

圖 2.4-5 ΔP_{het}^* 與 ΔP_{hom}^* 比值隨潤浸角變化圖。 44

圖 2.4-6 Bifilm 示意圖[91]..... 45

圖 2.4-7 在不同壓力環境下透過同步輻射觀察 Al-7Si-0.4Mg 凝固的變化(a)為在 1atm 下凝固(b)為 0.01atm 下凝固[86] 45

圖 2.4-8 表示在 $k < 1$ 時 DC 鑄造下宏觀偏析的分佈情況，其中 ΔC 為與平均濃度間的相對偏差量透過 $(C_i - C_{avg})/C_{avg}$ 計算得到[92]。 46

圖 2.4-9 DC 鑄造過程示意圖[92]..... 47

圖 2.4-10 表示糊狀區(mushy zone)因凝固收縮所產生的液體流動方向(黑色箭頭 V_{shr} 、 V_h 分別代表收縮速度以及其在水平方向上的分量)， L_m 為固相等溫線與固相線之間糊狀區的厚度。灰色箭頭代表了在熔池中熱溶質耦合產生的對流方向。最後此圖左側代表鑄錠的中心位置，而右側則為表面[93]。 48

圖 2.4-11 液體在錠坯中液體的流動方向，實線部分為等固相分率線 $g_s = 0$ 、 $g_s = 0.3$ 和 $g_s = 1.0$ [95]。 49

圖 2.4-12 因固體碎片造成負偏析機制的部分示意圖[96]。 50

圖 2.4-13 利用 EPMA 測量 Cu 與 Mg 含量，上圖為未晶粒細化的試片，下圖則為晶粒細化後的試片[92]。	51
圖 2.4-14 Type B 機制在模型的示意圖[97]	53
圖 2.4-15 Type C 機制在模型的示意圖[97]	53
圖 2.4-16 Type D 機制在模型的示意圖[97]	54
圖 2.4-17 Ludwig 等人透過模型推測鋁合金鑄錠透過 DC 鑄造後造成各部位偏析的主要機制[97]	55
圖 2.5-1 Kareh 等人使用的實驗裝置圖(1)葉蠟石 (pyrophyllite) 壓縮柱(2)氮化硼杯(3)輻射爐(4)試樣，以及(5)熱電偶。圖(a)為該裝置安裝於拉壓測試裝置中的實物照片，圖(b)則為該裝置的分解示意圖[4]。	56
圖 2.5-2(a)為不同固相分率下晶粒的球度(b)球形度在不同固相分率下的分佈(c)晶粒的等效直徑分佈[4]。	58
圖 2.5-3(a)顯示了孔洞在壓縮過程中的位置以及變化，綠色孔洞代表從表面延伸到試片內部的孔洞，紅色代表試片內部的孔洞。(b)紀錄綠色孔洞與紅色孔洞體積隨著壓應變的變化。(c)為壓頭下方的孔洞在固相分率 74%的試片隨壓應變的變化。(d)為試片側邊的孔洞變化。(e)為固相分率 93%的試片其側邊孔洞的變化[4]。	59
圖 2.5-4 固相分率 64%、73%、87%以及 97%下的機械性質，圖(a)為真實應力與真實應變變化圖。圖(b)為體積應變與真實應變變化圖。圖(c)固體體積分率與真實應變曲線[4]。	60
圖 2.5-5 (a)和(b)分別代表了固相分率 64%和 93%試片中單一孔洞隨應變的變化	



[4]。	61
圖 2.5-6 分別代表 64%和 73%固相分率(a)在每 2%應變下晶粒球形度的變化(b)從試片中隨機選取 50 顆晶粒紀錄其累積厚度隨應變的變化(c)每 2%應變下累積晶粒半徑的變化[4]。	62
圖 2.5-7 等軸枝晶[99]。	63
圖 2.5-8 為 Al±4%Si±4%Cu 合金的剪切應力固相分率圖[100]。	64
圖 2.5-9 Al-4Cu-10Si 合金其冷卻時其牆體溫度與中心溫度以及兩者溫度差隨時間的變化其中當溫度差的絕對值來第一次來到最大時被定義為枝晶接觸點[102]。	64
圖 2.5-10 不同晶粒大小和晶粒形貌對剪切力的影響[100]。	65
圖 2.5-11 Al-4Cu-4Si 合金銅合金進行直接剪切測試的剪切力與位移變化圖[106]。	65
圖 2.5-12 Al-7Si-0.4Mg 合金在晶粒尺寸 1.7mm 下進行直接剪切測試(a)為固相分率 0.32 下的測試結果剪切面俱有明顯的宏觀偏析帶。(b)為固相分率為 0.43 下的測試結果剪切面俱有大量的孔洞和撕裂[100]。	66
圖 2.5-13 傳統三軸壓縮測試示意圖[108]。	67
圖 2.5-14 Altuhafi 等人設計的半固態合金三軸壓縮裝置[107]。	68
圖 2.5-15 (a)溫度隨時間的變化(b)試片體積隨時間的變化[107]。	69
圖 2.5-16 (a)偏應力與應變的變化(b)體積應變隨應變的變化[107]。	69
圖 2.5-17(a) 三維狀態下的臨界曲線(CSL)，(b) 三維 CSL 投影到 $e - \log(p')$ 平面	



上，(c) 三維 CSL 投影到 $q - p'$ 平面上[107]。..... 71

圖 2.5-18 以試片和壓縮軸垂直方向取得的拋光後試片微結構圖，亮灰色部分為 α Al 黑色部分為加熱時為液相的共晶相。由圍壓和加熱溫度將試片區分為 (a)300 kPa-549°C，(b)600 kPa-550°C，(c)1200 kPa-550°C，(d)為 300 kPa-549°C 樣品的分割顯微影像。當中清楚的標出了膨脹剪切帶以及孔隙[107]。..... 72

圖 2.5-19 Altuhafi 實驗所測的 CSL 曲線結果，(a)偏應力-平均有效應力平面中的應力路徑。(b)壓縮階段後的樣品組織狀態（以黑色實心圓表示），以及試驗結束時在孔隙比-有效平均應力對數（ $e - \ln p'$ ）平面中的狀態。..... 73

圖 2.5-20 排水壓縮實驗示意圖[6]。..... 74

圖 2.5-21 Al-Cu 合金的 IPF(Inverse Pole Figure map)，圖(a)球化後的 Al-8Cu，(b)壓縮後的 Al-8Cu。(c)球化後的 Al-15Cu，(d)壓縮後的 Al-15Cu[6]。..... 75

圖 2.5-22 (a) clumps 單元，(b) rblocks 單元[6]。..... 76

圖 2.5-23 (a)15Cu 晶粒模型(b)8Cu 晶粒模型[6]。..... 76

圖 2.5-24(a)應力對固相分率變化圖(b)孔隙液體分率對應力變化圖[6]。..... 77

圖 2.6-1 顆粒與間隙液體示意圖。..... 81

圖 2.6-2(a)為顆粒的有效摩擦係數與慣性數的變化圖(b)為配位數對慣性數的變化圖[121]。..... 85

圖 2.6-3 有效摩擦係數與慣性數變化以及顆粒狀態劃分圖[121] 85

圖 2.6-4(a)二維材料平衡應力分析圖(b)切掉一邊後的二維材料平衡應力分析圖



[123].....	87
圖 2.6-5 二維莫爾圓[124]。	88
圖 2.6-6 三維材料應力分析圖[123]	89
圖 2.6-7 沿滑移面的顆粒集合體之強度[125]	93
圖 2.6-8(a)二維材料的莫爾庫倫破壞模型[125];(b)不同應力狀態下的莫爾破壞圓 [125];(c)三維材料的莫爾庫倫破壞模型[125]。	94
圖 2.6-9 (a)莫爾庫倫破壞模型在 3D 主應力空間下的分佈[126]；(b)莫爾庫倫破壞 模型的 π 平面[126].....	95
圖 2.7-1 PFC 程式流程圖[130]	99
圖 2.7-2 透過多球團塊擬和第三方軟體建構出顆粒模型[139]	106
圖 2.7-3 GBM 模型建模流程圖[147]	106
圖 2.7-4 (a) 接觸於兩離散元素上的內力及力矩，(b)與流變相關的元件[130]... ..	108
圖 2.7-5 線性模型[130]	109
圖 2.7-6 Hertz 模型示意圖[130]	111
圖 2.7-7 Burgers 接觸模型[130].....	114
圖 2.7-8 Su 等人所使用的微觀模型[6]	116
圖 2.7-9 6 個單面剛性牆組成的三軸壓縮容器	117
圖 2.7-10 圓柱形剛性伺服牆構建的三軸壓縮容器[149]	118
圖 2.7-11 由柔性牆組合而成的圓柱型三軸壓縮容器[142]	118



圖 2.7-12 柔性牆的顆粒設定和組成[142]	119
圖 3.2-1 在球化前的試片以及中溫爐	122
圖 3.2-2(a)同步輻射中心(NSRRC)的加熱載台；(b)Al-15Cu 與氧化鋁套筒	123
圖 3.2-3 (a)為 570°C 下的二維同步設切片圖，(b)透過 Avizo 重現後的三維 570°C 晶粒；(c)為 550°C 下的二維同步設切片圖，(d)透過 Avizo 重現後的三維 550°C 晶粒。	125
圖 3.2-4 為 Al-8Cu、Al-12Cu、Al-15Cu 透過 Thermo-Calc 計算不同溫度下的體積固像分率。	125
圖 3.2-5 (a)和(b)分別為 Al-15Cu 在 570°C 下的晶粒直徑分佈與體積分率分佈圖和球度度分佈圖。(c)和(d)為 Al-15Cu 在 550°C 下的晶粒直徑分佈與體積分率分佈圖和球度度分佈圖。	126
圖 3.2-6 15Cu 在 PFC 中的模擬晶粒	128
圖 3.2-7 單球體顆粒模型[150]	128
圖 3.3-1 雙立方體微觀測試模型	130
圖 3.4-1 本次三軸壓縮模型。	132
圖 3.4-2 15Cu-570°C 的顆粒模型尺寸分布圖。	133
圖 3.4-3 15Cu-550°C 的顆粒模型尺寸分布圖。	137
圖 3.4-4 Collop 等人[157]實驗所得的體積膨脹梯度與壓縮和膨脹彈性係數比值曲線圖。其中 K_c 為顆粒壓縮時的碰撞彈性係數， K_s 為碰撞剪切方向上的彈性係數， K_t 為顆粒彈開時的拉伸的彈性係數。	139



圖 3.4-5 Hertz 與 Burgers 混合碰撞模型示意圖。	140
圖 4.1-1 在不同尺寸下顆粒應力應變曲線變化圖	143
圖 4.1-2 調整 Maxwell 阻尼係數後的應力應變變化圖	143
圖 4.1-3 微觀模型在剪切模數(G)為 1.71×10^{10} Pa下以 Su 等人[6]的碰撞以及顆粒數據比較密度放大十萬倍與沒放大的顆粒應力應變曲線並與 Braccini 等人 [148]的實驗結果比較，其中 k_k 、 c_k 和 k_m 分別代表了 Burgers 碰撞模型中 Kelvin 部分的彈性係數、阻尼係數以及 Maxwell 部分的彈性係數。	145
圖 4.1-4 微觀模型在剪切模數(G)為 1.71×10^{10} Pa下以本次實驗所使用的碰撞及顆粒數據比較密度放大十萬倍與沒放大的顆粒應力應變曲線並與 Braccini 等人 [148]以及 Su 等人[6]的實驗結果比較，其中 k_k 、 c_k 和 k_m 分別代表了 Burgers 碰撞模型中 Kelvin 部分的彈性係數、阻尼係數以及 Maxwell 部分的彈性係數。	145
圖 4.1-5 在微觀模型中分別調整剪切模數與顆粒密度的數量級，並觀察對時間步長的影響。	146
圖 4.2-1 300kPa-570°C模型在完成施加圍壓後(a)顯示各方向上接觸分佈的玫瑰圖以及(b)顯示力量分佈的力方向。	148
圖 4.2-2 600kPa-570°C模型在完成施加圍壓後(a)顯示各方向上接觸分佈的玫瑰圖以及(b)顯示力量分佈的力方向。	149
圖 4.2-3 300kPa-570°C模型三維接觸方向與力量分布圖。	150
圖 4.2-4 600kPa-570°C模型三維接觸方向與力量分布圖。	150
圖 4.2-5 300kPa-570°C模型的投影二維接觸分佈圖。	151



圖 4.2-6 600kPa-570°C模型的投影二維接觸分佈圖。.....	151
圖 4.2-7 300kPa-570°C模型的投影二維力量分佈圖。.....	152
圖 4.2-8 600kPa-570°C模型的投影二維力量分佈圖。.....	152
圖 4.2-9 300kPa-570°C模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的偏應力曲線變化比較圖。	153
圖 4.2-10 600kPa-570°C模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的偏應力曲線變化比較圖。	154
圖 4.2-11 300kPa-570°C模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的體積應變曲線變化比較 圖。.....	155
圖 4.2-12 600kPa-570°C模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的體積應變曲線變化比較 圖。.....	155
圖 4.2-13 300kPa-570°C模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的抗剪角曲線變化比較圖。	156
圖 4.2-14 600kPa-570°C模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的抗剪角曲線變化比較圖。	157
圖 4.2-15 300kPa-570°C模型的機械配位數變化圖。.....	158
圖 4.2-16 600kPa-570°C模型的機械配位數變化圖。.....	158
圖 4.2-17 300kPa-570°C模型在 x、y 和 z 的 fabric tenor 曲線變化圖。.....	160
圖 4.2-18 600kPa-570°C模型在 x、y 和 z 的結構張量曲線變化圖。.....	160
圖 4.2-19 300kPa-550°C模型在完成施加圍壓後(a)顯示各方向上接觸分佈的玫瑰圖	



以及(b)顯示力量分佈的力方向。..... 161

圖 4.2-20 300kPa-550°C模型三維接觸方向與力量分布圖。..... 162

圖 4.2-21 300kPa-550°C模型的投影二維接觸分佈圖。..... 163

圖 4.2-22 300kPa-550°C模型的投影二維力量分佈圖。..... 163

圖 4.2-23 300kPa-550°C模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的偏應力曲線變化比較圖。
..... 164

圖 4.2-24 300kPa-550°C模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的體積應變曲線變化比較
圖。..... 165

圖 4.2-25 300kPa-550°C模型的體積應變與剪切應變斜率變化圖。..... 165

圖 4.2-26 300kPa-550°C混合模型在完成施加圍壓後(a)顯示各方向上接觸分佈的玫瑰
圖以及(b)顯示力量分佈的力方向。..... 166

圖 4.2-27 300kPa-550°C混合模型模型的三維接觸方向與力量分布圖。..... 167

圖 4.2-28 300kPa-550°C混合模型的投影二維接觸分佈圖。..... 168

圖 4.2-29 300kPa-550°C混合模型的投影二維力量分佈圖。..... 168

圖 4.2-30 300kPa-550°C混合模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的偏應力曲線變化比較
圖。..... 169

圖 4.2-31 300kPa-550°C混合模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的體積應變曲線變化比
較圖。..... 170

圖 4.2-32 300kPa-550°C混合模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的抗剪角曲線變化比較
圖。..... 171

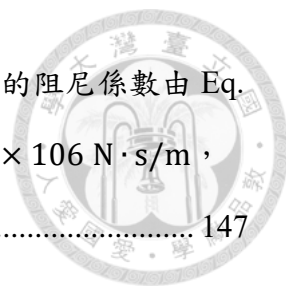
圖 4.2-33 300kPa-550°C混合模型的機械配位數變化圖。.....	171
圖 4.2-34 300kPa-550°C混合模型在 x、y 和 z 的 fabric tenor 曲線變化圖。.....	172
圖 4.2-35 本次模擬在臨界狀態的最終孔隙率對平均有效應力圖。.....	173





表次

表 2.4-1 羅列了 Fisher 模型、Bankoff 模型和 Bernath 模型下的理論破壞力、臨界空位簇半徑以及臨界空位數[85]。.....	42
表 2.4-2 顯示的濃度為 EPMA 沿黑線探測時所測出的最低濃度[92].....	52
表 2.5-1 紀錄 15Cu 和 8Cu 在 560°C 到 590°C 之間的體積固相分率以及在平衡相圖中對應的重量和體積固相分率[4]。.....	57
表 2.5-2 此實驗在三軸壓縮測試時的溫度以及圍壓以及對應的固相分率和體積變化[107]。.....	69
表 2.5-3 Su 等人模擬排水壓縮所使用的碰撞模型[6]。.....	76
表 2.7-1 單運算週期中各個節點的操作順序[130].....	104
表 2.7-2 線性接觸模型之參數.....	109
表 2.7-3 Hertz 接觸模型相較線性接觸模型新增之參數.....	111
表 2.7-4 Burgers 接觸模型相較線性及 Hertz 接觸模型新增之參數.....	114
表 3.3-1 牆與顆粒之間的 Hertz 接觸模型參數[127].....	130
表 3.3-2 Su 等人[6]以及本次實驗所使用的顆粒參數.....	130
表 3.4-1 宏觀三軸壓縮模擬試驗中的線性接觸模型之物理參數.....	134
表 3.4-2 伺服牆的相關參數以及圍壓施加完成的條件。.....	134
表 4.2-1 三軸壓縮模擬測試所使用的碰撞模型參數，顆粒與牆體之間為 Hertz 模	



型，顆粒與顆粒之間採用 Burgers 模型。其中 Maxwell 部份的阻尼係數由 Eq. 2.7-66 得出，且由於溫度的不同在 550°C 時阻尼係數為 $9.05 \times 10^6 \text{ N} \cdot \text{s/m}$ ，而在 570°C 下為 $7.88 \times 10^6 \text{ N} \cdot \text{s/m}$ 。 147

表 4.2-2 550°C 混合碰撞模型所使用的碰撞參數表。 166

表 4.2-3 本次模擬以及 Altuhafi 等人[107]的實驗在臨界狀態的最終孔隙率以及平均有效應力。 174



縮寫詞列表

CDRX	Continuous Dynamic Recrystallization
CSL	Critical State Line
CSSM	Critical State Soil Mechanism
DC	Direct-chill
DDRX	Discontinuous Dynamic Recrystallization
DEM	Discrete Element Method
EPMA	Electron Probe Microanalyzer
FEM	Finite Element Method
GBM	Grain-Based Models
GDRX	Geometric Dynamic Recrystallization
GR	Grain Refined
HPDC	High Pressure Die Casting
LBM	Lattice Boltzmann Method
NCL	Normal Consolidation Line
NGR	Non-Grain Refined
NIST	National Institute of Standards and Technology (in the US)
PFC3D	Particle Flow Code [®] in Three-Dimension



符號列表

A	面積
Ba	Bagnold 數
C	溶質濃度
c	顆粒質心速度
Co	Coulomb number
D	擴散係數
d	等效顆粒直徑
e	孔隙比；恢復係數
F	力向量(DEM)
F	力量(DEM)
f	重量固相分率；活化能
G	剪切模數(DEM)；吉布斯自由能；增益係數
g	體積固相分率；接觸間隙(DEM)；重力
H	焓
h	高；普朗克常數
I	X 光強度；慣性常數；顆粒轉動慣量(DEM)；不變量
I	顆粒轉動慣性張量
J	擴散通量；成核速率
J	主慣性矩
K	彈性係數總和
k	彈性係數(DEM)；熱傳係數；分配係數；晶粒長大速率常數；波茲曼常數
L	金屬凝固潛熱
Le	Leighton number
M	在臨界狀態下的摩擦常數；模式(DEM)



m	重量；斜率
N	垂直方向上的接觸力；數量
n	數量
\mathbf{n}	兩顆粒質心的連線向量
P	顆粒所受應力
p	有效應力
Q	活化能
q	偏應力；四元數
R	理想氣體常數；顆粒半徑
r	比率；顆粒半徑
S	摩擦力
s	熵
T	溫度
t	時間；厚度
U	接觸重疊量 (DEM)
V	體積
v	速度
w	重量分率
α	鬆弛係數(DEM)
β	接觸阻尼比(DEM)
Γ	臨界狀態線的縱軸數值
γ	介面能；剪切應變
Δf	相對活化能
ΔG	相對吉布斯自由能
ΔP	氣泡壓力差
Δt	DEM 時間步長
δ	厚度
η	液體黏度



θ	DEM 顆粒旋轉角度
ε	應變
λ	CSL 曲線斜率
μ	X 光吸收係數; 摩擦常數 (DEM)
ν	蒲松比(DEM)
ρ	密度
σ	應力
τ	標準化 X 光強度; 剪切應力
ϕ	抗剪角
χ	對比參數
ω	角動量
Ω	等效角速度

上標

'	等效、反映厚的狀態
*	臨界狀態
0	初始狀態
<i>d</i>	DEM 接觸模型的阻尼
<i>h</i>	Hertz contact model (DEM)
<i>homo</i>	均質
<i>l</i>	linear contact model (DEM)
<i>p</i>	顆粒
<i>S</i>	固體
<i>l</i>	液體
<i>hetero</i>	異質

下標

0	初始狀態
1	方向; major
1D NCL	單軸壓縮的 NCL 曲線



2	方向；intermediate
3	方向；minor
A	亞佛加厥
b	界面
csl	臨界狀態曲線
c	DEM 接觸
coh	枝晶接觸
fS	異質與固體共存
fL	異質與液體共存
qb	晶界
i	每個 DEM 元素；i 方向
j	j 方向
k	k 方向
L	液相
la	液氣共存
m	融化；單位莫爾
max	最大
n	垂直方向
S	固相
SL	固液共存
s	剪切或切線方向
sphere	球體
surface	表面
t	切線方向
v	空洞
VM	Von-Mises
⊠	其他
⊠	一次時間微分



二次時間微分



平均



等效





Chapter 1 前言

高壓鑄造(HPDC)常見於如今的金屬加工業中，用以填補高溫熔融金屬在凝固過程中產生的凝固縮孔以及缺孔[1]，然而在壓縮過程中極易產生不均勻的壓力場，進而造成諸如剪切開裂、帶狀孔洞、宏觀偏析、熱撕裂等等[2, 3]。

在先前的研究中發現到等軸晶粒在特定的荷重下，半固態合金在枝晶接觸點之上與準固態顆粒有相似的性質。Gourlay 等人[3]皆發現到晶粒會因為壓縮以及剪切應力導致晶粒出現重排進而導致剪切誘發膨脹，這種行為類似於緊密堆積顆粒材料中的雷諾膨脹現象(Reynold's dilatancy phenomenon)相似。而隨著同步輻射技術的進步，Kareh 等人[4]透過單軸壓縮測試搭配同步輻射直接的觀察到了晶粒在受力後的晶粒重排現象，同時也觀察到了顆粒的體積以及形狀在整個壓縮過程中幾乎沒有變化可被視為準剛性性質，類似於一般常見的土壤顆粒。

有了上述的發現促使了不少學者嘗試利用離散元素法以及臨界土壤力學(critical state soil mechanism(CSSM))來模擬晶粒的運動行為如：Yuan 等人[5]透過細胞自動機(cellular automata) 製造等軸樹枝狀晶體模型並透過二維離散元素法發現於接觸固相分率下剪切強度顯著提升代表剪切膨脹的開始。Su 等人[2]則透過耦合二維 LBM-DEM 的方式研究半固態鋁合金在受到剪切後的流變行為。不過在 Su 等人[6]後續的非臨場同步輻射排水壓縮實驗中發現到晶粒在移動約束力極強的環境下，由於應力的累積導致晶粒出現變形或是破壞進而導致晶粒出現重熔和動態再結晶的現象，也因此透過比較模擬與實驗的結果進行應力分析變得尤為重要。

在本次研究中我們參考了 Su 等人[6]在排水壓縮時的研究方法，透過 Hertz 模型模擬顆粒與牆體之間的非線性碰撞並以 Burgers 碰撞模型模擬晶粒間的黏彈性

碰撞。同時我們利用土壤力學中常見的三軸壓縮測試去模擬現實生活中常見的複雜應力環境對晶粒運動行為的影響並對標 Altuhafi 等人進行的半固態鋁合金三軸壓縮測試數據。





Chapter 2 文獻回顧

2.1 晶粒形貌在不同凝固階段的變化

2.1.1 成核

在不同物理狀態下，物質型態上發生的變化其最終的目的是為了降低其自身的能量以達到在該物理狀態下的平衡狀態。吉布斯自由能為最常見用來描述物質型態在不同物理狀態下能量的方法，公式如下：

$$G = H - TS \quad \text{Eq. 2.1-1}$$

當中 G 代表吉布斯自由能、 H 代表焓、 T 為絕對溫度而 S 為熵。假設有一金屬從高溫液態冷卻下來到凝固點前時，固態下的吉布斯自由能較液態時高，因此在凝固點前液態較固態穩定。但在凝固點後，固態時的自由能比液體低，此時固體較為穩定。而在液態與固態的吉布斯自由能交會時的點稱為凝固點如圖 2.1-1 所示。

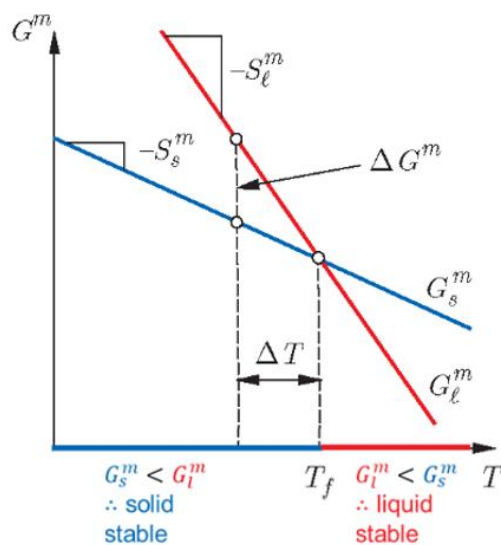


圖 2.1-1 吉布斯自由能與溫度之間的變化圖[7]。



但是現實中固體很少會在凝固點出現，這是由於凝固發生時，液體中的原子需形成晶核胚(embryo)，其與液體間會出現固液介面生成介面能如圖 2.1-2。

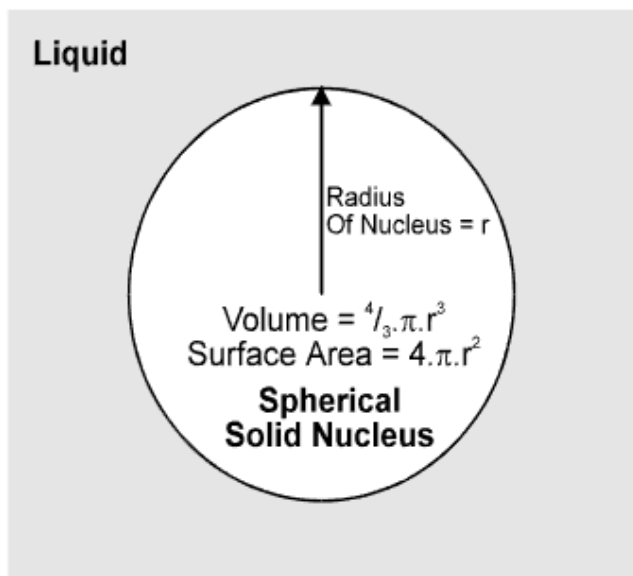


圖 2.1-2 胚核與液體之間的介面示意圖[7]。

因此這裡吉布斯自由能公式要修改為 Eq. 2.1-2，當中第一項為計算固相與液相間的吉布斯自由能差， R 為晶胚半徑、 ρ_s 為固體密度、 Δs_f 為每公斤的熵變化量、 ΔT 為與凝固點之間的溫度差並假設固液之間的焓和熵的差在不同溫度下不變。第二項為介面能其中 γ_{SL} 每平方米的介面能。圖 2.1-3 為晶胚在不同半徑下的自由能變化圖，綠色線和藍色線分別為第一項和第二項的計算結果而紅色則為兩者相加，能從圖中發現一開始隨著晶胚半徑的增加其自由能也會跟著增加，這段期間晶胚的狀態極其不穩定，基本無法形成穩定的固相。直到液體中的原子在碰撞後生成半徑大於 R_c 的晶胚才會開始穩定的生長。而由於 R_c 所對應到的自由能最大因此將 Eq. 2.1-2 微分後可得 Eq. 2.1-3，由此可知 $R_c \propto \frac{1}{\Delta T}$ 。因此當物質開始凝固時產生的晶胚臨界半徑會隨著與凝固點之間的溫度差增加而有所減少，始晶胚更容易達到 R_c ，這種溫度差被稱為過冷度。上述發生的情況被稱為均質成核，然而這種成核方式極其罕見因為在現實生活中所需的過冷度極大，因此大多由接下來所要介紹的異質基

底成核完成。



$$\Delta G_{total}^{homo} = -\frac{4}{3}\pi R^3 \rho_s \Delta s_f \Delta T + 4\pi R^2 \gamma_{SL} \quad \text{Eq. 2.1-2}$$

$$R_c = \frac{2\gamma_{SL}}{\rho_s \Delta s_f \Delta T} \quad \text{Eq. 2.1-3}$$

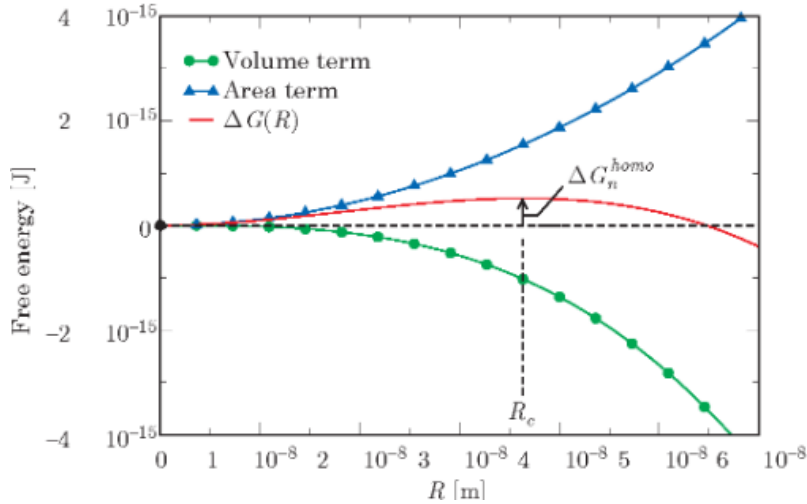
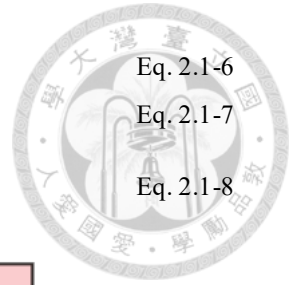


圖 2.1-3 自由能與晶胚關係圖[7]。

異質基底成核相較於均質成核而言，其首先需要雜質存在於液體中才能完成，以圖 2.1-4 為例藍色部分為晶胚、紅色為液體而黑白相間的部分為雜質，Eq. 2.1-4 為此時固體的體積，Eq. 2.1-5 為固體在液體內的表面積而 Eq. 2.1-6 為固體在雜質部分的表面積，最後 Eq. 2.1-7 為整體晶胚生成後的總表面能，搭配 Eq. 2.1-2 所提出的概念經整理後可得 Eq. 2.1-8。這裡可以簡單理解為均質成核所需的自由能乘以 $f(\theta)$ 就是異質基底成核所需的自由能，當中 $f(\theta)$ 經過計算後大部分的情況下都小於 1 如圖 2.1-5 所示，由此可知異質基底成核所需的過冷度小於均質成核所需的過冷度，也是現實生活中常見的成核方式。

$$V_s = \frac{\pi R^3}{3} (2 + \cos\theta)(1 - \cos\theta)^2 \quad \text{Eq. 2.1-4}$$

$$A_{SL}^{hetero} = 2\pi R^2 (1 - \cos\theta) \quad \text{Eq. 2.1-5}$$



$$A_{fs}^{hetero} = \pi R^2 (1 - \cos^2 \theta)$$

Eq. 2.1-6

$$\Delta G_{surface}^{hetero} = A_{SL}^{hetero} \gamma_{SL} + A_{fs}^{hetero} (\gamma_{fs} - \gamma_{fl})$$

Eq. 2.1-7

$$\Delta G_{total}^{hetero} = \Delta G_{total}^{homo} \frac{(2 + \cos \theta)(1 - \cos \theta)^2}{4} = \Delta G_{total}^{homo} f(\theta)$$

Eq. 2.1-8

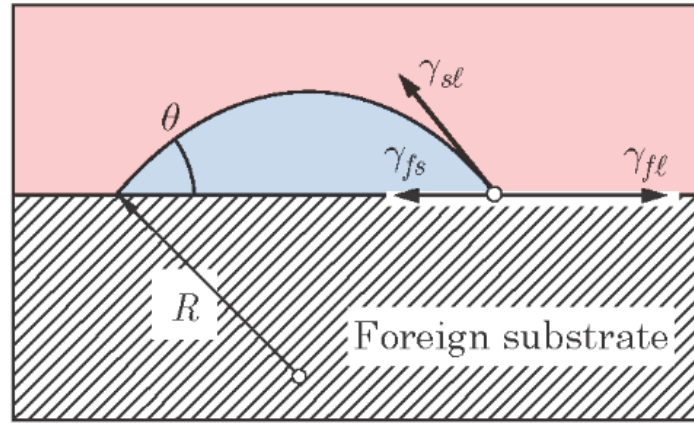


圖 2.1-4 異質基底成核示意圖[7]。

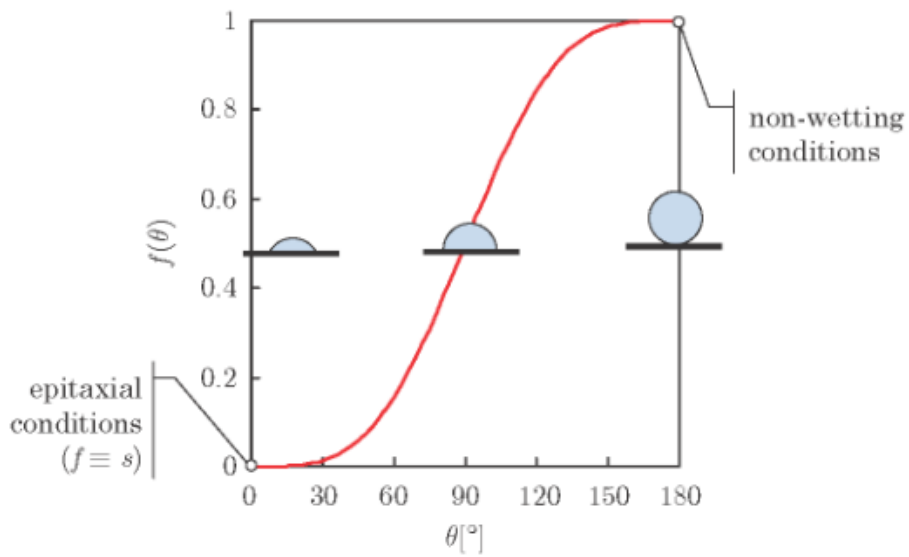


圖 2.1-5 $f(\theta)$ 與浸潤角變化圖[7]。



2.1.2 介面能對晶粒形貌的影響

在晶胚生成後，晶胚成長的形貌受到其介面能量的影響，這裡將介紹傑克森模型來講述這樣的概念。圖 2.1-6 顯示了傑克森模型下晶粒成長的模式，固體中的原子會與周圍的固體原子斷鍵並跑到固體表面與部分液體和固體原子鍵結，在這個過程中由於固液鍵結的鍵能低於固-固鍵結，整體的內能升高對應的焓也跟著增加，其變化量可由 Eq. 2.1-9 計算，當中 n 為固體中的原子跳到表面的數目、 Δh 為每顆原子跑到表面後的焓變化、 Z 為配位數、 η_1 為在表面與液體原子間的配位數。但這條公式僅限於表面原子間相互獨立，但在表面變化到圖 2.1-6(c) 時，表面原子再也不是相互獨立因此會加入修正項獲得 Eq. 2.1-10 當中 N 為表面空位的數目。

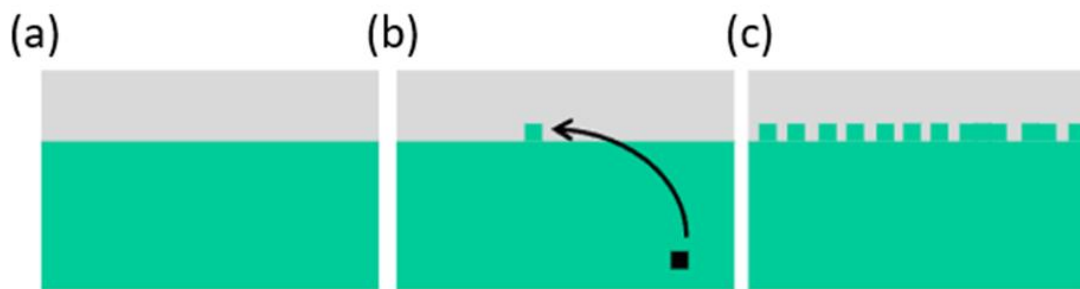


圖 2.1-6 傑克森模型示意圖[7]。

$$\Delta H' = n \frac{\Delta h}{Z} \eta_1 \quad \text{Eq. 2.1-9}$$

$$\Delta H' = n \frac{\Delta h}{Z} \eta_1 \left(\frac{N - n}{N} \right) \quad \text{Eq. 2.1-10}$$

相較於計算焓的變化量，傑克森模型對自由能的計算更感興趣因此要先算出熵的變化，根據波茲曼方程式 Eq. 2.1-11 可得熵的變化量，透過 Stirling 近似可將 Eq. 2.1-11 轉成 Eq. 2.1-12。最後將 Eq. 2.1-10 和 Eq. 2.1-12 代入 Eq. 2.1-1 可得 Eq. 2.1-13，其中 $L = \Delta hN$ ，物理意義為每莫爾的潛熱。



$$\Delta S = k \ln W = k \ln \left(\frac{N!}{n!(N-n)!} \right) \quad \text{Eq. 2.1-11}$$

$$\Delta S = -Nk \left(\left(\frac{N-n}{N} \right) \ln \left(\frac{N-n}{N} \right) + \left(\frac{n}{N} \right) \ln \left(\frac{n}{N} \right) \right) \quad \text{Eq. 2.1-12}$$

$$\Delta G = \frac{L\eta_1}{Z} \frac{n}{N} \frac{N-n}{N} - NkT \left(\left(\frac{N-n}{N} \right) \ln \left(\frac{N-n}{N} \right) + \left(\frac{n}{N} \right) \ln \left(\frac{n}{N} \right) \right) \quad \text{Eq. 2.1-13}$$

接著傑克森模型定義傑克森常數 $\alpha = \frac{\eta_1 L}{RTZ}$ 且 $X = \frac{n}{N}$ 代入 Eq. 2.1-13 轉成 Eq. 2.1-14。

$$\frac{\Delta G}{RT} = \alpha X(1-X) + (1-X) \ln(1-X) + X \ln X \quad \text{Eq. 2.1-14}$$

圖 2.1-7 為自由能與已佔位的表面空位的關係圖，能從中看到當傑克森常數大於 2 時，自由能的最低值發生在兩端，這意味著原子無法任意填在固體表面需要以特定的方式填入如圖 2.1-8(b)，這類型的元素大多為非金屬或類金屬元素如碳、矽、鍺，這類元素的固液介面能較高，凝固時沿著特定方向生長。而傑克森常數低於 2 的大多為金屬，這類物質固液介面能較低，生長方式相較隨意如圖 2.1-8(a)。

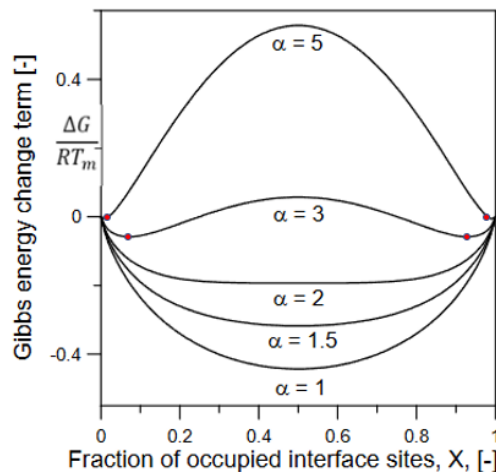


圖 2.1-7 自由能與已佔位的表面空位的關係圖[8]。

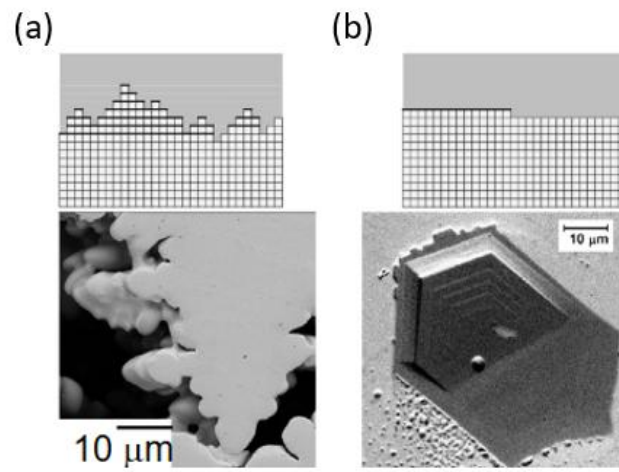


圖 2.1-8 傑克森模型預測晶粒形貌例圖[8]。



2.1.3 熱流對晶粒形貌的影響

除了上述討論介面自由能造成的影響之外，在凝固時潛熱所造成的熱梯度變化也會對晶粒形貌造成影響。一般來說計算熱流的方法可用 Fourier Law 來求解，Eq. 2.1-15 和 Eq. 2.1-16 分別為傅立葉第一定律(Fourier 1st Law) 和傅立葉第二定律(Fourier 2nd Law)的表示式。假設純金屬在凝固時固態和液態的熱傳皆為穩定態(steady state)，並且在凝固時所散發的潛熱可用 Eq. 2.1-17 表示， ρ 為金屬密度、 L 為金屬凝固時的潛熱而 V 為固液接面的成長速度。根據能量守恆定律可將Eq. 2.1-15 和 Eq. 2.1-16 寫成等式 Eq. 2.1-18。

$$q = -k \frac{dT}{dx} \quad \text{Eq. 2.1-15}$$

$$\frac{dT}{dt} = \alpha \frac{d^2T}{dx^2} \quad \text{Eq. 2.1-16}$$

$$q = \rho LV \quad \text{Eq. 2.1-17}$$

$$k_S \left(\frac{dT}{dx} \right)_{solid} = \rho LV + k_L \left(\frac{dT}{dx} \right)_{liquid} \quad \text{Eq. 2.1-18}$$

在這裡討論兩種情況，第一種為液體溫度高於介面的溫度如圖 2.1-10。在這種情況下其內部熱量須由固體傳導出去，若是固體的一部分發生突起，其在固態部份的溫度梯度會減少而在液體部份則會增加，如圖 2.1-9 所示。透過 Eq. 2.1-18 可知突起部份的固液接面成長速度減緩，整體傾向於平面式成長。另一方面若是液體溫度低於介面的凝固溫度如圖 2.1-11，這種情況下凝固時的潛熱會由液體和固體共同傳導出去，此時若是固體的一部分發生突起，透過 Eq. 2.1-18 可知突起部份的成長速度會出現增加的情況，整體傾向於突起式生長。

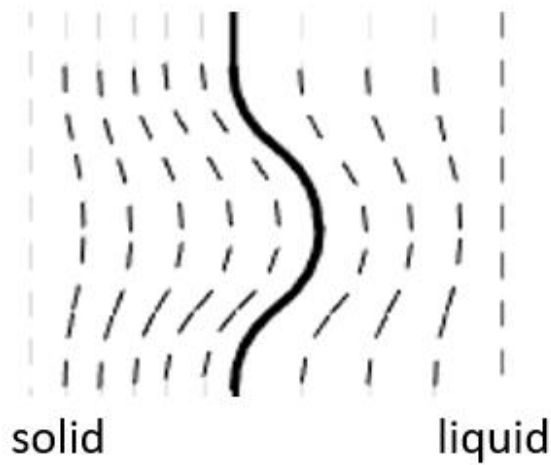


圖 2.1-9 凝固時產生突起後溫度梯度的變化[9]

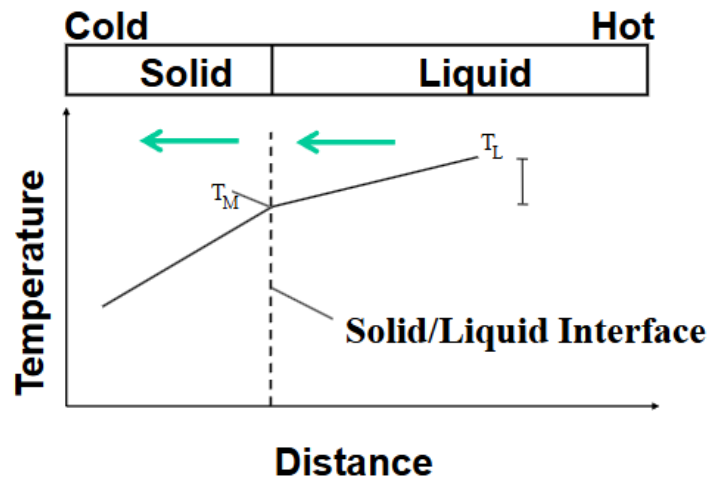


圖 2.1-10 液體溫度高於接面時溫度與距離關係圖[9]。

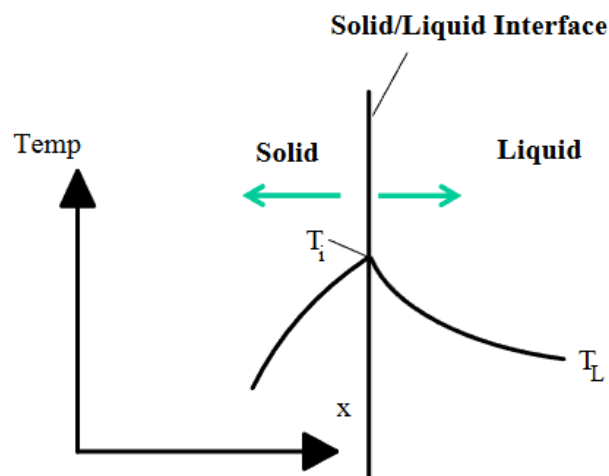


圖 2.1-11 液體溫度低於接面時溫度與距離關係圖[9]。



2.1.4 平衡凝固模型

這一章前幾節的討論都是基於純物質下的晶粒形貌變化，但由於傑克森常數較大的物質極易受到介面能影響，在接下來討論混合物的凝固章節中會因為溶質濃度的變化而變得複雜因此接下來會以合金為基礎討論。一般來說合金的晶粒形貌會隨著溫度、固相分率、壓力、冷卻速度、加工過程、熱處理手法以及成份而發生變化，一般來說可以透過槓桿法則(lever rule)在相圖上得知合金在不同溫度下的相分率如圖 2.1-12，但由於相圖是基於完全平衡下的合金繪製出來，也就是溶質在固體和液體中進行充分的擴散，現實中難以實現，因此在這數年來發展出基於熱流以及濃度差流來模擬出晶粒在冷卻後的形貌和固相分率。

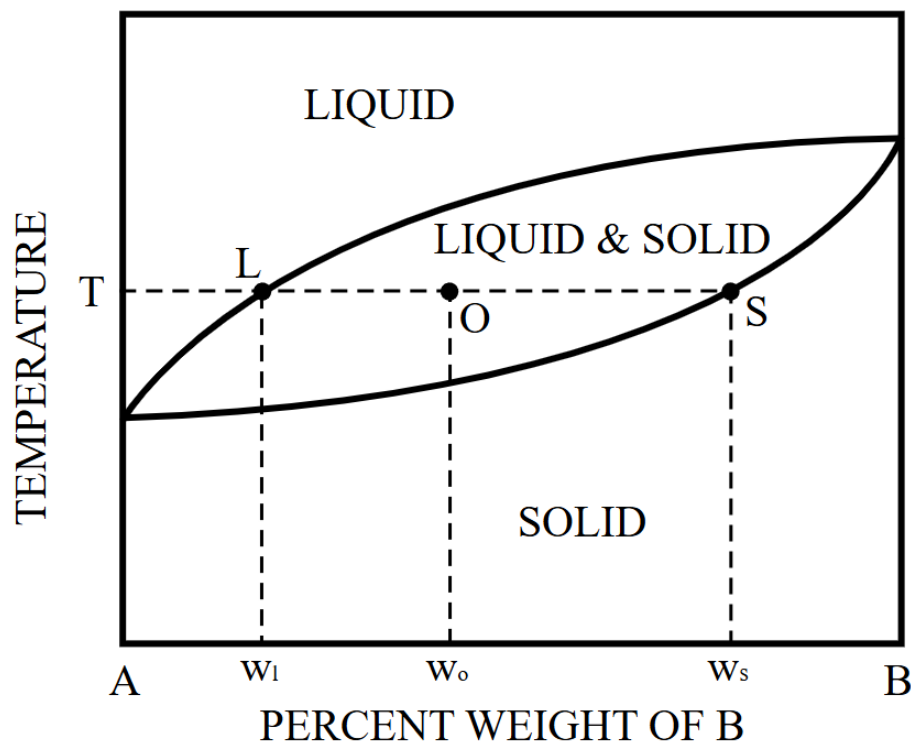


圖 2.1-12 槓桿法則示意圖[10]。



2.1.5 Scheil 凝固模型

Scheil 凝固為研究不平衡凝固時最常見的一種模型，相較於平衡凝固模型下固液中的溶質能夠近乎無障礙的擴散而獲取平衡，Scheil 凝固模型做了以下幾種假設：

1. 溶質在固體中完全不會擴散，溶質擴散係數是零
2. 液體在任何溫度下發生完全擴散，溶質擴散係數無限大
3. 固液介面會有區域平衡
4. 固相線和液相線為直線，因此分配係數通常為常數（如果用計算相圖熱力學軟體則不需要這個假設）

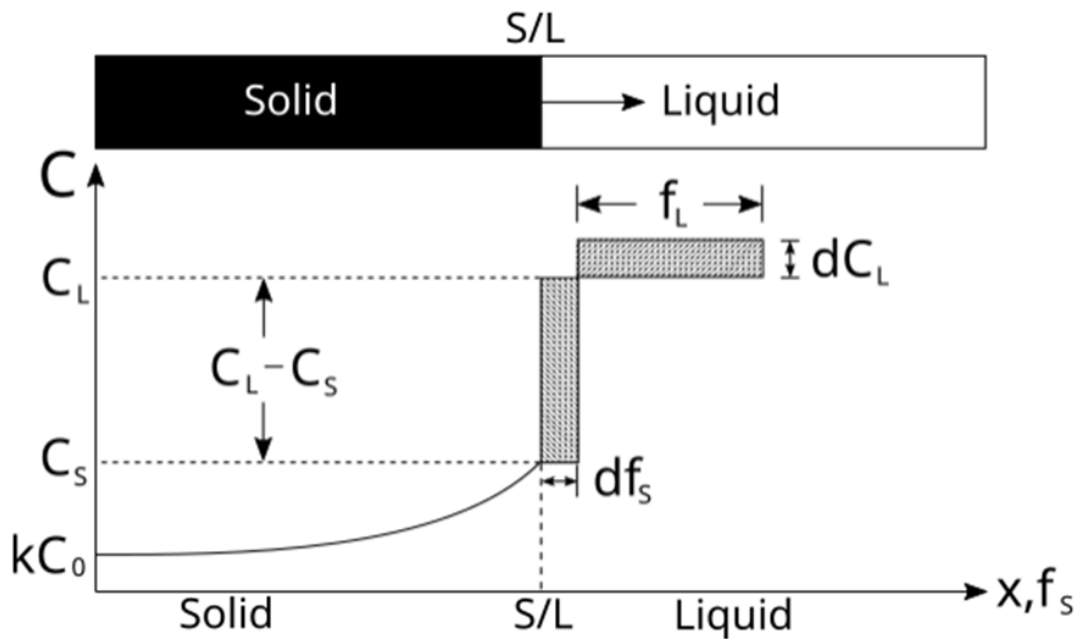


圖 2.1-13 Scheil 溶質溶液濃度關係圖[7]。

根據質量守恆以及上方的示意圖 2.1-13，Gulliver-Scheil [11]透過計算灰色部分可得到式 Eq. 2.1-19 其中 C_L 為液體中的溶質濃度、 C_S 為固體中的溶質濃度而 f_s 為固態分率。假設分配係數 k 和固體中溶質、液體中溶質的關係式為 Eq. 2.1-20，又由於固態與液態分率總合為 1，可得 Eq. 2.1-21：

$$(C_L - C_S)df_s = f_L dC_L \quad \text{Eq. 2.1-19}$$

$$k = \frac{C_S}{C_L}$$

$$f_S + f_L = 1$$



將 Eq. 2.1-20 代入 Eq. 2.1-19 中可得 Eq. 2.1-22 :

$$C_L(1-k)df_S = (1-f_S)dC_L \quad \text{Eq. 2.1-22}$$

並以開始凝固時的固相分率 $f_S = 0$ 時的濃度 $C_L = C_0$ 作為邊界條件，可得 Eq. 2.1-23

$$\int_0^{f_S} \frac{df_S}{1-f_S} = \frac{1}{1-k} \int_{C_0}^{C_L} \frac{dC_L}{C_L} \quad \text{Eq. 2.1-23}$$

在積分後可得 Eq. 2.1-24，並透過 Eq. 2.1-20 以及 Eq. 2.1-21 代換可得 Eq. 2.1-25

$$C_L = C_0(f_L)^{k-1} \quad \text{Eq. 2.1-24}$$

$$C_S = kC_0(1-f_S)^{k-1} \quad \text{Eq. 2.1-25}$$

Eq. 2.1-24 和 Eq. 2.1-25 即為 Scheil equation 常見的形式。



2.1.6 穩態溶質擴散

在 2.1.5 節介紹了 Scheil 凝固模型，相較於前面所說的平衡模型，Scheil 模型處於另外一種極端情況，因此現實當中枝晶前緣要考慮溶質在液體中的擴散係數很少完全遵守 Scheil 模型的凝固行為，因此將 Scheil 模型的部分假設修改：

1. 溶質在固體中完全不會擴散，溶質擴散係數是零。
2. 液體在任何溫度下發生完全擴散，溶質擴散係數並非無限大。
3. 固液介面會有區域平衡。
4. 固相線和液相線為直線，因此分配係數通常為常數。

透過上述的假設，並交給電腦計算後可得圖 2.1-14，能發現在一開始時固液介面的濃度會隨著時間的增加而有所增加，最後到達穩定態。在穩定態時，可以透過費克第二定律(Fick's second law(Eq. 2.1-27))和質量守恆得到濃度變化曲線。圖 2.1-15 中可得到溶質從固體析出到固液介面的濃度可寫為 Eq. 2.1-28。在穩定態時，由於固液介面濃度不變可得 Eq. 2.1-29。最後透過代入穩定態下時的邊界條件 $x = 0, C_L = \frac{C_0}{k}$ 、 $x = \infty, C_L = C_0$ ，最後可得到 Eq. 2.1-30。

$$\int_0^{f_S} \frac{df_S}{1-f_S} = \frac{1}{1-k} \int_{C_0}^{C_L} \frac{dC_L}{C_L} \quad \text{Eq. 2.1-26}$$

$$\frac{dC_L}{dt} = -D_L \left(\frac{d^2 C_L}{dx^2} \right) \quad \text{Eq. 2.1-27}$$

$$\frac{dC_L}{dt} = V \left(\frac{dC_L}{dx} \right) \quad \text{Eq. 2.1-28}$$



$$-D_L \left(\frac{d^2 C_L}{dx^2} \right) = V \left(\frac{dC_L}{dx} \right) \quad \text{Eq. 2.1-29}$$

$$C_L = C_0 + \left(\frac{C_0}{k} - C_0 \right) e^{\left(-\frac{Vx}{D_L} \right)} \quad \text{Eq. 2.1-30}$$

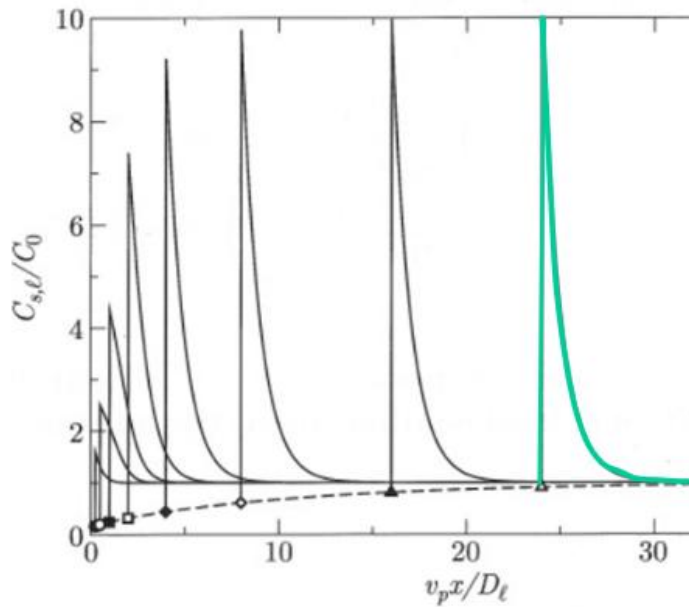


圖 2.1-14 為對 Scheil 模型進行部分修改後的溶質溶液關係圖[8]。

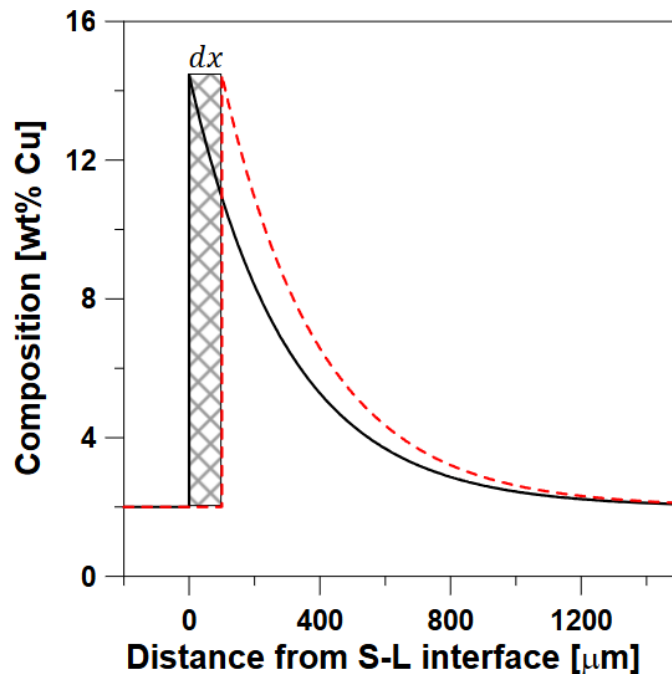


圖 2.1-15 固液介面在 dt 時間內濃度變化圖[8]。



2.1.7 組成過冷

組成過冷是一種由於凝固發生時，因溶質在溶液中的濃度擴散不均造成的現象。這裡可以透過 2.1.3 節中所提過的凝固模型來解釋。圖 2.1-16 (a)為套用 Eq. 2.1-30 後的濃度分佈圖，圖 2.1-16 (b)為根據圖(a)的濃度變化代入相圖的液相線中，並假設液相線為線性可寫成 Eq. 2.1-31 而得到的液相線溫度變化圖。而圖 2.1-16(c)和(d)當中紅色虛線代表了液體在固液接面前的溫度曲線，在圖(c)中能發現液體內的溫度始終比液相線高，這種凝固情況類似於 2.1.3 節中所介紹的第一種凝固情況因此晶粒呈現平面成長。圖(d)則呈現相反的情況液體的溫度低於液相線的溫度，這種現象就稱為組成過冷，在這樣的情況下其晶粒成長方式與 2.1.3 節中介紹的第二種凝固情況相似因此晶粒呈現突出式的成長。

$$T_L = m_L C_L + T_m \quad \text{Eq. 2.1-31}$$

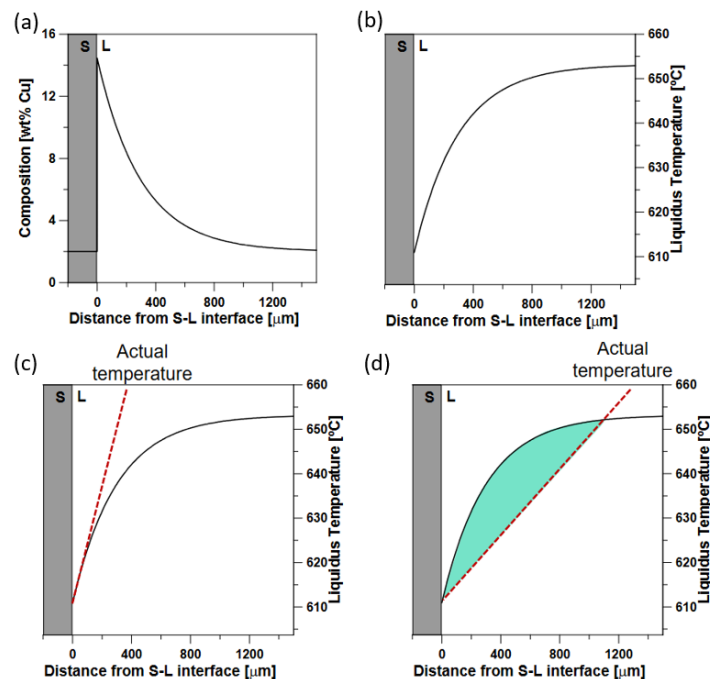


圖 2.1-16(a)為透過 2.1.3 節中的模型推導的濃度分佈曲線。圖(b)為利用濃度分佈曲線代入 Eq. 2.1-31 後得到的液相線溫度分佈曲線圖。(c)為發生組成過冷時的臨界溫度分佈圖。圖(d)為組成故過冷溫度分佈圖[12]。

最後這裡結合這一節中討論的兩種情況，我們可以得知晶粒形貌的變化可藉由是否發生組成過冷得知，而發生組成過冷的臨界條件如圖 2.1-16(c)所示，在固液接面時的液體溫度梯度與液相線的斜率相等，透過將 Eq. 2.1-30 進行微分可得 Eq. 2.1-32，又在固液接面時 $x=0$ ，代入 Eq. 2.1-32 後得到 Eq. 2.1-33。最後將 Eq. 2.1-31 微分後將 Eq. 2.1-33 代入，可得 Eq. 2.1-34。最後可以由此式得知晶粒的形貌受到液體溫度梯度、凝固速度以及合金組成影響，並將影響的能力呈現於圖 2.1-17。

$$\frac{dC_L}{dx} = \left(\frac{C_0}{k} - C_0\right) e^{\left(-\frac{V \cdot x}{D_L}\right)} \left(-\frac{V}{D_L}\right) \quad \text{Eq. 2.1-32}$$

$$\left(\frac{dC_L}{dx}\right)_{x=0} = -\frac{VC_0}{D_L} \left(\frac{1-k}{k}\right) \quad \text{Eq. 2.1-33}$$

$$\left(\frac{dT_L}{dx}\right)_{x=0} = m_L \left(\frac{dC_L}{dx}\right)_{x=0} = -\frac{m_L VC_0}{D_L} \left(\frac{1-k}{k}\right) \quad \text{Eq. 2.1-34}$$

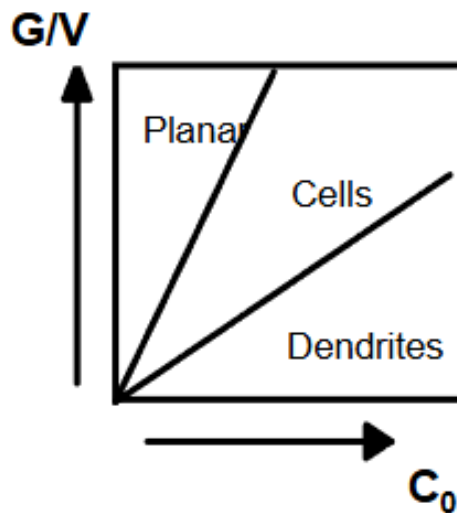


圖 2.1-17 晶粒形貌與液體溫度梯度、凝固速度以及溶質濃度關係圖[12]。



2.2 晶粒形貌在半固態熱機階段的變化

2.2.1 鋁合金連續動態再結晶機制

再結晶是一種晶粒再受到嚴重塑性變形後，由於晶粒內部產生大量的差排或是缺陷產生，致使晶粒內部能量增高，材料內部生成未受塑性變形影響的細小等軸晶粒。一般來說再結晶分為靜態再結晶和動態再結晶，靜態再結晶主要發生在冷加工到一定程度後，透過退火加熱到溫度大於0.4倍的熔點溫度時產生新晶粒取代舊晶粒的現象。而動態再結晶則是發生在高溫下進行熱加工到一定程度後，晶粒內部同時發生回復以及差排累積形成新晶粒的現象。目前常見的動態再結晶主要分為三種：不連續動態再結晶(Discontinuous Dynamic Recrystallization (DDRX))、連續動態再結晶(Continuous Dynamic Recrystallization (CDRX))以及幾何動態再結晶(Geometric Dynamic Recrystallization (GDRX))[13]。這些再結晶的啟動機制會因為材料的疊層錯能、加工手法、晶粒形貌等原因影響比如低疊層錯能的材料會傾向於利用差排的滑移以及生成機械雙晶的方法進行塑性變形[14]，這種變形方式容易快速累積差排到一定密度後促使再結晶成核，隨後透過差排密度差促使高角度晶界進行長程遷移[15]，這種兩階段式的再結晶機制被歸類為不連續動態再結晶。而在高疊層錯能中差排快速移動相互抵消，意味著回復能力強，這樣的行為會抑制不連續動態再結晶的成核，因此大部份高疊層錯能的材料如：鋁合金、 β 相鈦合金以及肥粒鐵傾向發生連續動態再結晶[15]。

在鋁合金的連續動態再結晶中，主要由三種不同的機制主導分別為錯取角的累積、晶界附近的晶格扭轉以及微剪切帶的輔助動態再結晶[13]。第一種機制錯取角累積會造成的動態再結晶主要發生在高溫下的變形，此時鋁合金中的微觀組織



變得相對均勻，剪切帶和變形帶變的不明顯。由於塑性變形的關係差排不斷的形成並且逐漸累積在低角度晶界導致錯取角增加，當錯取角達到 15° 時，低角度晶界轉變為高角度晶界從而形成新的再結晶顆粒[16]。

第二種機制為晶界附近的晶格扭轉，這種現象主要發生在諸如 Al-Mg 或是 Al-Zn 合金中，根據 Drury 等人[17]的研究首先在塑性變形的過程中，晶界會在取向有利的晶界上發生晶界滑移如圖 2.2-1(a)所示，在此過程中由於兩晶粒間的差排密度不平衡導致高角度晶界在遷移後形成鋸齒狀的結構如圖 2.2-1(b)所示。然而晶粒滑移的現象會消除這些鋸齒狀的結構，因此在不易滑移的晶界上會形成較大的鋸齒亦或是突起如圖 2.2-1 (c)，然而這些突起部份所存在的晶界後續仍有機會產生滑移，導致局部晶格旋轉使晶界形狀不對稱促進次晶的形成如圖 2.2-1 (d)。最後次晶的錯配角會因為塑性變形的關係逐漸上升直至形成新晶粒。

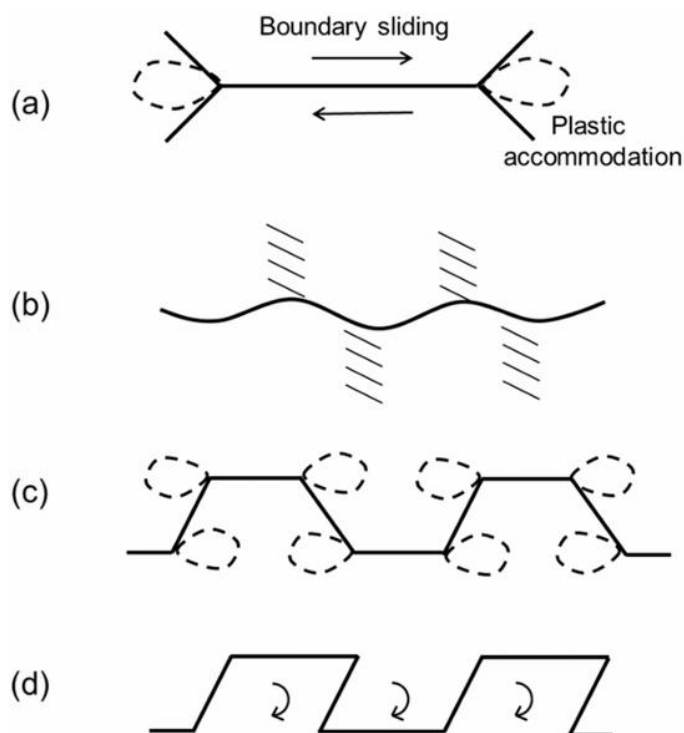


圖 2.2-1 由晶界附近的晶格扭轉造成的連續動態再結晶示意圖。(a)表示晶界滑移再三相點的部份應力集中導致塑性變形集中(b)差排密度差導致高角度晶界遷移所形成的鋸齒狀結構(c)由於部份的差排移動以及部分的晶界滑移形成的殼層結構(d)由於晶界滑移導致殼層結構中的突起剪切產生次晶[13]

第三種機制為剪切帶輔助連續動態再結晶，這種機制在嚴重塑性變形(SPD)中可促使超細晶(UFG)微結構的形成。在這一過程中在低應變階段差排會組織成細胞狀的亞結構，可被視為新晶粒形成的孕育期對應到圖 2.2-2 中的第一階段，隨後隨著變形的進行晶粒內部形成多個微剪切帶致使平均錯取向快速增加，最終形成微剪切帶網路如圖 2.2-3(a)所示其對應到圖 2.2-2 中的第二階段。後續變形會使微剪切帶的密度顯著增加，同時高角度與低角度晶界也隨著增加，這種現象在材料內部分佈並不均勻，主要集中於微剪切帶內部尤其在微剪切帶的交叉處。隨後超細晶結構的比例增加使等軸晶結構逐步擴展至整個體積[13]。

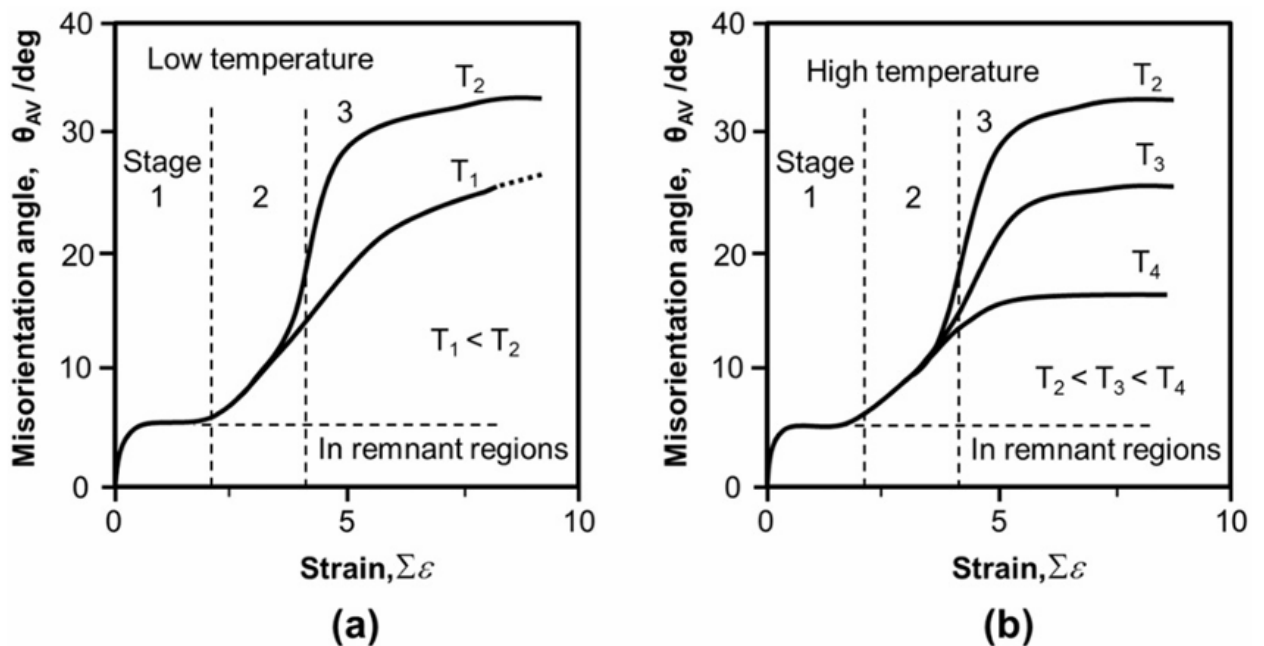


圖 2.2-2 (次)晶界錯位角隨著應變變化圖(a)高度合金化且含有細小顆粒並在低溫下的變化圖(b)低合金含量材料在高溫下(大於0.5倍的熔點)的變化圖[13]

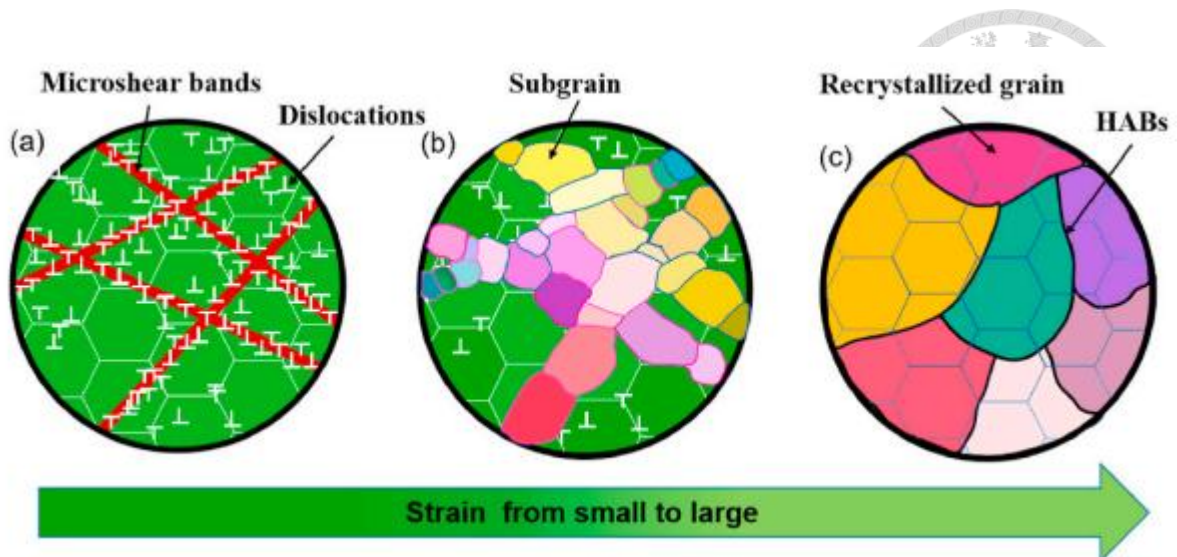


圖 2.2-3 微剪切帶促進次晶形成過程：(a)多個含有高密度位錯的微剪切帶；(b)次晶在微剪切帶附近形成；(c)次晶通過旋轉和長大形成再結晶晶粒。[18]

2.2.2 鋁合金球化熱處理

由前述 2.1 章節中所講述關於凝固的各個過程中晶粒形貌的變化，由於在工業製程下金屬凝固的過程通常處於不平衡的狀態因此生成的初始晶粒可能為柱狀樹枝晶、等軸樹枝晶或是柱狀晶。然而由於這種形狀下的晶粒表面積並非最小，這意味著整體系統自由能並非最低，因此當升溫後持續一段時間，由於原子獲得能量可以移動使整體的晶粒形狀會逐漸傾向於球形。隨後為了使自由能持續降低，顆粒間的距離增加且顆粒總數減少，這一過程通過顆粒間的濃度差引起的濃度流來實現，由於小晶粒的曲率較大附近的溶質濃度較高促使溶質流向大顆粒促使小顆粒溶解和大顆粒的粗化，這個過程被稱為奧斯特瓦爾德熟化[19, 20]如圖 2.2-4。

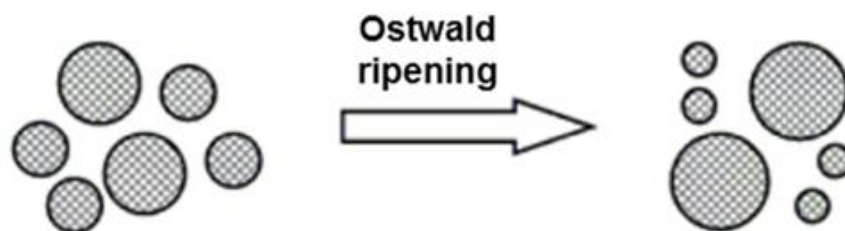


圖 2.2-4 奧斯特瓦爾德熟化[21]

該模型假設顆粒所產生的擴散場為圓形彼此之間互不干擾且有較高的界面能。

晶粒尺寸的大小與時間的關係通常可用 Eq. 2.2-1 表示[22]。 d_0 為初始晶粒尺寸、 n 為尺度指數而 k 則代表晶粒的幾何尺寸以及質量傳輸過程對晶粒尺寸造成的影響。其中 D 為液體的擴散係數、 C_α 為固體中析出物的重量百分濃度、 γ_{sl} 為固液介面的濃度、 V_m 為合金每莫爾的體積、 R 為理想氣體常數最後 T 為絕對溫度。

$$d^n = d_0^n + kt \quad \text{Eq. 2.2-1}$$

$$k = \frac{8DC_\alpha\gamma_{sl}V_m}{9RT} \quad \text{Eq. 2.2-2}$$

其中若是材料遵循奧斯特瓦爾德熟化則 $n = 3$ ，這種情況大多屬於長時間將合金置於高溫球化狀態且固相分率較低。然而現實生活中很多球化合金時的溫度其體積固相分率大於 0.5，且時間不足以長到奧斯特瓦爾德熟化的 n 值理論值出現，這種情況下 n 值落在 3 到 4 之間，造成 n 值增加的原因可歸咎於晶粒聚結的影響。Rappaz 等人[23]提出了 Eq. 2.2-3，計算將兩個平坦的固-液界面轉變為晶界所需的過冷度 (ΔT_b)：

$$\Delta T_b = \frac{\gamma_{gb} - 2\gamma_{sl}}{\Delta S_f} \cdot \frac{1}{\delta} \quad \text{Eq. 2.2-3}$$

其中 δ 為固液介面的厚度、 γ_{gb} 以及 γ_{sl} 分別為晶界和固液界面能最後 ΔS_f 是融化熵。從 Eq. 2.2-3 可知如果要發生聚結需要一定的過冷度，當 ΔT_b 小於 0 代表處在的溫度略高於液相線，晶粒間的液膜在此期間表現不穩定直到過冷度大於 0，液膜才能穩定存在。最後當過冷度大於 ΔT_b 液膜會開始逐漸消失，使晶粒相互接觸開始發生聚結以及產生晶界。以鋁銅合金為例由於合金的球化溫度高於共晶溫度 (547°C) 約 2 到 3°C，低於對應的液相線溫度約 100 度，這種情況下合金極易發生聚結反應且由於固體與固體之間的介面能小於兩倍的固體與液體之間的介面能，這就造成了若是晶粒相互碰觸會迅速產生新的固-固界面以降低介面能使晶粒尺寸增加如圖 2.2-5，這種機制下會使 Eq. 2.2-1 的 n 落在 5 到 6 之間。由此可知合金的球化與粗化

的機制主要是由奧斯特瓦爾德熟化與聚結反應共同主導。

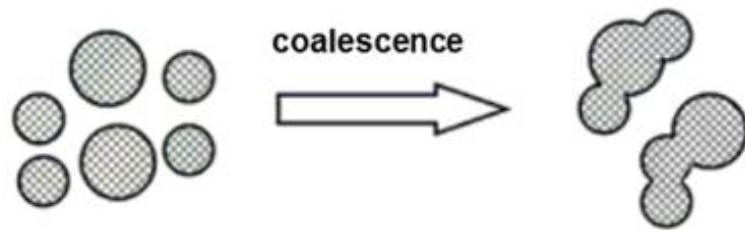
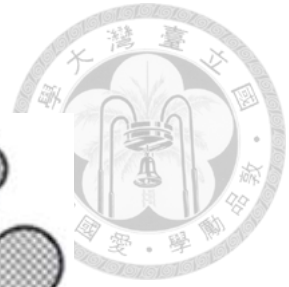


圖 2.2-5 聚結反應[21]





2.3 同步輻射 X 光造影技術應用在合金凝固與糊狀區現象

2.3.1 X 光衰減理論

隨著同步輻射 X 光科技的發展，其對半固態金屬變形[24-26]以及塊狀試片中微觀結構的三維斷層重建[4, 27, 28]對凝固動力學以及鑄造冶金學提供了大量的資訊。而 X 光成像在實驗上的成功主要依賴於 X 光對固液相透射能力的差異所產生的對比度。而 X 光的強度 I 以及其歸一化的形式 τ 可由 Beer-Lambert law 表示[29] 如 Eq. 2.3-1 和 Eq. 2.3-2：

$$I = I_0 \exp(-\mu_{sp} t_{sp}) \quad \text{Eq. 2.3-1}$$

$$\tau = \frac{I}{I_0} = \exp(-\mu_{sp} t_{sp}) \quad \text{Eq. 2.3-2}$$

其中 I_0 為入射光強度， μ_{sp} 為試片的 X 光線性吸收係數， t_{sp} 為試片厚度。試片的 X 光吸收係數受到試片本身的密度以及物理性質影響，並且可寫為 Eq. 2.3-3

$$\mu_{sp} = \sum_i \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_i \rho_i = \bar{\rho} \sum_i \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_i w_i \quad \text{Eq. 2.3-3}$$

$\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_i$ 項表示在特定入射光子能量下，第 i 種質量 X 光吸收係數， ρ_i 則為第 i 種元素的密度。而根據 $\rho_i = \bar{\rho} w_i$ 關係式可進一步分解 Eq. 2.3-3 變為由平均密度 $\bar{\rho}$ 以及元素質量分數 w_i 表達以更理解其物理意義。

通常來說試片內部不同位置的 μ_{sp} 變化會影響到 X 光成像上的對比度，通常來說為了更好地觀察半固態合金會希望固態與液態之間的吸收係數差異越大越好。以鋁銅合金為例，其對比參數 X_{Al-Cu} 可定義為固相與液相的強度差 $(I_S - I_L)$ 與固相強度 I_S 的比值。此外，透過將 Eq. 2.3-2 和 Eq. 2.3-3 代入該比值[29]：



$$X_{Al-Cu} = \frac{I_S - I_L}{I_S} = 1 - \exp [-(\mu_L - \mu_S)t_{Al-Cu}] \quad \text{Eq. 2.3-4}$$

μ_L 和 μ_S 分別為液體和固體 X 光的吸收係數， μ_L 和 μ_S 之間的差異可以透過液體和固體的密度 ρ_L 、 ρ_S ，純鋁和純銅的 X 光吸收係數 $\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{Al}$ 、 $\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{Cu}$ 以及固體和液體中鋁和銅的重量百分比 $W_{Al,S}$ 、 $W_{Cu,S}$ 、 $W_{Al,L}$ 、 $W_{Cu,L}$ 表示：

$$\mu_L - \mu_S = \bar{\rho}_L \left[\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{Al} w_{Al,L} + \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{Cu} w_{Cu,L} \right] - \bar{\rho}_S \left[\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{Al} w_{Al,S} + \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{Cu} w_{Cu,S} \right] \quad \text{Eq. 2.3-5}$$

圖 2.3-1 至圖 2.3-3 分別為 Eq. 2.3-1 至 Eq. 2.3-5 繪製的曲線圖，顯示了 Al-15Cu (重量百分比) 合金的歸一化強度 τ 、對比參數 χ 與試樣參數 (固相率和樣品厚度) 之間的關係。低共晶的鋁銅合金系統中 X 光質量吸收係數和質量密度數據分別來自美國國家標準技術研究院 (NIST)[30]和 Ganesan 等人[31]的研究。研究表明在 15 keV 的光子能量下，當樣品厚度為 150 μm 時，固相與液相的透射強度 τ 均可超過 10%，而對比參數 χ 也大於 35%。這樣的透射強度和對比度使 Al-15Cu 成為研究凝固現象的理想 X 射線成像材料。此外銅 溶質元素在液相中的重量分率以及由此導致的液相密度增加，都會提升液相中的 X 光衰減，從而增強液相、固相及氣孔之間的 X 射線圖像對比度。

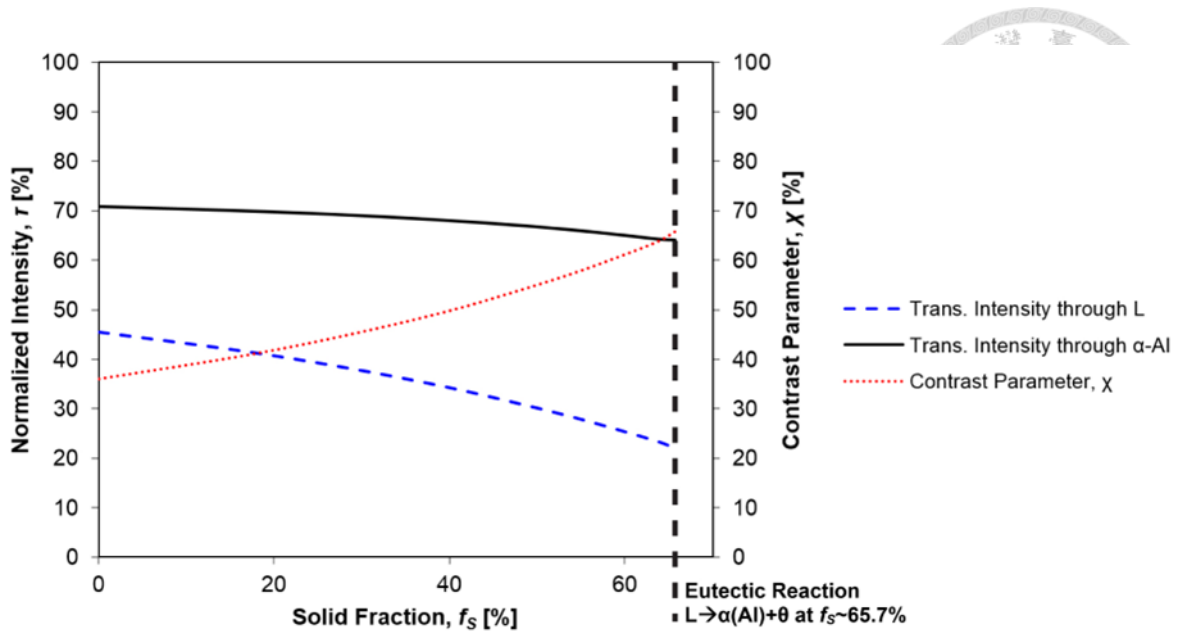


圖 2.3-1 固相率對透射歸一化強度 τ 的影響，針對 Al-15Cu（重量百分比）合金的液相與固相 α -Al 進行分析，並計算相應的對比參數 χ [29]，入射光子能量為 15 keV，樣品厚度為 150 μm 。Al-Cu 合金的 X 光吸收係數與密度數據分別來自[30]和[31]。

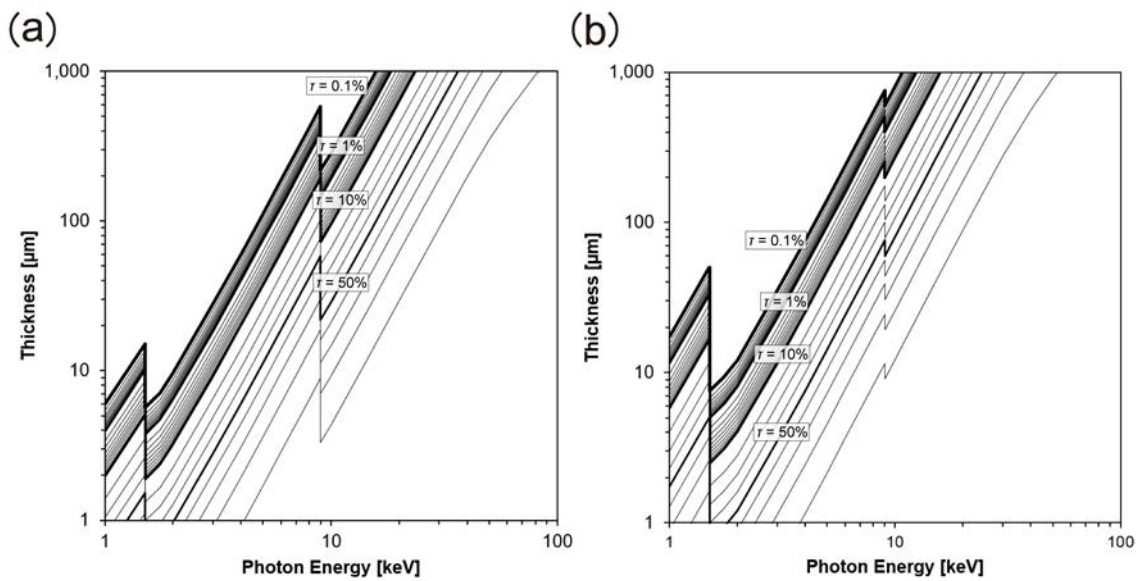


圖 2.3-2 歸一化透射強度 τ 隨樣品厚度和光子能量的變化：(a) 液相與 (b) 固相的 Al-15Cu（重量百分比）合金且固相率為 0.5。Al-Cu 合金的 X 光吸收係數與密度數據分別來自[30]和[31]。

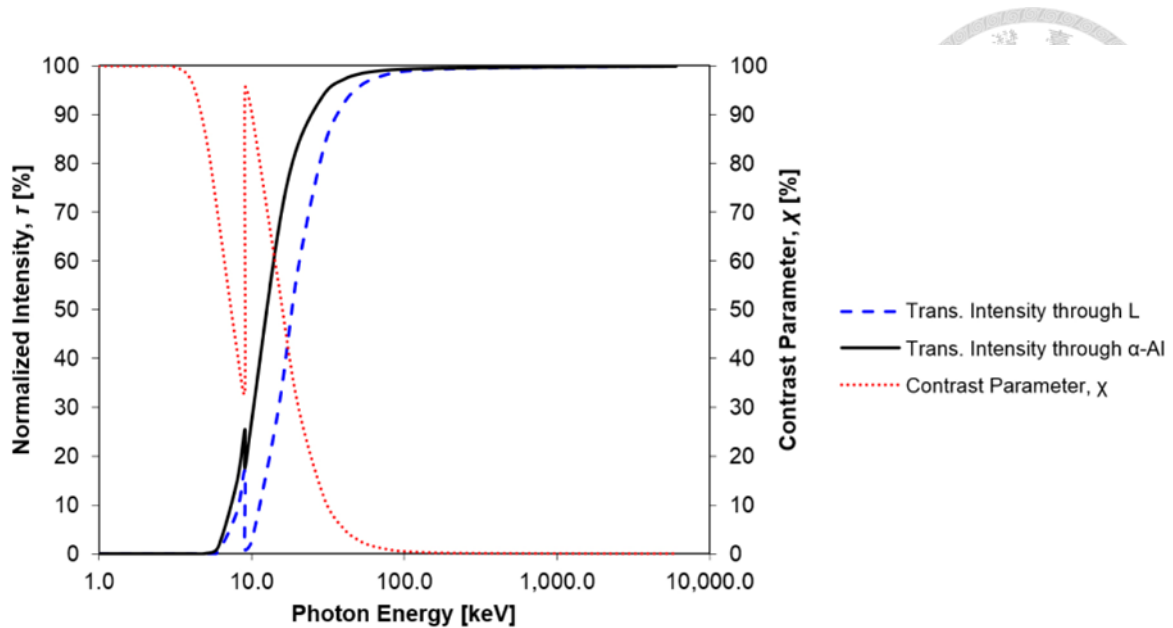


圖 2.3-3 入射光子能量對透射歸一化強度 τ 的影響，針對 Al-15Cu（重量百分比）合金的液相與固相 α -Al 進行分析，並計算相應的對比參數 χ [29]。該合金的固相率為 0.5，樣品厚度為 150 μm 。Al-Cu 合金的 X 射線吸收係數與密度數據分別來自[30]和[31]。

但對於碳鋼而言透射強度 τ 小於 0.5%，可從圖 2.3-4 到圖 2.3-6 觀察到。相關的 X 光吸收係數來自 NIST[30]，而液相與 γ -Fe 固相的質量密度分別為 7.0 g/cm^3 和 7.4 g/cm^3 （假設密度不受微量碳溶解度變化的影響）[29, 32]。由於碳的質量分數極低，且碳元素的 X 光吸收係數較低，固相與液相之間的對比無法通過增加碳的重量分率來增強。因此需要改變實驗條件，特別是 X 光的光子能量以解決 Fe-C 合金固液相透射強度不足的問題。針對碳鋼合金的時間解析半固態成像提升方案，Yasuda 等人[29]已經提出具體方法。他們展示了在 16 至 30 keV X 射線能量下的純鐵靜態固-液界面（如圖 2.3-7）。並在使用 21 keV 較高 X 射線光子能量時，成功獲得了高品質的碳鋼枝狀凝固成像（如圖 2.3-8）[29]。除此之外需要注意透射的歸一化強度可以透過增加光子能量或減少樣品厚度來提高，但這同時會降低固相與液相之間的對比度（如圖 2.3-9 所示）。因此每種合金都應有一個最佳的光子能量與樣品厚度組合，例如對 Al-Cu 合金而言，15 keV 是較理想的選擇，而對鋼材而言，21 keV 則能獲得足夠的訊噪比和影像對比度。

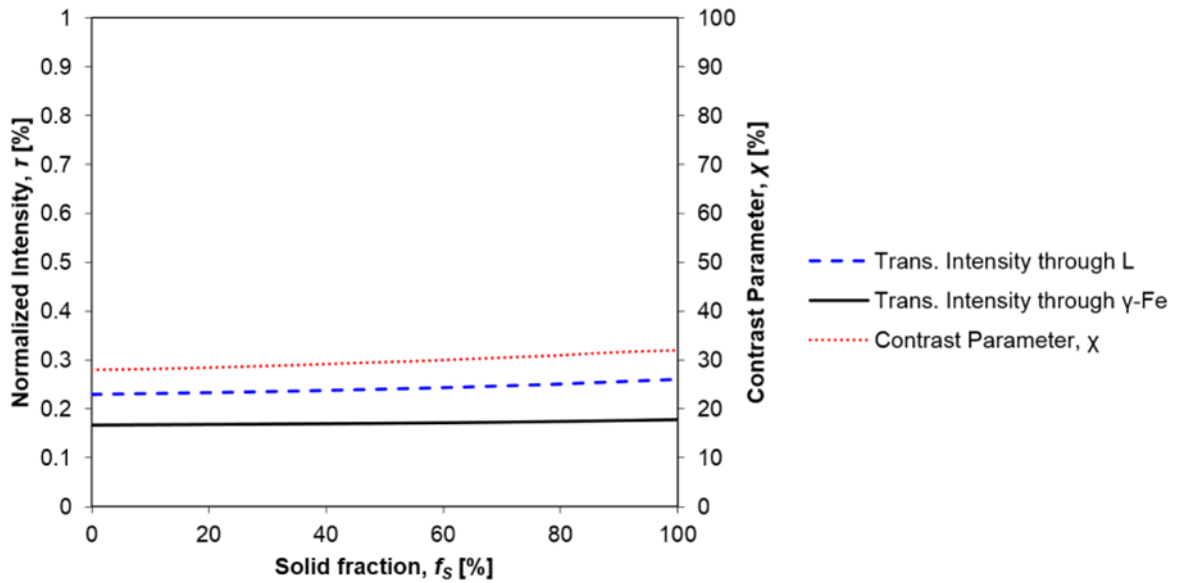


圖 2.3-4 為固相率對透射歸一化強度 τ 的影響，針對 Fe-2C（重量百分比）合金的液相與固相 γ -Fe 進行分析，並計算相應的對比參數 χ [29]。入射光子能量為 15 keV，樣品厚度為 150 μm 。圖中顯示，使用 15 keV 光子能量並不適合用於鋼材的 X 光成像。Fe-2C 合金的 X 光吸收係數與密度數據分別來自[30]和[29, 32]。

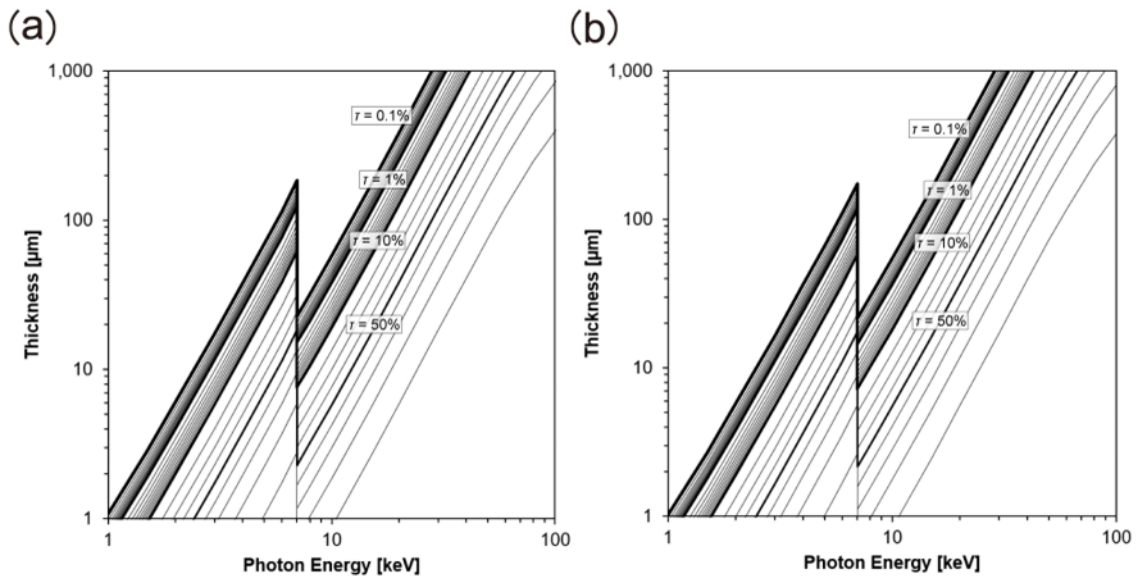


圖 2.3-5 歸一化透射強度 τ 隨樣品厚度和光子能量的變化：(a) 液相與 (b) 固相的 Fe-2C（重量百分比）合金且固相率為 0.5。Fe-2C 合金的 X 射線吸收係數與密度數據分別來自[30]和[29, 32]。

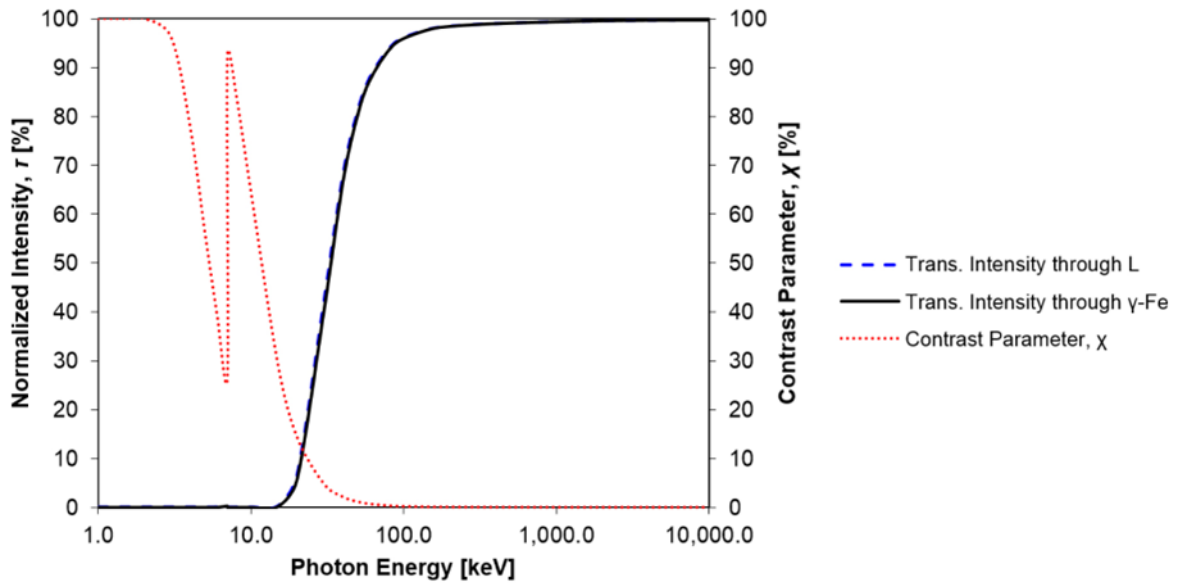


圖 2.3-6 入射光子能量對透射歸一化強度 τ 的影響，針對 Fe-2C（重量百分比）合金的液相與固相 γ -Fe 進行分析，並計算相應的對比參數 χ [29]。該合金的固相率為 0.5，樣品厚度為 $150\ \mu\text{m}$ 。Fe-2C 合金的 X 光吸收係數與密度數據分別來自 [30]和[29, 32]。

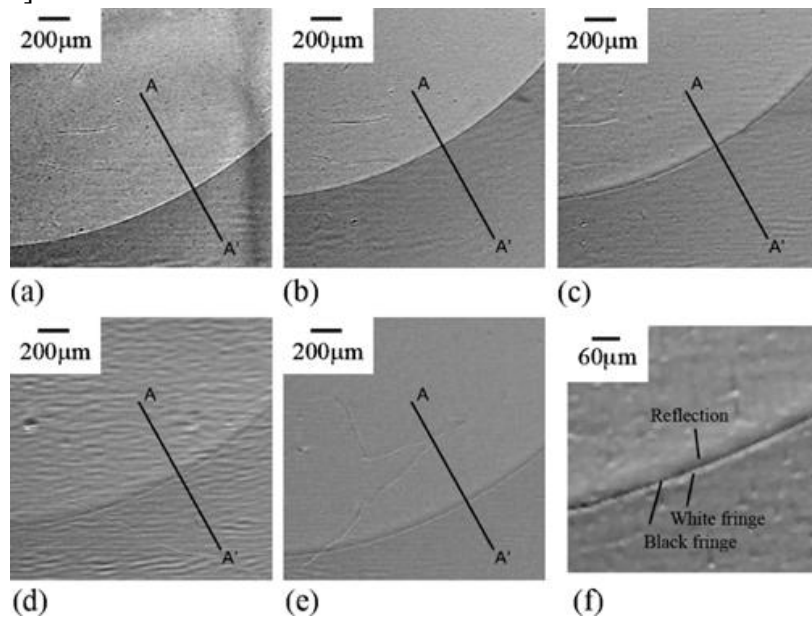


圖 2.3-7 純 Fe 的固液界面透射影像。光子能量：(a) 16 keV，(b) 18 keV，(c) 20 keV，(d) 24 keV，(e) 28 keV。(f)為界面的特寫圖。透射影像顯示，在 16 keV 時具有良好的對比度，但信噪比較低；而在 28 keV 時，影像擁有較高的信噪比，但對比度較弱[29]。

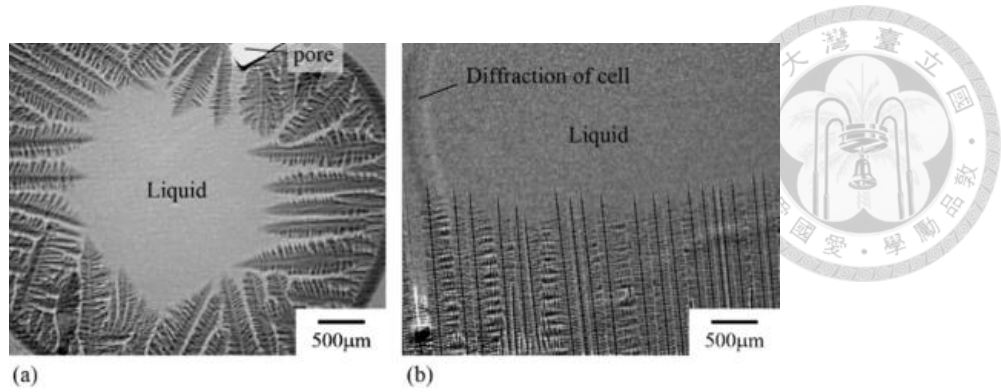


圖 2.3-8 超低碳鋼 (25 ppm C) 和高碳鋼 (0.45 質量百分比 C) 枝晶的快照：(a) 超低碳鋼在冷卻速率為 0.17 K/s，(b) 高碳鋼在冷卻速率 1.67 K/s。超低碳鋼和高碳鋼的生長速度分別為 100 $\mu\text{m/s}$ 和 540 $\mu\text{m/s}$ (光子能量 21 keV) [29]。

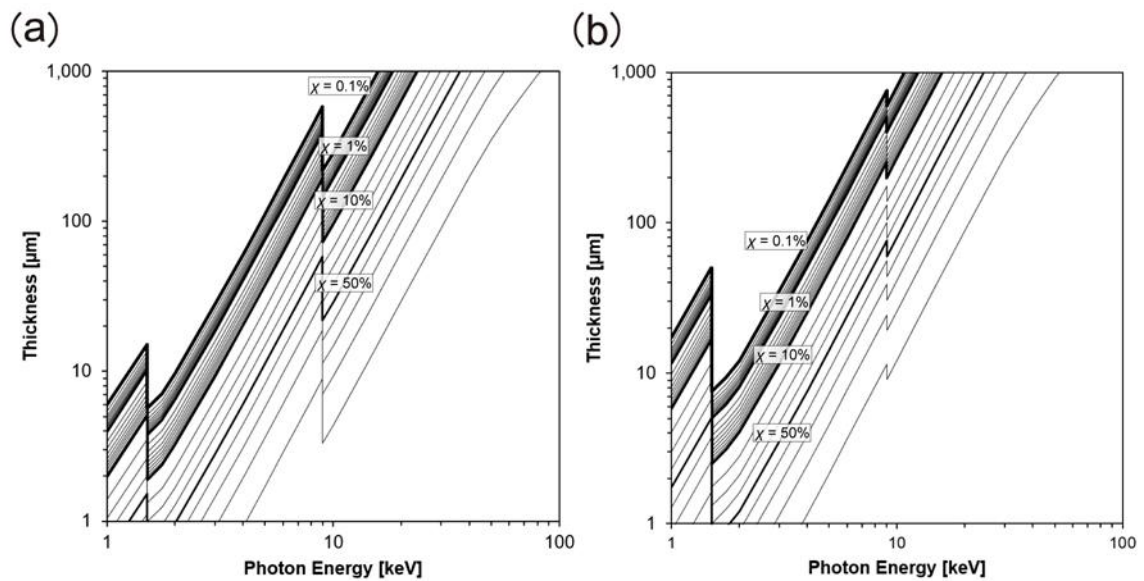


圖 2.3-9(a) Al-15Cu 和 (b) Fe-2C (重量百分比) 合金系統的對比參數 χ ，作為試片厚度和光子能量的函數其固體率為 0.5。[31]



2.3.2 半固態合金的同步輻射 X 光成像

最早的金屬材料即時射線照相實驗是利用高能量的 X 光（光子能量超過 10 keV）來觀察合金的凝固過程[33-38]。然而由於 X 光強度不足、光束相干性低以及訊號監測效率受限，這些實驗的結果在質量上有所限制，導致影像的幾何解析度較低（約 30~50 μm ）。此外為了獲得可接受的訊噪比和對比度，需要更長的 X 光透射訊號採集時間，因此時間解析度不足，無法滿足即時分析的需求。

另一種方法首次應用於 Sn-Pb 合金的凝固研究[39]，該方法結合了單色高強度同步輻射 X 光束與高速訊號收集探測器。選擇 Sn-Pb 合金系統的原因是其固相線和液相線溫度較低，且具有明確的相圖。然而有研究指出，當 X 光光子能量低於 20 keV 時，Sn-Pb 合金的 X 射線質量衰減係數較高導致訊噪比不足[39]。儘管如此這種 X 光照相技術在錫合金上的限制已被克服，並且已有良好的研究成果報導[40-46]。

近年來透過 X 光成像技術對鋁基合金的凝固現象進行觀察，使得金屬相變動力學（如枝狀晶生長與晶粒粗化）得以更直接地展示[30, 32-37, 45-51]。由於鋁的高 X 光透光性，以及溶質元素（如銅或鎳）在固液相間的濃度差異帶來較大的 X 光衰減差異，因此鋁合金特別適合用於臨場 X 光照相研究。此外新一代同步輻射 X 光技術使 X 光影像的空間解析度提升至接近 1 μm 與數微秒等級[48]。圖 2.3-10 展示了 Al-Ni 合金在定向凝固實驗中產生高度枝狀結構的 X 光影像[52]。此外，隨著高壓鑄造（HPDC）與半固態金屬鑄造（SSM）技術的發展，越來越多臨場 X 光照相研究集中於半固態的鋁合金在等溫變形或注射過程中的行為[24-26, 53-59]。這些研究有助於追蹤鑄造缺陷的形成機制，進而在金屬鑄造過程中避免缺陷的產生。

在過去十幾年間，同步輻射射線照相技術在固液混合物研究中的應用已擴展至鋅[60]、鋼[29, 61, 62]的凝固過程，以及半固態鋼的糊狀行為[24, 25, 63, 64]。這些研究利用光子能量超過 20keV 的同步輻射 X 光束，證實了通過結合加熱爐與同步輻射 X 光照相技術（例如圖 2.3-11）[63]，可實現鋼鐵凝固過程及顆粒微觀力學行為的實時跟蹤的可行性。

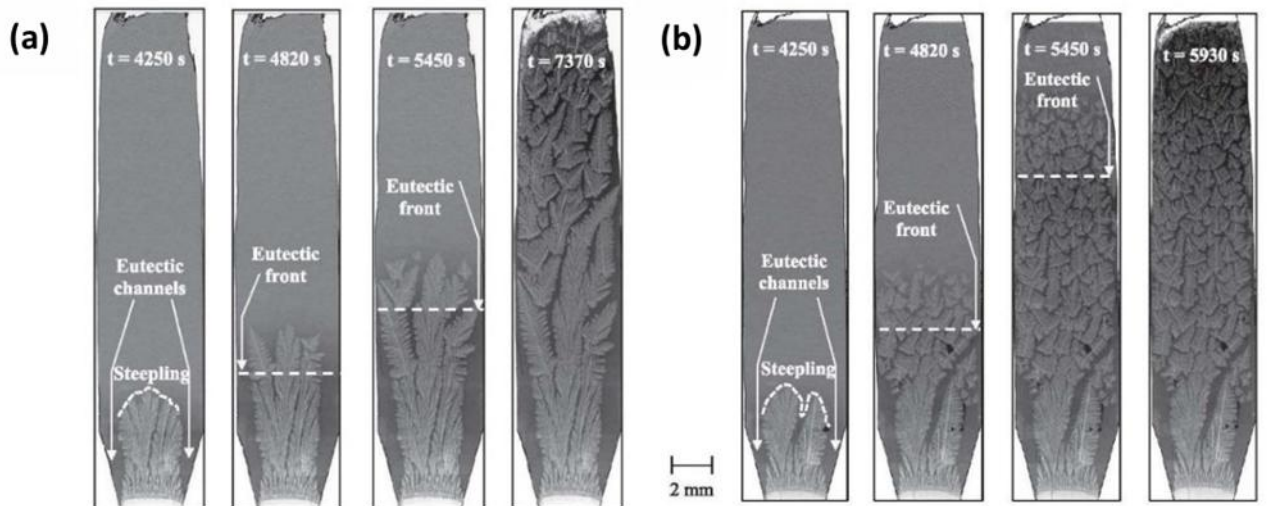


圖 2.3-10 臨場同步輻射 X 光照相技術應用於 Al-3.5Ni (重量分率%) 定向凝固實驗，冷卻速度從 $1.5\mu\text{m/s}$ 轉變至(a) $4\mu\text{m/s}$ 和(b) $8\mu\text{m/s}$ [52]。

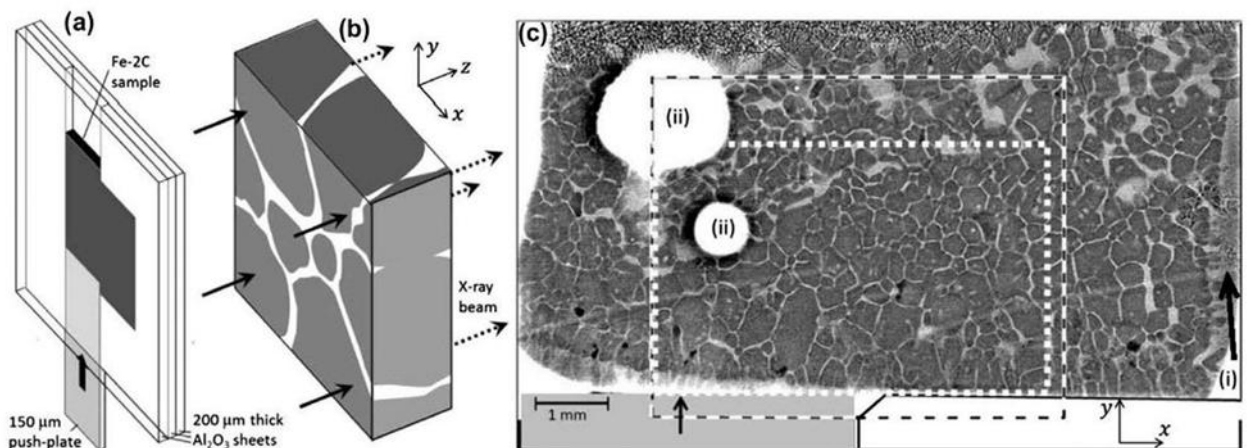


圖 2.3-11(a)剪切單元的示意圖，為了清晰呈現圖像，z 方向有所延伸。(b)樣品小區域的放大圖。(c)變形前樣品底部與剪切單元（由六幅 X 射線照片拼接而成），包含邊界壁與推板的疊加圖。虛線框表示變形過程中的視場範圍，而較小的點線框則為分析區域[63]。



2.3.3 半固態合金的同步輻射 X 光斷層掃描

X 光斷層掃描是一種通過不同角度的 X 光照射投影生成三維影像的技術，廣泛應用於各類材料，包括無機物（如金屬和陶瓷）以及生物物質（如骨骼和組織）[65]。早期該技術在金屬微觀結構分析中的應用主要於從淬火試片中獲取凝固過程中的枝晶形貌[66, 67]。然而有研究指出，快速冷卻可能會形成新的淬火結構，從而影響數據的準確性[68]。對於在半固態溫度下臨場觀測的需求，促使了臨場同步輻射 X 光斷層掃描技術的發展。

臨場斷層掃描技術的特點包括 4D(3D 加上時間)、無損、可靠的特徵追蹤(完整旋轉一周需 22 秒[51])，以及高空間解析度(可達 $2.8\mu\text{m}$ [51])。該技術有助於揭示熱裂紋形成的動態演變[28, 68, 69]，部分凝固合金的變形行為[4, 27]，部分重熔過程中的微觀結構變化[50]，金屬間化合物對凝固的影響[68, 70]，枝狀晶結構[71]以及鑄造孔隙的形成機制[72]。例如 Kareh 等人[4]透過臨場 X 光同步輻射顯示了 Al-Cu 合金樣品在體積固相率 0.64、0.73、0.87 和 0.93 下的切片影像如圖 2.3-12(a)所示，液相與固相之間的對比清晰。隨後通過斷層重建與著色處理，可獲得 3D 晶粒堆圖像(圖 2.3-12(b))，並可透過參數(例如球形度 Ψ ，見圖 2.3-12(c))對晶粒形態進行量化分析。

與臨場 X 光照相技術類似，臨場斷層掃描通過同步輻射 X 光和探測器記錄微觀結構變化，但在實驗過程中，樣品載台會旋轉，並需要通過電腦重建，將 X 光照相投影轉換為三維視圖。圖 2.3-13 展示了用於固液金屬混合物的 X 射線斷層掃描系統的示意圖。

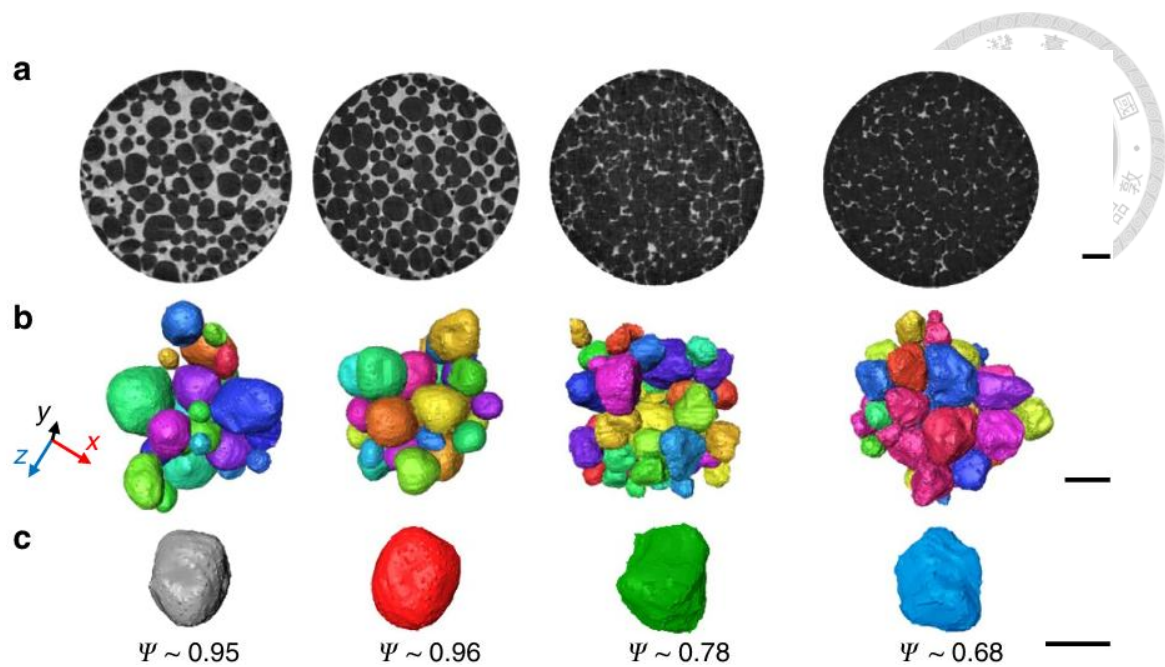


圖 2.3-12 臨場斷層掃描觀測未變形的半固態 Al-Cu 合金 (每 1° 記錄一幅圖像, 曝光時間 33ms), 其公稱固相率分別為 0.64、0.73、0.87 和 0.93。(a) 橫截面 (xy) 重建切片 (比例尺 1 mm); (b) 分離晶粒的 3D 渲染圖 (比例尺 $500\ \mu\text{m}$); (c) 來自不同樣品的典型晶粒, 顯示隨著固相率增加, 球形度 Ψ 逐漸降低 (比例尺 $300\ \mu\text{m}$) [4]。

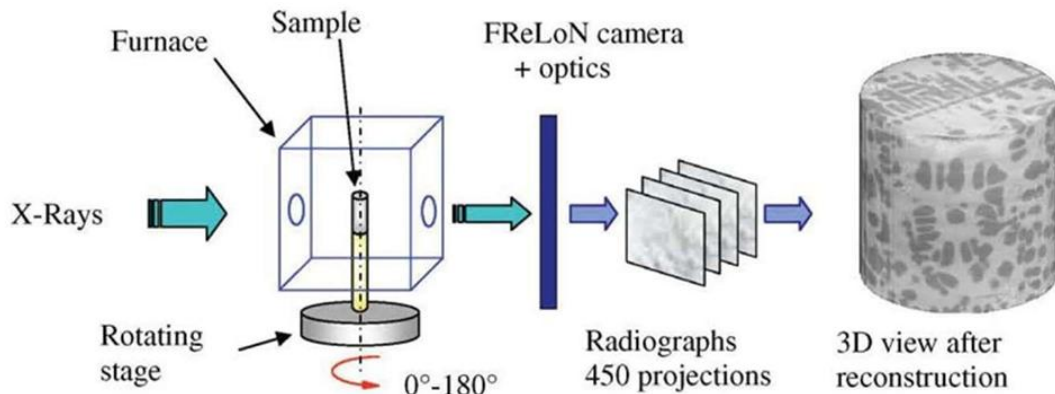


圖 2.3-13 臨場同步輻射斷層掃描實驗裝置的示意圖[51]。

三維結構是通過體積像素(voxels)重建而成, 其對比度通常來自不同材料之間的吸收係數 μ 以及 X 光透射強度的邊界。局部微觀結構 (如晶粒) 是通過不同角度投影的重建結果整合而成, 從而記錄每個晶粒的完整連續表面。一種常用的數值斷層重建方法是反投影算法 (back-projection algorithm) [73, 74]。為了說明該算法, 圖 2.3-14 展示了一個 3×3 像素的切片以及兩個投影角度 $\theta=0^\circ$ 和 90° [74]。在此情況下, 從 $\theta=0^\circ$ 和 $\theta=90^\circ$ 投影可分別獲得兩行數據[7,9,7][6,9,8]。反投影算法



的目標是確定 3×3 像素切片的實際強度分佈 (即 2D 矩陣 f)，其可表達為兩個線性代數方程 Eq. 2.3-6。

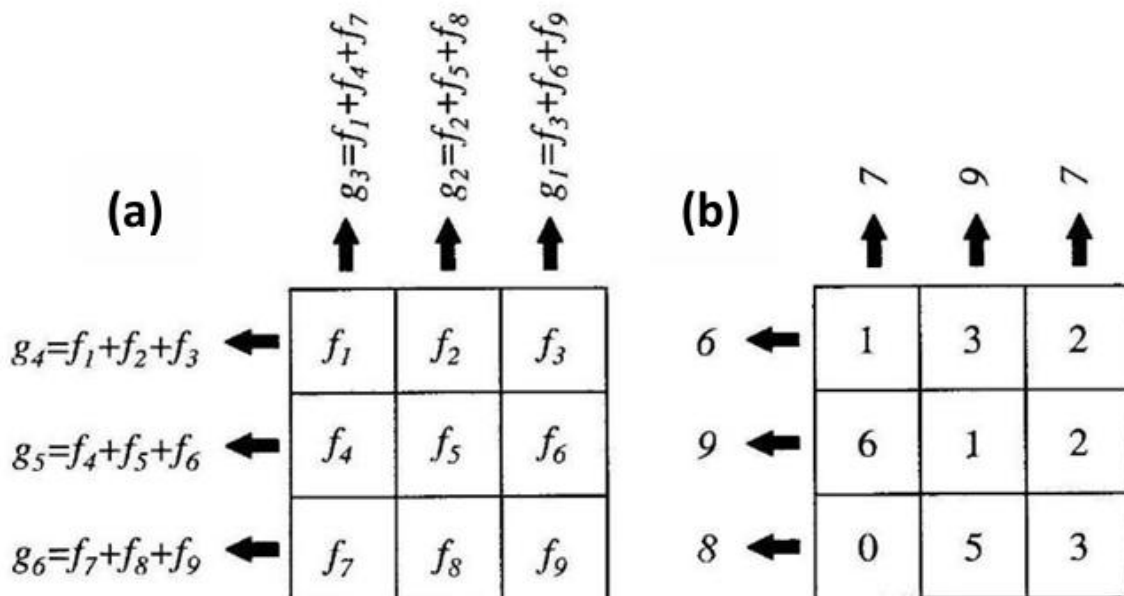


圖 2.3-14 (a) 針對 3×3 切片在角度 $\theta=0^\circ$ 和 90° 下的投影結果。(b) 投影結果為正弦圖 (sinogram)，即投影角度與投影強度的關係圖，其中包含兩行數據，分別為 $[7,9,7]$ $[6,9,8]$ [74]。

$$\begin{cases} [111] \begin{bmatrix} f_1 & f_2 & f_3 \\ f_4 & f_5 & f_6 \\ f_7 & f_8 & f_9 \end{bmatrix} = [7 \quad 9 \quad 7] \\ [111] \begin{bmatrix} f_1 & f_2 & f_3 \\ f_4 & f_5 & f_6 \\ f_7 & f_8 & f_9 \end{bmatrix}^T = [6 \quad 9 \quad 8] \end{cases} \quad \text{Eq. 2.3-6}$$

但是僅有這兩個方程仍無法確定矩陣 f ，這表明投影角度數量不足。因此為了更準確地重建複雜的微觀結構，建議增加射線投影的獲取角度。如圖 2.3-15 [74] 所示，在完成一次完整的旋轉後會增加投影數量 p ，這可以減少星形偽影 (star artefact)，並改善反投影圖像對原始切片圖像的逼近程度。此外經過一系列影像濾波處理，圖 2.3-15 (g) 的最終圖像甚至可以更接近於圖 2.3-15(a) 的原始切片圖像。這裡定義參數 $\Delta\theta = 2\pi/p$ (p 為投影的數量)，這個參數表示相鄰兩次射線投影之間的角度間隔，而反投影切片 $b(x,y)$ 可通過所有第 k 次投影的總和來計算 [74]：



$$b(x, y) = \sum_{k=1}^p g(s_k, \theta_k) \Delta\theta$$

其中 $g(s_k, \theta_k)$ 表示在角度 θ_k 下的投影結果強度分佈， s_k 為探測器的空間位置。

透過增加投影數量 p 可以使反投影 $b(x, y)$ 更接近原始三維結構的切片。然而增加投影數量會增加試片在實驗中完整旋轉所需的時間，從而降低微觀結構變化的時間分辨率 (temporal resolution)。因此除了要求每一次投影須有較短的曝光時間外，影響合金微觀結構變化的外部因素 (如糊狀區機械行為的單軸壓縮速率[4]以及凝固過程的冷卻速率[51]) 的調控也比 2D X 光照相的臨場觀測更受限制。

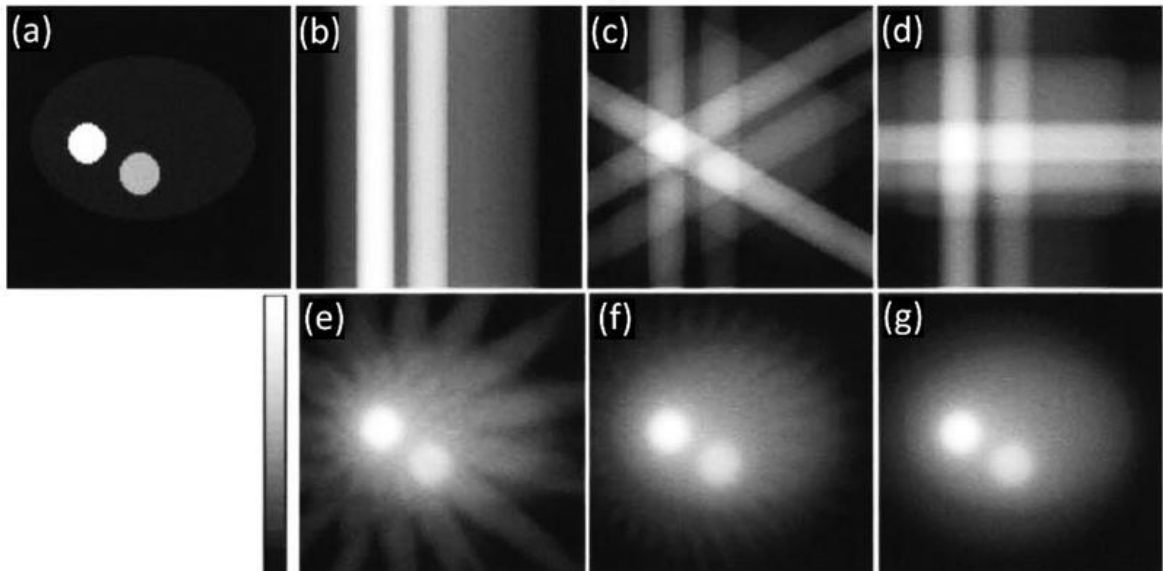


圖 2.3-15 星形偽影 (Star Artefact) 的示意圖(a) 用於生成投影的原始切片。(b-g) 使用反投影算法進行重建，投影數量分別為 1、3、4、16、32 和 64，並在 360° 範圍內均勻分佈。隨著投影數量的增加重建結果逐漸趨近於原始切片[74]。



2.4 缺陷形成的機制

在合金的凝固過程中，由相變化造成的物理性質變化如：固體體積與液體體積之間的體積差、與大氣之間的氧化反應或是液體與固體間的氣體溶解度差異等…，皆會對在完成凝固後的合金鑄件中留下不同的缺陷，而這些缺陷又會極大的影響鑄件的機械性質，因此在這一節中將詳細的討論各種缺陷的形成機制。

2.4.1 孔洞形成的機制

傳統對於鋁合金凝固產生孔洞的機制分為兩種，第一種機制是由於溫度以及相變化的發生，導致固體與液體間的密度差異造成的體積變化如圖 2.4-1 所示，可以發現到體積變化在半固態狀態時($T_S - T_L$)尤為明顯，由此可知當液態轉為固態時，體積上的收縮形成收縮壓力促使了孔洞的產生。

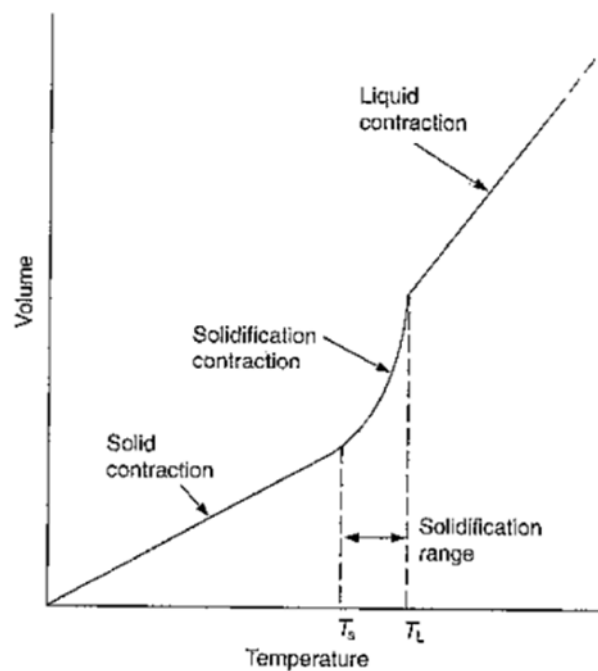


圖 2.4-1 液體與固體體積隨著溫度的變化圖。

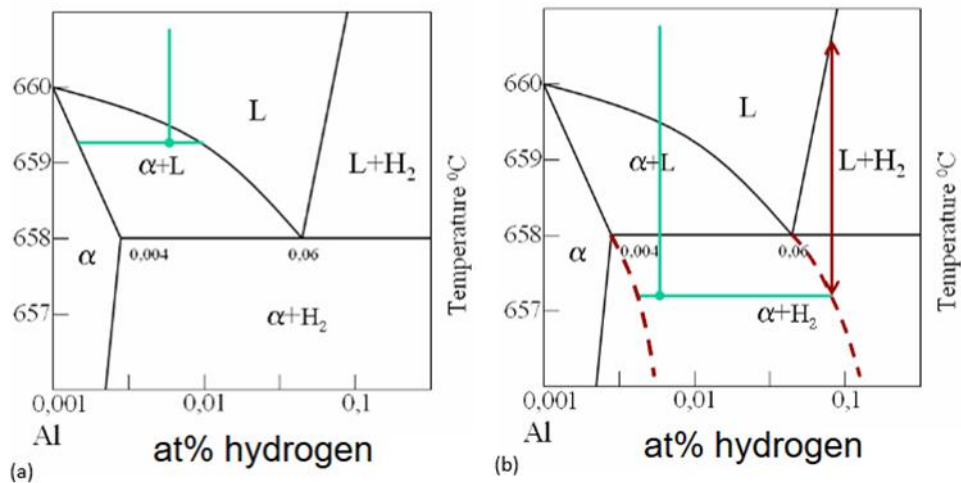


圖 2.4-2 鋁氫相圖，圖(a)與圖(b)分別表示了在高溫和低溫下氫氣在固體與液體的溶解度。

而第二種形成孔洞的原因主要為液體與固體間對於氣體的溶解度差異，圖 2.4-2 展示了鋁在高溫液相下具有較高的氣體溶解度，隨著溫度的降低以及固相的出現，氫也逐漸的析出到外界形成鑄件中的孔洞，圖 2.4-3 展示了上述兩種不同形成機制下孔洞的差異。

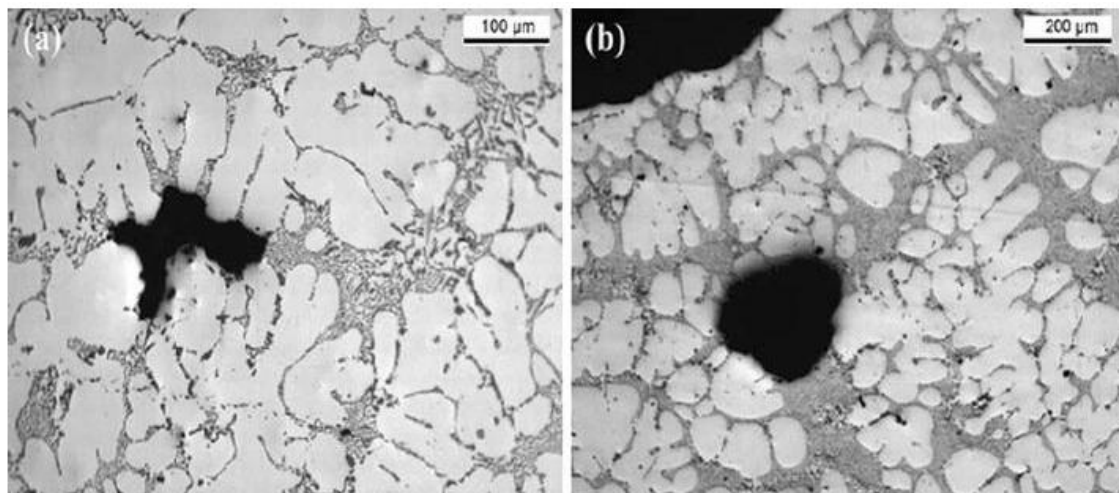


圖 2.4-3(a)表示了由體積變化引起的收縮壓力造成的孔洞。(b)顯示了由於氣體的析出所產生的孔洞。[75]

上述所說的形成機制傳統上經常應用於討論鋁合金凝固時產生的缺陷，然而這一假設在過去數十年的實驗與模型研究中對於是否為孔洞形成的起始原因逐漸受到質疑，並有一派認為其並不適用於鋁合金的凝固過程。因此接下來將以這一派

學者的角度解釋孔洞生成的原因。在 2.1.1 節中介紹了液體轉為固體時，首先要面臨的是成核，而在成核的過程中需要克服活化能才能形成穩定的晶胚。同樣的機制也發生在孔洞的形成，最簡單的模型為均質成核模型，這裡考慮在孔洞成核時會伴隨著外在壓力 P_e 施加於其表面上，其主要由體積縮小時產生的壓縮力 P_s 、靜水壓力 P_h 以及外在的大氣壓力 P_{atm} 可寫成 Eq. 2.4-1。因此當液體中形成孔洞時其所需的能量為 $P_e V$ ，另外當析出氣體在內壓 P_g 下填充孔洞其所需的能量為 $-P_g V$ (填入負號的原因是因為內壓的存在有助於孔洞的產生，其中 V 為孔洞體積)。由於氣孔的產生，其氣液邊界上會存在介面能 $\gamma_{lg} A$ ，因此整合上述所有條件可得形成孔洞所需的自由能為 Eq. 2.4-2，跟 2.1.1 節中同樣的手法透過微分可以得到獲得使孔洞晶胚穩定的臨界半徑 Eq. 2.4-3，通常 ΔP^* 為負。

$$P_e = P_s + P_h + P_{atm} \quad \text{Eq. 2.4-1}$$

$$\Delta G = \gamma_{lg} A + V(P_e - P_g) = 4\pi r^2 \gamma_{lg} + \frac{4}{3} \pi r^3 \Delta P \quad \text{Eq. 2.4-2}$$

$$r^* = \frac{-2\gamma_{lg}}{\Delta P^*} \quad \text{Eq. 2.4-3}$$

由上述的式子可知，孔洞是否能夠形成取決於臨界破壞壓力 ΔP^* ，而其大小通常會以估算或假設的方式求得。以下將介紹最常見的假設，首先當液體進入亞穩態時，會通過成核和生長形成孔洞產生相分離的現象如圖 2.4-2 所示。根據穩定成核理論 [76-78]，晶核的生長通常取自於過飽和蒸汽中的單個原子經一系列的反應後發生碰撞促進原子簇的生長，通常成核速率為臨界核濃度與原子在晶核上發生碰撞的頻率乘積，因此成核速率 J 可寫為 Eq. 2.4-4，當中 ΔG^* 為臨界成核所需的自由能、 k 為波茲曼常數、 T 為絕對溫度、 J_0 為成核速率常數。根據 Fisher 等人 [79, 80] 的研究其假設 J_0 可透過 Eq. 2.4-5 求得，其中 N_A 為亞佛加厥常數、 Δf_0^* 為活化能、 h 為普朗克常數。透過整合 Eq. 2.4-4 和 Eq. 2.4-5 可得 Eq. 2.4-6，隨後將 Eq. 2.4-2 帶入即可

得到 Eq. 2.4-7 進而求得 ΔP^* 。

$$J = J_0 \exp\left(-\frac{\Delta G^*}{kT}\right)$$

$$J_0 = \frac{N_A kT}{h} \exp\left(-\frac{\Delta f_0^*}{kT}\right)$$

$$J = \frac{N_A kT}{h} \exp\left(-\frac{\Delta f_0^* + \Delta G^*}{kT}\right)$$

$$\Delta P^* = -\sqrt{\frac{16\pi\gamma_{lg}^3}{3kT \ln\left(\frac{N_A kT}{h}\right)}}$$



Eq. 2.4-4

Eq. 2.4-5

Eq. 2.4-6

Eq. 2.4-7

Fisher 等人的預測出來的 ΔP^* 在乙酸和苯的凝固中相當準確，但在更複雜的熱力學系統中就變得不適用，因此有許多的學者基於 Fisher 模型延伸出了其他種類的模型，例如：Bankoff 等人[81]將液體過熱的情況也納入考慮並基於 Fisher 模型進行修改：

$$\Delta P^* = -\frac{\rho_l}{\rho_l - \rho_g} \sqrt{\frac{16\pi\gamma_{lg}^3}{3kT \ln\left(\frac{6kN_A^{2/3}T}{h}\right)}}$$

Eq. 2.4-8

而 Bernath 等人[82]則考慮成核頻率為該材料的潛熱函數並修改成：

$$\Delta P^* = \sqrt{\frac{\frac{9.06\gamma_{lg}^3}{kT}}{\ln\left(\frac{1.45\rho N_A^2 \gamma_{lg}^2}{\Delta P^* M^{3/2} \sqrt{kN_A T}}\right) - \frac{H_f}{kT}}}$$

Eq. 2.4-9

當中 H_f 為汽化所需的潛熱， M 則為原子量。另外透過 Eq. 2.4-10 可推測出到達臨界孔洞半徑時的空位簇的數目，其中由於鋁為 FCC 晶體結構因此 $C_{AP}=0.74$ ， r_A 為鋁原子半徑。



$$n_v^* = C_{AP} \left(\frac{r^*}{r_A} \right)^3 \quad \text{Eq. 2.4-10}$$

除此之外 Brooks 等人[83]提供了 Eq. 2.4-11 用來計算形成孔洞簇 n_v 時的機率，當中 E_v 和 E_n 分別為形成空位所需的能量以及空位聚集形成球形空位簇所需的能量並且可用 Jackson[84]提供的公式 Eq. 2.4-12 和 Eq. 2.4-13 求得。

$$P(n_v) = \left[c_v \exp \left(\frac{E_v - E_n/n_v}{kT} \right) \right]^{n_v} \quad \text{Eq. 2.4-11}$$

$$E_v = 12\sqrt{2}r_v^2\gamma_{lg} \quad \text{Eq. 2.4-12}$$

$$E_n = 15.36n^{2/3}r_v^2\gamma_{lg} \quad \text{Eq. 2.4-13}$$

表 2.4-1 羅列了 Fisher 模型、Bankoff 模型和 Bernath 模型下的理論破壞力、臨界空位簇半徑以及臨界空位數[85]。

Equation	ΔP^* (GPa)	r^* (nm)	n_v^*	$P(n_v^*)$
Fisher	- 3.41	0.535	39	2.30×10^{-115}
Bankoff	- 3.81	0.478	28	3.56×10^{-94}
Bernath	- 2.35	0.765	160	6.12×10^{-246}

表 2.4-1 羅列了 Fisher 模型、Bankoff 模型和 Bernath 模型下的理論破壞力、臨界空位簇半徑以及臨界空位數[85]。透過上述 Fisher, Bankoff, Bernath 所提供的模型代入到 Eq. 2.4-10 至 Eq. 2.4-13 中，能發現到所有的理論模型所預測的破壞壓力皆為實驗所測得的 3~4 個數量級以上 (鋁合金在實驗中 0. 所得到的 ΔP^* 約莫為 1MPa)且從空位簇形成機率 $P(n_v)$ 來看透過均質化成核在鋁合金中形成孔洞幾乎是不可能發生[85]，因此接下來將討論異質成核的可能性。

在 Fisher 等人的研究中[80]其所建立的異質成核模型是基於以下幾種情況進行討論分別為圖 2.4-4(a)中氣泡於平面的固相基底成核以及圖 2.4-4(b)中氣泡於平面基板凹處成核。以圖 2.4-4(a)的情形來說其公式異質成核與均質成核的破壞壓

力比值可用 Eq. 2.4-14 計算，計算結果呈現於圖 2.4-5，可以看到當浸潤角在 180 度時 ΔP_{het}^* 為 0，但根據 Campbell[12]所記錄的大量實驗結果，最大浸潤角最多只能達到 160 度，幾乎不可能達到 180 度。透過 Eq. 2.4-14 計算可得 ΔP_{het}^* 與 ΔP_{hom}^* 之間的比值為 0.05。由此可知液態鋁的理論 ΔP_{het}^* 落在-191MPa 到-118MPa 之間，與實驗所得的臨界破壞壓力仍有一段距離。所以 Fisher 等人認為孔洞最容易成核在基板的凹陷處如圖 2.4-4(b)所示，因為這種情況下破壞壓力有可能為 0。但 Bankoff 認為雖然臨界破壞壓力更容易達到但是凹陷處的大小很難滿足孔洞穩定生長所需的臨界尺寸，所以 Bankoff 和 Yousefian 認為均質成核與異質成核並非液態鋁合金生成孔洞的主要原因。

$$\frac{\Delta P_{het}^*}{\Delta P_{hom}^*} = \sqrt{\frac{(2 - \cos\theta)((1 + \cos\theta)^2)}{4}} \quad \text{Eq. 2.4-14}$$

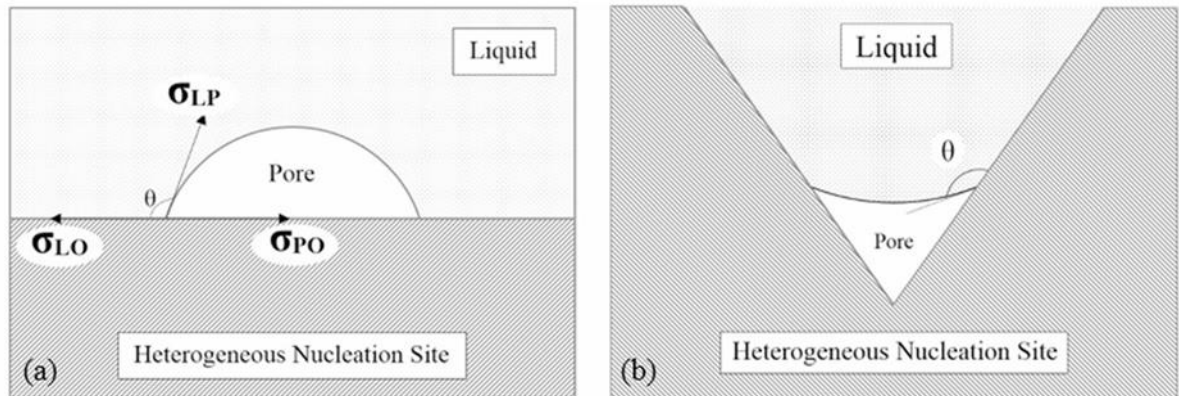


圖 2.4-4 孔洞在不同介面上的異質成核現象(a)孔洞在平面基板上成核(b)孔洞在凹陷基板上成核[85]。

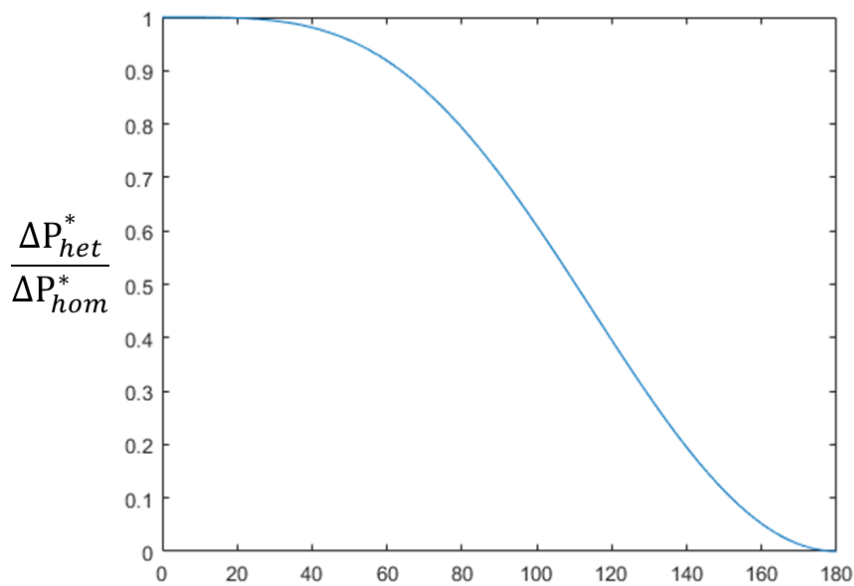
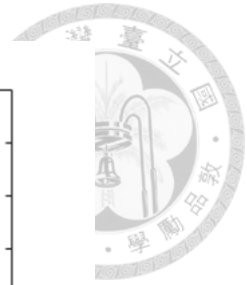


圖 2.4-5 ΔP_{het}^* 與 ΔP_{hom}^* 比值隨潤浸角變化圖。

這裡將介紹凝固過程中常見的另一種缺陷 bifilm，在鋁合金或鎂合金這類的輕金屬極容易與外界的氣體發生反應在表面產生非常穩定的氧化層，在鑄造的進料過程中液體容易形成湍流導致表面的氧化層被包覆在內部形成孔洞如圖 2.4-6。Fox 和 Campbell[12, 86]認為由於 bifilm 生成的孔洞繞過了先前所說的孔洞成核理論，因此推定此機制才是孔洞形成的起始點，並透過溶解氣體的析出撐開孔洞。圖 2.4-7 為 Fox 和 Campbell[86]在不同壓力下透過同步輻射 X 光觀察試片凝固的變化其中在圖(a)中 1atm 下試片的凝固過程中並沒有出現明顯的孔洞，然而在圖(b)0.01atm 下可以明顯得看到出現大量的暗斑，這些暗斑會隨著氣體的析出開始逐漸膨脹。除此之外也有不少研究[87-90]也發現到在這些鋁合金試片的孔洞壁上存在氧化物的跡象。

另一方面由於鋁合金的孔洞無法透過成核生成，在沒有氧化膜的情況下 Yousefian 認為這些析出的氣體最終會透過鋁當中的空位結合吸收掉。因此以往的氣體溶解度變化或是液體與固體間的體積差理論其實只與鋁合金孔洞的成長有關而非生成孔洞的要素。

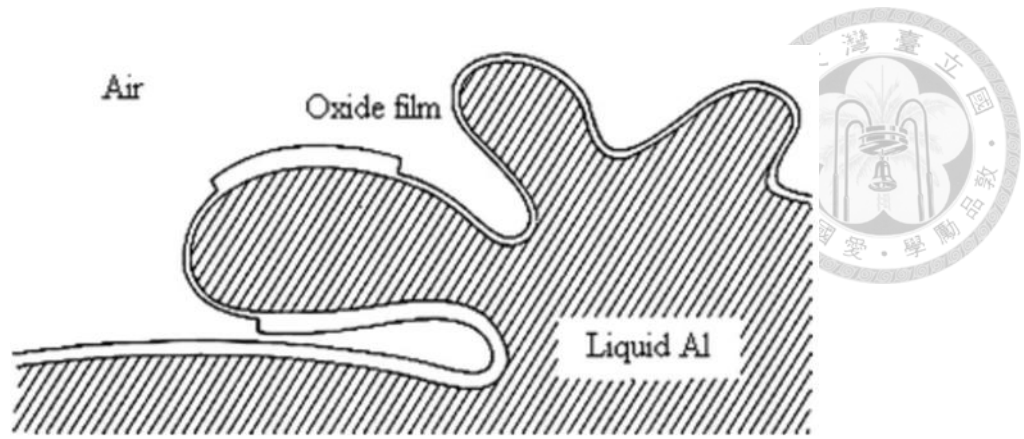


圖 2.4-6 Bifilm 示意圖[91]

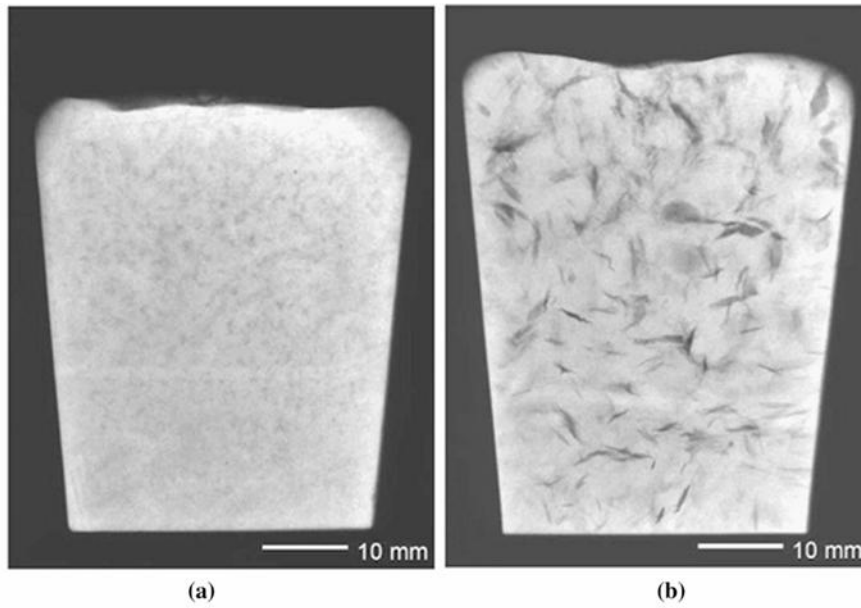


圖 2.4-7 在不同壓力環境下透過同步輻射觀察 Al-7Si-0.4Mg 凝固的變化(a)為在 1atm 下凝固(b)為 0.01atm 下凝固[86]



2.4.2 宏觀偏析現象

宏觀偏析現象是在合金凝固中鑄件內溶質濃度分佈不均造成的現象，通常宏觀偏析發生的條件是基於微觀偏析的發生，在前面的 2.1.5 和 2.1.6 節中的凝固模型得知理論上來說隨著溫度的降低固體的溶質溶解度下降(分配係數 $k < 1$ 的情況)，固體的前端往往會有大量由固體析出的溶質，並隨著凝固的推展逐漸往中心處聚集，這種現象被稱為正偏析。另一方面當 $k > 1$ 時固體對溶質的溶解度較高因此鑄造中心的溶質濃度較低被稱為負偏析，2.1.5 節中的 Scheil 模型很好的表達了這種濃度分佈不均的現象。除此之外凝固過程中液體的流動對宏觀偏析也有很大的影響，例如傳統的鑄造工藝中鋁合金常用的 DC(Direct-Chill)鑄造，其鑄件內部的濃度分佈就有明顯受到液體流動的影響如圖 2.4-8，因此接下來將以 DC 鑄造來討論液體流動對宏觀偏析在鑄件內的影響。

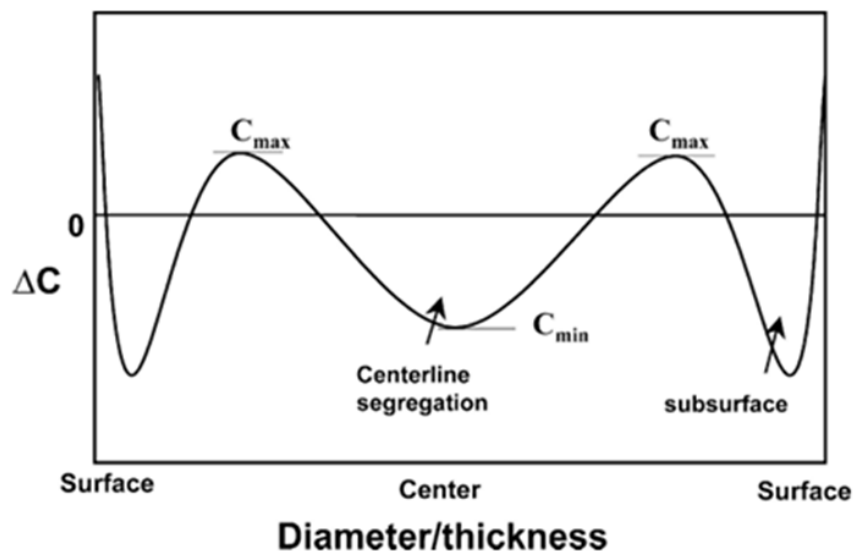


圖 2.4-8 表示在 $k < 1$ 時 DC 鑄造下宏觀偏析的分佈情況，其中 ΔC 為與平均濃度間的相對偏差量透過 $(C_i - C_{avg})/C_{avg}$ 計算得到[92]。

在傳統的金屬加工廠中，DC 鑄造常被用來生產大量的輕金屬如：鋁合金、鎂合金等，圖 2.4-9 為 DC 鑄造的流程圖，首先熔融金屬會被倒入水冷的鑄模中，鑄模

的底部存在一啟動底塊(starter block)，當熔融金屬倒入模具並在底部和模壁上產生固體外殼後，下方的啟動底塊會以恆定的鑄造速率 v_{cast} 向下移動，並保證鑄模內液體維持在一恆定高度。在鑄模生成的固體外殼其熱量起初是因為水冷鑄模的傳導而散失，這部份稱為初級冷卻(primary cooling)。此時鑄錠外部已凝固但內部依然是半固態或是液體。在鑄錠因啟動底塊下降而到達鑄模邊緣時，先前儲存於鑄模兩側冷卻水會以噴流的方式直接冷卻固體外殼形成二次冷卻(secondary cooling)，上述的鑄造過程會持續地發生直到底塊接觸到底部才會停止。

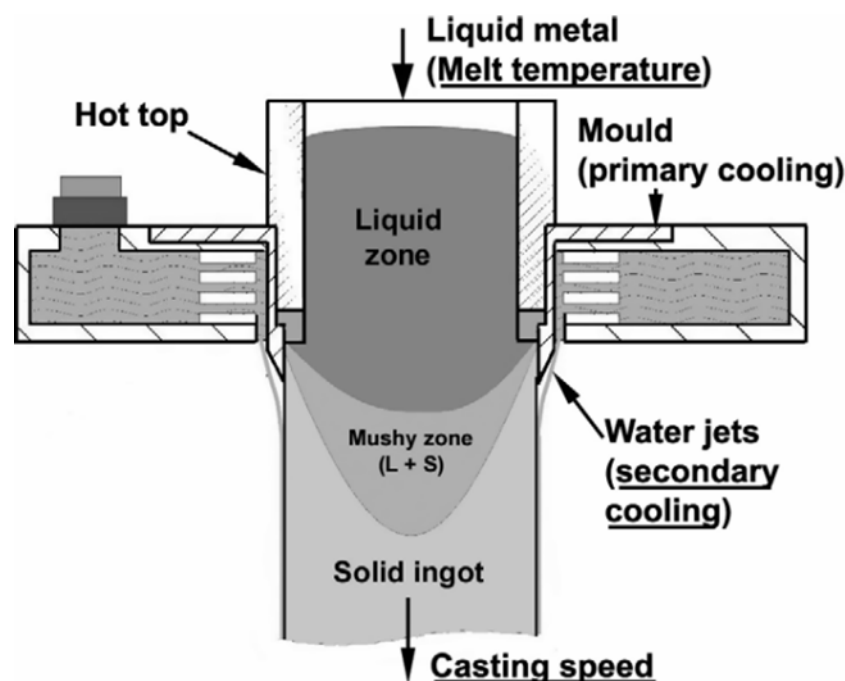


圖 2.4-9 DC 鑄造過程示意圖[92]

根據 Nadella 等人[92]的文獻回顧，目前在 DC 鑄造中影響宏觀偏析的原因有以下幾個，第一種是凝固時的體積收縮，由於外層固體溫度下降較快，體積收縮較內部劇烈引起鑄錠外部產生孔洞促使內部的液體沿著固相等高線的法線方向向表面移動如圖 2.4-10，其中收縮速度可被分為兩個部分，水平部分朝著鑄錠的表層移動，垂直部分則是朝鑄造方向流動，垂直向下的流動會將液體帶入底部溶質濃度較高的區域導致該區域的濃度被稀釋掉，但這種方式仍無法解釋圖 2.4-8 中間部分出現負偏析。真正造成中間部分產生負偏析的原因在於水平方向上的流動，這種流動



方式極為緩慢且移動距離有限，但在長期累積由於沒有高濃度的溶質水平流入鑄錠中心，整體的溶質會逐漸往外層移動。

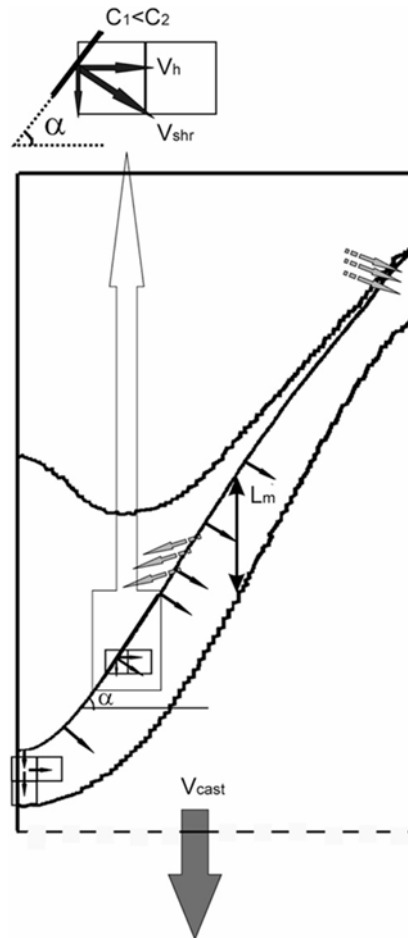


圖 2.4-10 表示糊狀區(mushy zone)因凝固收縮所產生的液體流動方向(黑色箭頭 V_{shr} 、 V_h 分別代表收縮速度以及其在水平方向上的分量)， L_m 為固相等溫線與固相線之間糊狀區的厚度。灰色箭頭代表了在熔池中熱溶質耦合產生的對流方向。最後此圖左側代表鑄錠的中心位置，而右側則為表面[93]。

第二種造成偏析的機制為熱-溶質對流(thermo-solutal convection)是由於液態區中溫度的差異以及溶質濃度的差異造成的液體流動，正如先前所說 DC 鑄造上表面溫度較低而中心處則較高，這樣的溫度差異導致密度較高的冷液體會沿著錠坯的邊緣沉降並朝著中心處移動最終其所擁有的動量會促使錠坯中心的液體上升。另一方面液體與固體之間的交互作用在圖 2.4-11 部分展示出來，靠近表面且在相圖中略低於液相線的區域是由強迫對流驅動的滲透型流動，朝糊狀區更深層處移

動，這個過程會將濃度較稀的液體帶入，由於其方向與溫度梯度相反因此產生負偏析。接著隨著固相分率增加這種流動會與固體表面發生反射並與熱-溶質對流相互作用改變方向朝向中心移動，造成中心處的溶質濃度增加產生正偏析。另一方面溶質密度對於溶質對流也有影響，不同的溶質可以貢獻更多的浮力或是與重力相互抵銷，例如 Du 等人[94]發現到 2024 鋁合金(Al-Cu-Mg)相較於 Al-Cu 合金發現到由於 Mg 對浮力的影響與 Cu 相反使最終 2024 鋁合金的偏析程度低於鋁銅合金。

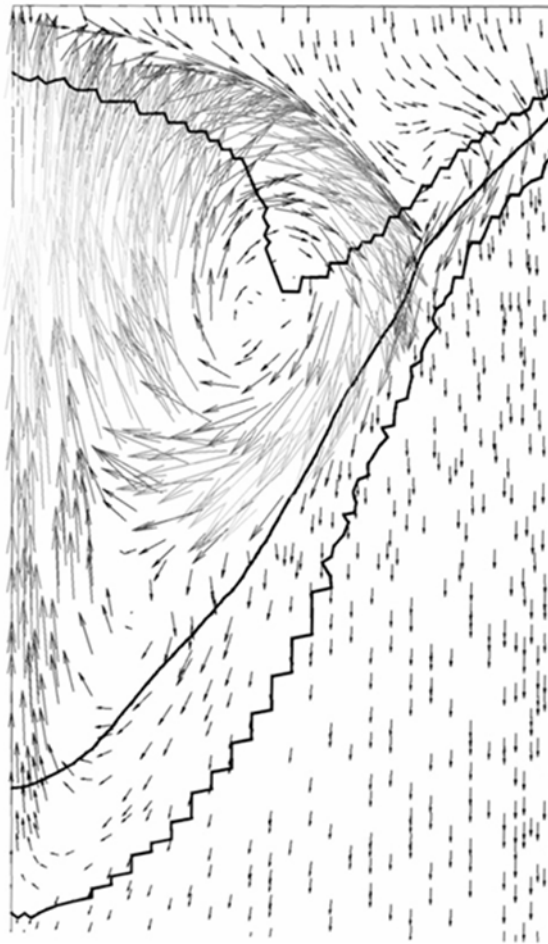


圖 2.4-11 液體在錠坯中液體的流動方向，實線部分為等固相分率線 $g_s = 0$ 、 $g_s = 0.3$ 和 $g_s = 1.0$ [95]。

第三種機制為固體碎片的運動以及成長，這種機制起初源於在凝固過程中由於剪切、熱應力與液體的流動造成晶粒破裂、分離的現象形成固體碎片。這些固體碎片會被沖刷到轉變區中進行恆溫生長最終再次被沖刷並被捕捉於固體殼的凝固

前沿，由於被沖刷得顆粒大多較大且由於枝晶在凝固前沿的生長幾乎不受任何限制，因此此處的樹枝晶臂間距以及尺寸大，圖 2.4-12 顯示了部份此機制的運作模式。在主流的觀點中晶粒越大，其溶質越貧乏相反晶粒越細則越溶質濃度越高，這項觀點 Nadella 等人[92]透過 EPMA(Electron Probe Microanalyzer)分別對 2024 細化 (GR)以及沒有細化(NGR)鋁合金進行掃描(圖 2.4-13)，皆發現到粗晶粒較細晶粒所含的 Mg、Cu 濃度都較低，其數據被歸類於表 2.4-2 中，因此此類機制也被視為造成鑄件中心發生負偏析的主要原因。

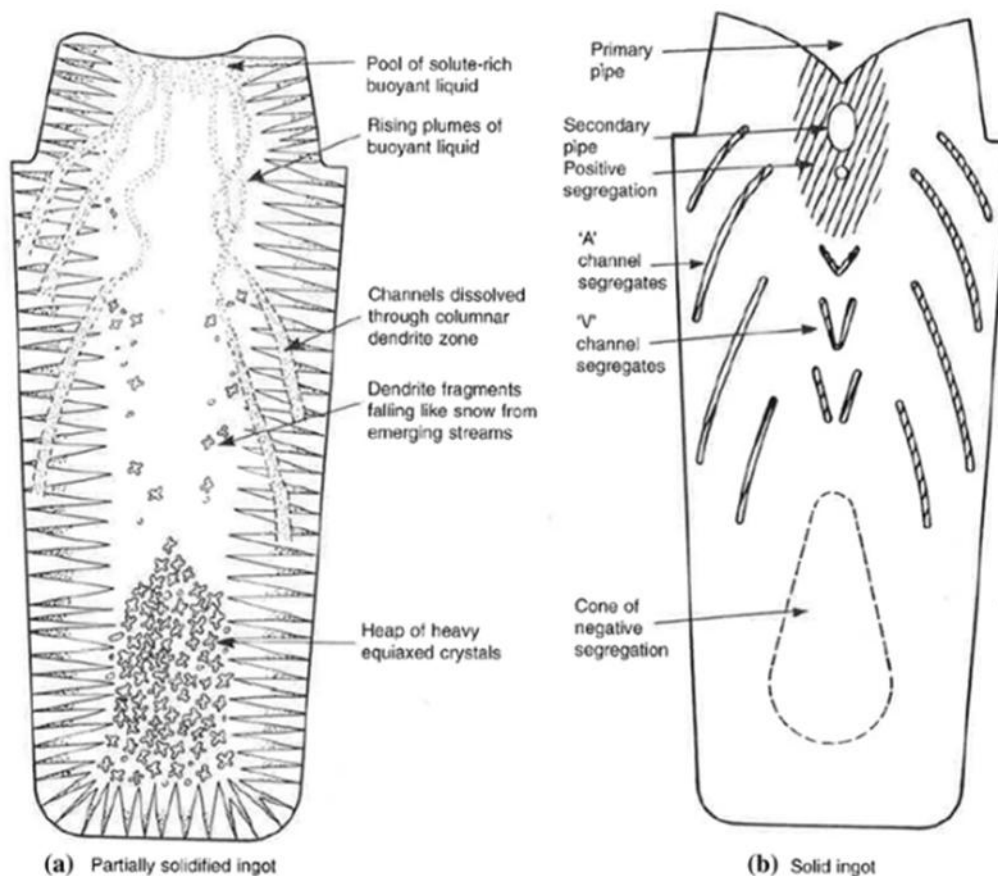


圖 2.4-12 因固體碎片造成負偏析機制的部分示意圖[96]。

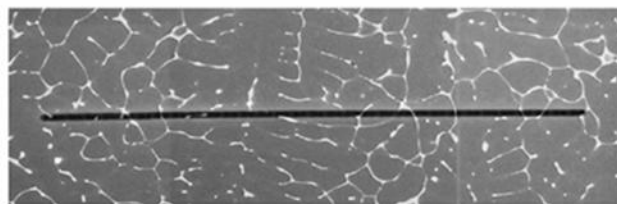
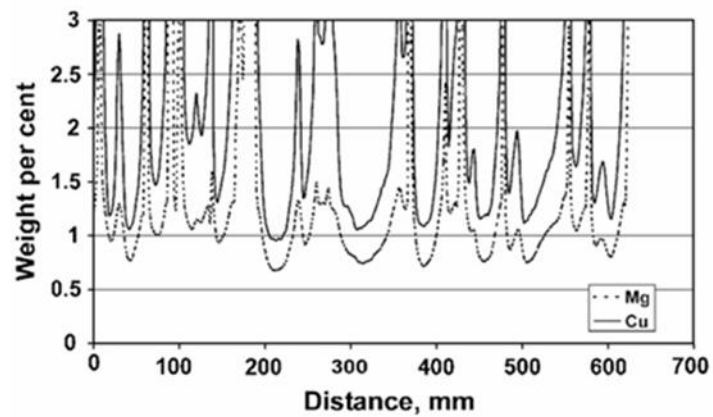
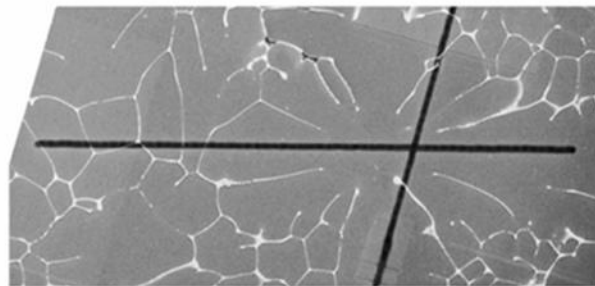
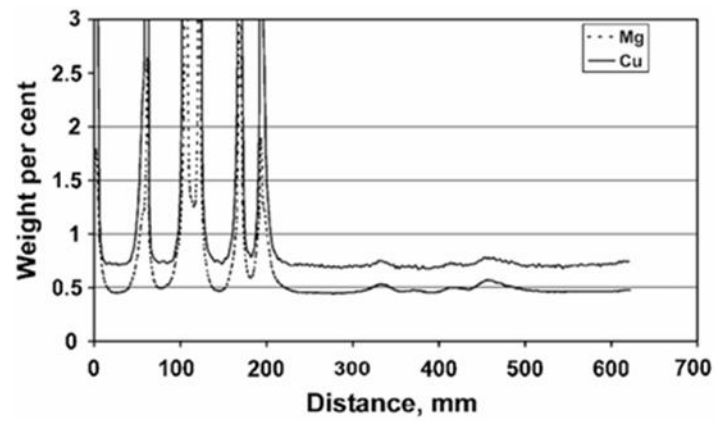


圖 2.4-13 利用 EPMA 測量 Cu 與 Mg 含量，上圖為未晶粒細化的試片，下圖則為晶粒細化後的試片[92]。



表 2.4-2 顯示的濃度為 EPMA 沿黑線探測時所測出的最低濃度[92]

Element	NGR		GR	
	Coarse	Fine	Coarse	Fine
Cu	0.68	1.09	0.72	1.1
Mg	0.45	0.74	0.46	0.70

第四種導致偏析的機制為固體網狀結構的變形，在糊狀區中裡面的結構會受到外部引起的應力或是熱應力誘發變形導致液體流動產生成份上的偏差，在鋁合金的 DC 鑄造中，由於糊狀區與模具並未直接接觸這會導致液體滲出導致表面和次表層出現偏析的現象。另一方面在二次冷卻的區域中，部分表面區域與外界的熱流減弱，使表面重新加熱引起局部熔化。在金屬靜壓作用下會擠出富含溶質的液體，因此在圖 2.4-8 中靠近表面的正偏析一般被認為是由於收縮驅動向模壁流動以及當表面的固態殼與模具脫離時，表面局部熔化使液體滲出共同導致。

最後上述的各機制在 DC 鑄造中對於宏觀偏析所提供的影響為何是近年來許多學者想透過模擬得知，Ludwig 等人[97]透過上述四種機制進行模擬，並於下方列出更嚴謹的設定：

Type A:這類型的機制模擬了液體金屬流動時將溶質濃度不同的熔體帶入各個不同區域造成偏析(第二種機制)

- Type A+：如果富含溶質的熔體流入、取代了原本比較溶質濃度低的熔體，使該區域混合濃度 C_{mix} 上升。
- Type A-：如果是溶質較少的熔體流入、取代了原本溶質濃度高的熔體，則混合濃度 C_{mix} 會下降。

Type B: 這類機制是因為固體晶粒（如枝晶）在液體中移動而造成偏析(對應第三種機制)，並假設固體中的溶質比液體少(分配係數 $k < 1$)。

- Type B+：當晶粒流出某個區域，液體補進來(液體中溶質比較多)，會讓混合濃



度 C_{mix} 上升。

- Type B-：如果晶粒流入某區域，同時液體流出(帶走比較多的溶質)， C_{mix} 就會 C_{mix} 下降。

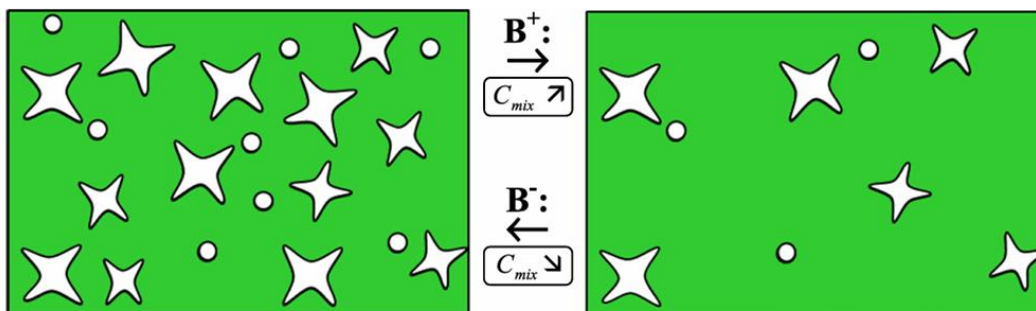


圖 2.4-14 Type B 機制在模型的示意圖[97]

Type C：這類型的機制為與糊狀區壓縮或膨脹造成偏析(對應第四種機制)，一樣假設固體中溶質比較少($k < 1$)。

- Type C+：當糊狀區向外移動或膨脹，液體會流入補位(帶來溶質)，會讓混合溶質濃度 C_{mix} 上升。
- Type C-：當糊狀區被壓縮或往內移動使液體被擠出，這會讓混合濃度 C_{mix} 下降。

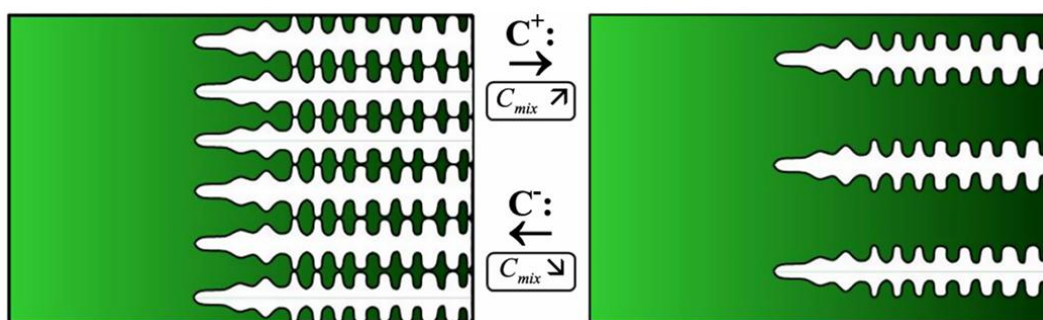


圖 2.4-15 Type C 機制在模型的示意圖[97]

Type D：這類型的機制與相變化造成的體積變化相關，來自固液密度不同(假設固體密度比液體高)凝固時體積縮小，讓液體流入來補足空間(對應第一種機制)。

- Type D+：液體流入來補償凝固收縮造成的體積減少，這些液體帶來較高的溶質濃度，讓 C_{mix} 上升。

- Type D-：熔化時體積膨脹所引起的熔體向外流動，導致混合濃度 C_{mix} 降低。

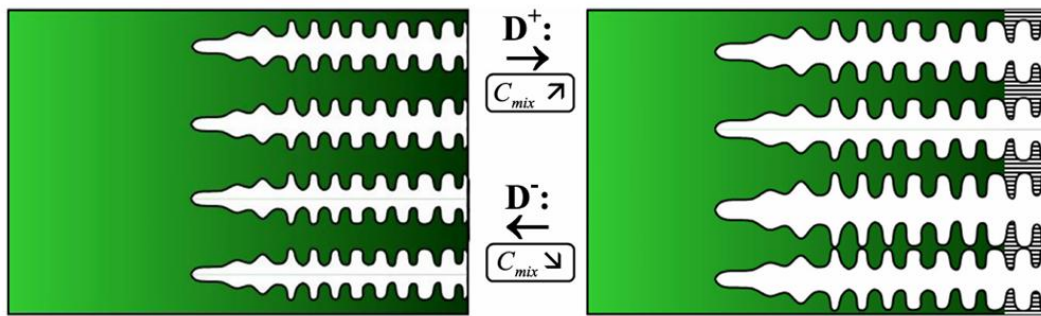


圖 2.4-16 Type D 機制在模型的示意圖[97]

最終計算和推測的結果呈現在圖 2.4-17，首先當外圍固體殼層生成後，熱脹冷縮的影響引起內部液體流入外殼層中造成正偏析(Type D+)，而中心處則因外殼層的補償作用加上熔液對流引入的低溶質熔液，因此中心處呈現負偏析。另外凝固過程中生成的等軸晶粒會沿著枝晶接觸點的等固相線移動($g_s^{coh} \approx 0.3$)導致錠坯表面出現 Type B+ 機制，而這些枝晶最終堆積在底部形成 Type B- 機制，加劇了原先補償作用造成的負偏析現象，值得注意的是液體的對流與補償作用仍然為導致中心區域出現負偏析的主要原因。最後由於鋁合金在 DC 鑄造中體積對溫度的變化相當敏感，常會出現在冷卻後固化層與鑄模之間出現間隙，導致對外界的熱流下降表面溫度升高，使固體骨架壓縮引發 Type C- 機制，且部分固體骨架重熔又誘發了 Type D- 機制，最終導致在表面正偏析區域附近出現負偏析區域。

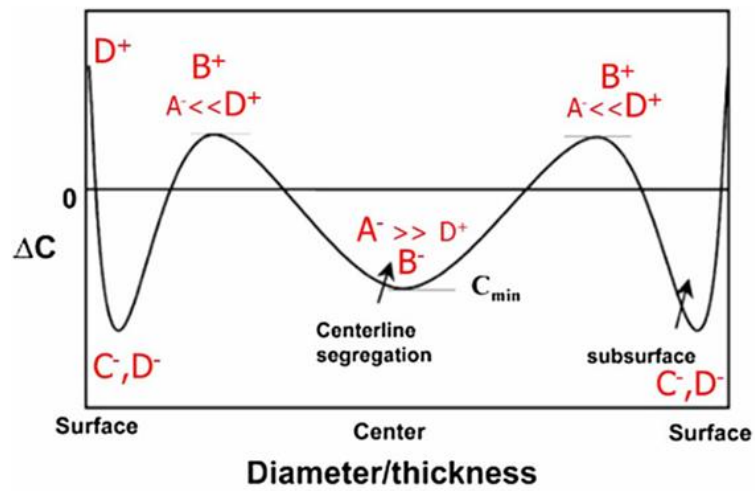


圖 2.4-17 Ludwig 等人透過模型推測鋁合金鑄錠透過 DC 鑄造後造成各部位偏析的主要機制[97]



2.5 半固態合金變形機制

在 2.4 節中討論了在鑄造過程中最常見的缺陷形成機制，為了減少或是消除這些缺陷會在鑄造的過程中加入額外的手段例如：在鑄造的過程中施加壓力透過晶粒間的移動或是擠壓液體去填滿孔洞亦或是將其置入真空和充滿惰性氣體的環境避免 bifilm 的生成來抑制孔洞的出現，因此這一章將介紹半固態合金受力下的運動行為。

2.5.1 單軸壓縮

近十年來隨著同步輻射 X 光技術上的進步開始應用於研究半固態合金受力後的變形行為，Kareh 等人[4]對球化 192 小時的 Al-8Cu 和 Al-15Cu 加熱到 560°C-590°C 之間，以研究體積固相分率從 60%-90%之間在受壓縮後的晶粒與孔隙變化。圖 2.5-1 為裝置圖，其中由於熱電耦被放置在底部，因此與裝置腔體內的溫度存在溫度差，作者透過量測到的體積固相分率進行修正並呈現於表 2.5-1。

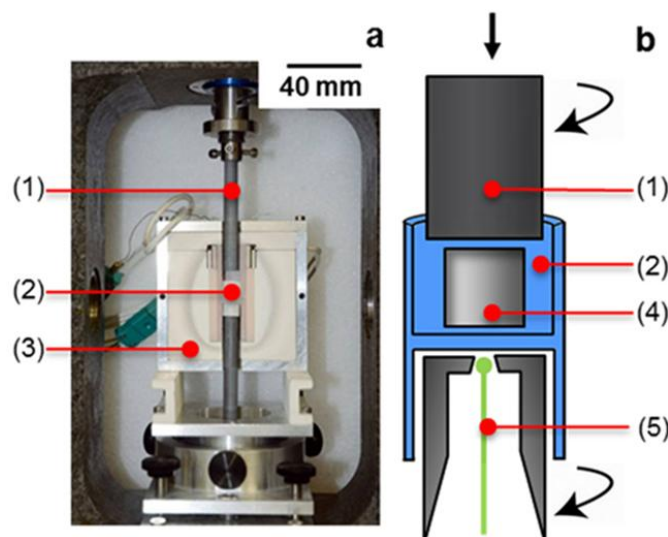


圖 2.5-1 Kareh 等人使用的實驗裝置圖(1)葉蠟石 (pyrophyllite) 壓縮柱(2)氮化硼杯(3)輻射爐(4)試樣，以及(5)熱電偶。圖(a)為該裝置安裝於拉壓測試裝置中的實物照片，圖(b)則為該裝置的分解示意圖[4]。



表 2.5-1 紀錄 15Cu 和 8Cu 在 560°C 到 590°C 之間的體積固相分率以及在平衡相圖中對應的重量和體積固相分率[4]。

Nominal wt. Cu [%]	Recorded holding temperature [°C]	Calibrated holding temperature [°C]	$g_{S_{image}}$ [%]	$g_{S_{Lever}}$ [%]	$f_{S_{Lever}}$ [%]
15	531.1 ± 2.3	580.6 ± 2.3	64.38	62.21	59.99
15	512.8 ± 1.7	562.4 ± 1.7	73.43	73.60	71.08
8	539.2 ± 1.4	588.7 ± 1.4	86.43	87.01	86.12
8	518.6 ± 1.7	568.1 ± 1.7	92.70	94.59	93.96

圖 2.5-2(a)顯示了以圖(b)中各固相分率下球度出現頻率最多的代表性顆粒，能發現到隨著固相分率的增加球度隨著下降，這是因為單一尺寸球體的體積最大堆積密度為 0.74[98]，一但超過晶粒就會逐漸朝向不規則形狀以增加最大堆積密度(在下一節 2.6 中有詳細介紹)。在加熱完成後，上方的壓頭會以 5 μ m/s 速度向下施加壓力，但由於固相分率為 93%的試片再受壓後很容易出現破裂因此壓頭是以 1 μ m/s 向下施壓。圖 2.5-3(a)針對試片存在的孔洞進行了染色，綠色的孔洞代表了從試片表面延伸到內部的孔洞，而紅色孔洞則為只存在試片內的孔洞。從圖中能看到應變的增加有助於綠色孔洞大量的生長，隔壁的圖 2.5-3(b)對這兩種孔洞的體積進行了量化，也得到了相似的結論。另外孔洞的位置也會影響孔洞的發展方式，圖 2.5-3(c)中原先在壓頭下方的兩個分離孔洞會隨著應變的增加各自逐漸向試片內部發展，而在圖 2.5-3(d)中側邊的三個分離孔洞一開始會分別向試片內部擴展，隨後合併在一起朝試片內部形成巨大的複雜孔洞。

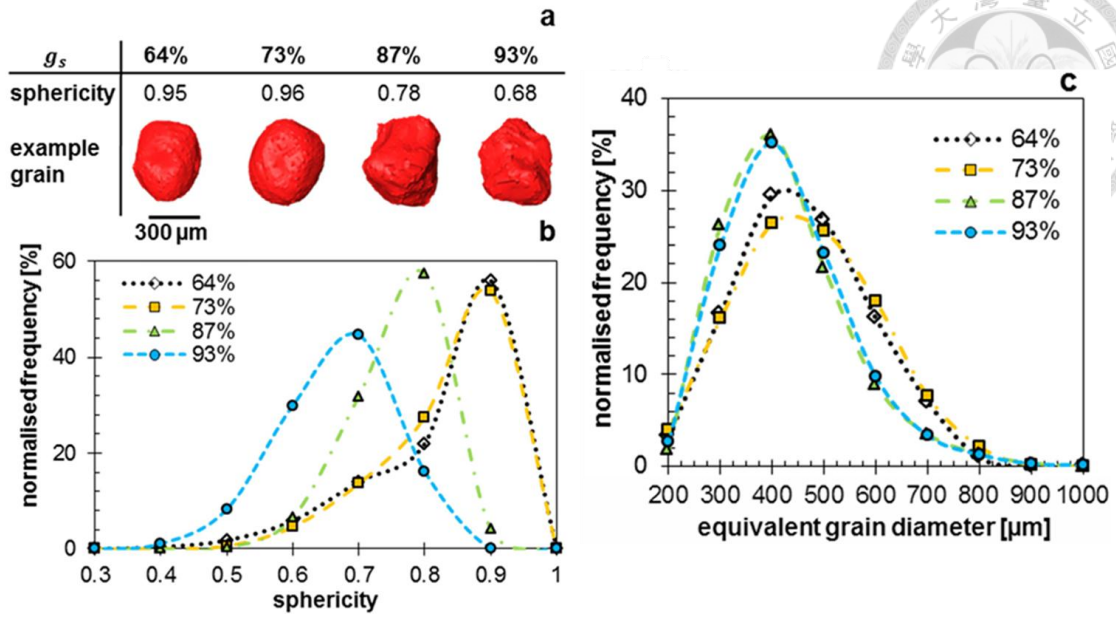


圖 2.5-2(a)為不同固相分率下晶粒的球度(b)球形度在不同固相分率下的分佈(c)晶粒的等效直徑分佈[4]。

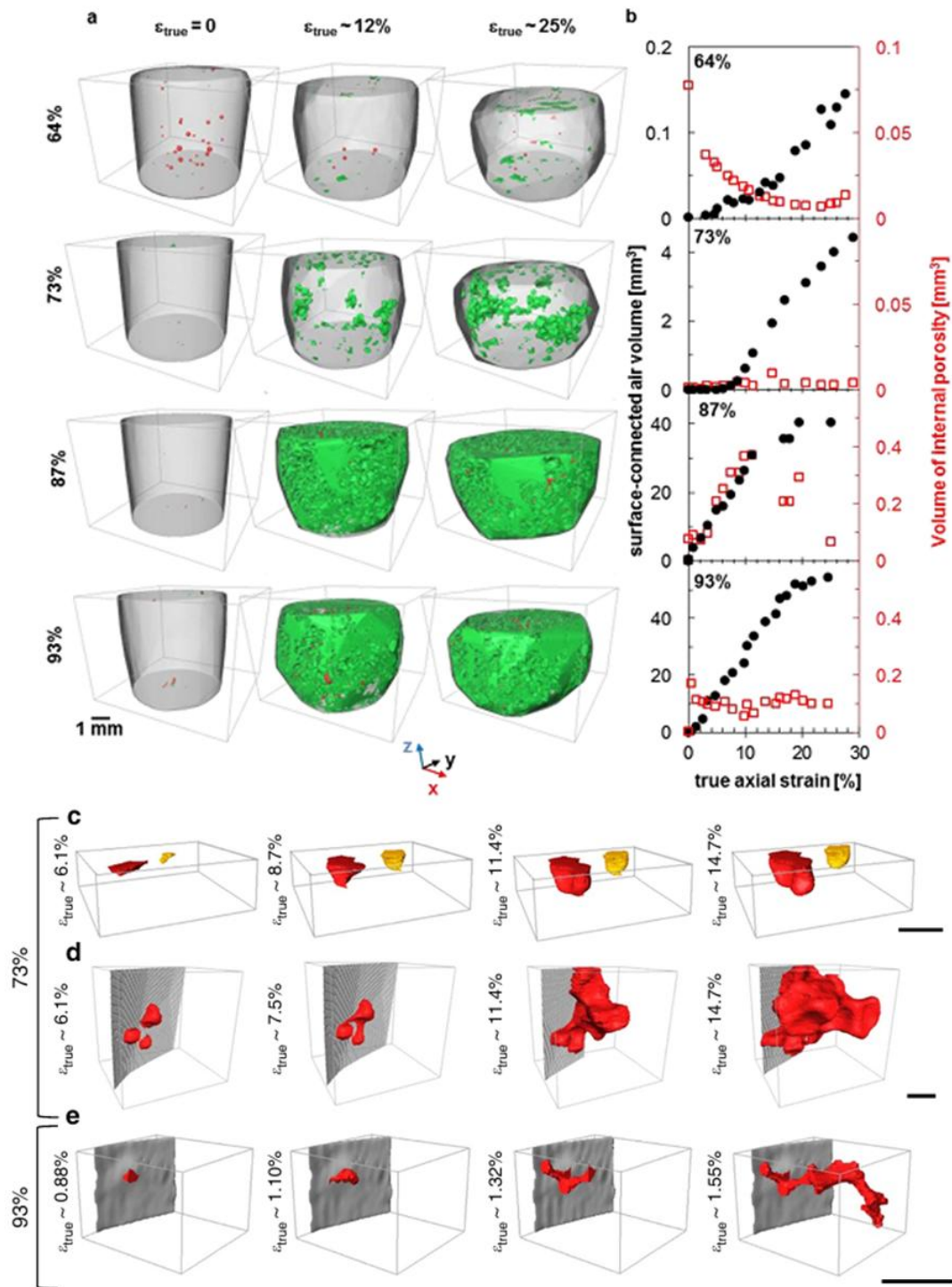


圖 2.5-3(a)顯示了孔洞在壓縮過程中的位置以及變化，綠色孔洞代表從表面延伸到試片內部的孔洞，紅色代表試片內部的孔洞。(b)紀錄綠色孔洞與紅色孔洞體積隨著壓應變的變化。(c)為壓頭下方的孔洞在固相分率 74% 的試片隨壓應變的變化。(d)為試片側邊的孔洞變化。(e)為固相分率 93% 的試片其側邊孔洞的變化 [4]。

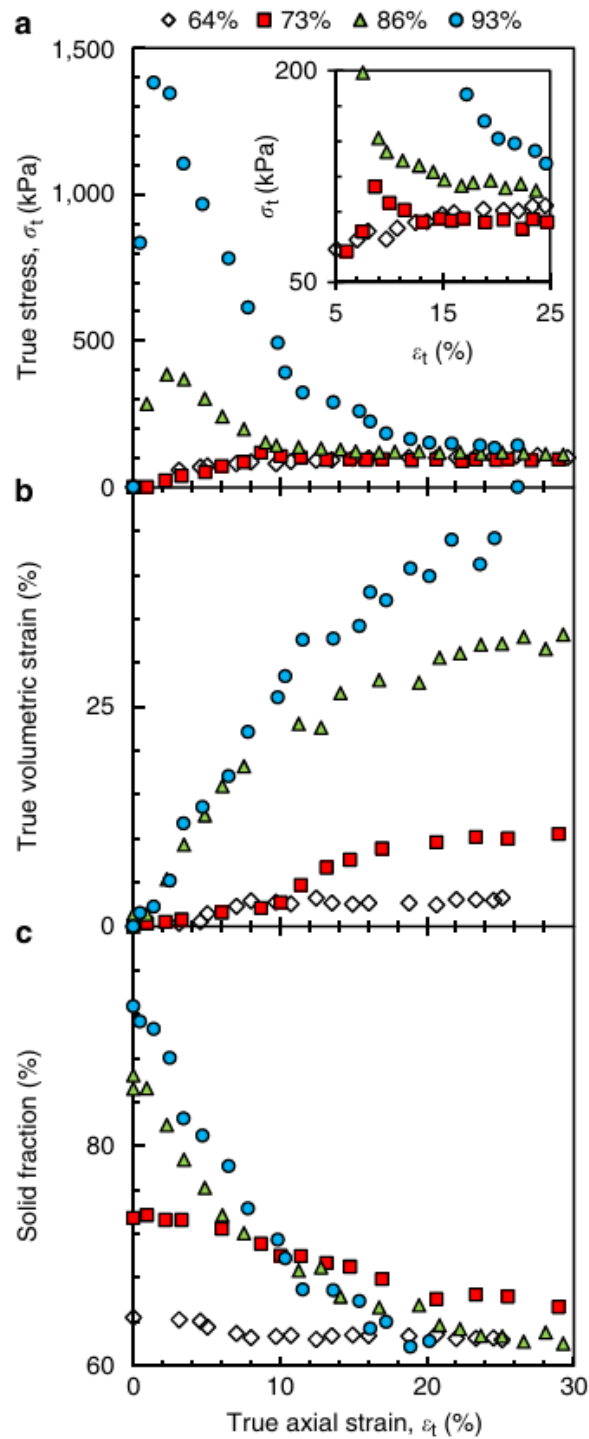


圖 2.5-4 固相分率 64%、73%、87%以及 97%下的機械性質，圖(a)為真實應力與真實應變變化圖。圖(b)為體積應變與真實應變變化圖。圖(c)固體體積分率與真實應變曲線[4]。



圖 2.5-4(a)為試片受壓後的應力應變圖，除了 64%固相分率的試片外其餘的試片在壓縮過程中皆出現了應力峰值並隨著固相分率的提升而提升，以顆粒的角度來說出現這種現象主要是因為顆粒傾向於系統中創造更高的顆粒密度以維持系統的穩定，在這過程中由於顆粒間的接觸增加導致應力上升，但由於顆粒密度無法無限的上升到達極限後，顆粒之間出現滑移或滾動導致顆粒分開，以適應變形造成液體流入擴大的孔隙中，造成體積膨脹如圖 2.5-4(b)所示，這往往會伴隨宏觀偏析以及孔洞的擴張如圖 2.5-5 以及圖 2.5-3 所紀錄的孔洞體積變化，並且能發現到固相分率越高，體積膨脹的情況也越嚴重。有趣的是在顆粒系統中孔隙率或是固相分率的變化通常會與體積應變有關，從圖 2.5-4(c)裡能看到不管初始的固相分率為何，在壓縮的後期階段固相分率都會趨近 62.4%，這種現象在土壤力學中稱為臨界土壤力學狀態，這個部分將在 2.5.3 節中搭配三軸壓縮詳細介紹。

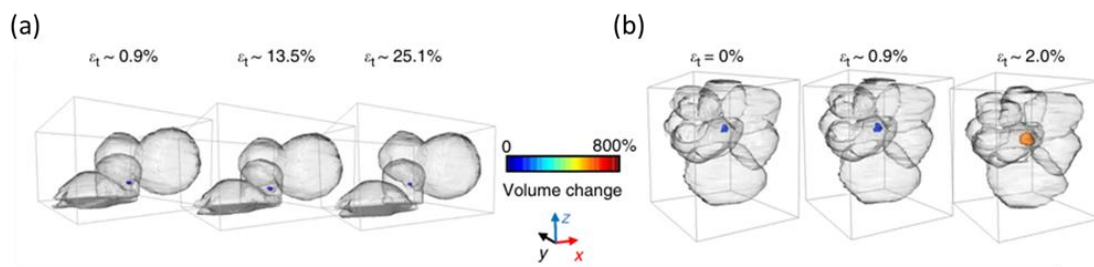


圖 2.5-5 (a)和(b)分別代表了固相分率 64%和 93%試片中單一孔洞隨應變的變化[4]。

最後討論晶粒的變化，圖 2.5-6(a)記錄了晶粒在單軸壓縮過程中球形度的變化，整體的球形度累積變化在整個壓縮過程中維持在 5%以內，除此之外在圖(b)中累積的晶粒表面變化僅在偵測器的 1~2 個像素之間，在此研究中幾乎可被認定為準剛體(quasi-rigid)，試片的變形主要是依賴晶粒的移動以及液相移動達成。另外在圖(c)中晶粒的半徑變化落在-10 μm 至 20 μm 之間，各晶粒在整個壓縮過程中並沒有出現明顯的凝固和再融化現象。

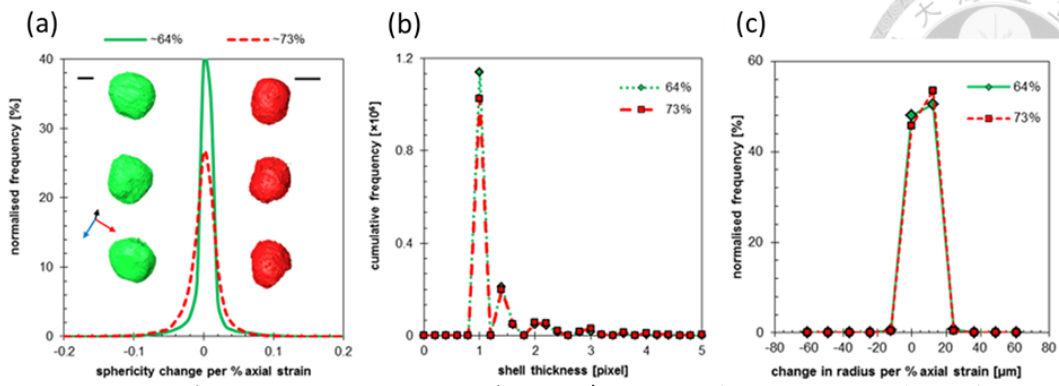


圖 2.5-6 分別代表 64%和 73%固相分率(a)在每 2%應變下晶粒球形度的變化(b)從試片中隨機選取 50 顆晶粒紀錄其累積厚度隨應變的變化(c)每 2%應變下累積晶粒半徑的變化[4]。



2.5.2 枝晶接觸

從 2.1.3 節和 2.1.7 節中可以得知晶粒形貌會受到濃度和溫度流影響，這種現象在不平衡的凝固時尤為明顯並形成突起的晶體如圖 2.5-7，這種晶體被稱為樹枝晶。



圖 2.5-7 等軸枝晶[99]。

在凝固過程中，隨著枝晶的成長彼此開始相互接觸並開始傳遞剪切力和壓縮力，並使整體合金剪切強度突然增加[100]，圖 2.5-8 清楚的顯示了剪切強度增加的現象，這種現象被稱為枝晶接觸其對應到的固相分率被稱為枝晶接觸點，一般來說枝晶接觸點 g_s^{coh} 約莫落在 0.15~0.55 之間，這個範圍極大程度上受到晶體形貌和晶粒尺寸影響，高度分枝的樹枝狀晶體其枝晶接觸點約為 0.15[100-102]，而球化後的晶體約為 0.55[102]。通常測量枝晶接觸點的方法有兩種其中一種為通過枝晶接觸時所剪切阻力增加[102-105]或是透過熱導率的增加來測量[102, 104, 105]。圖 2.5-8 和圖 2.5-9 分別表示了發生枝晶接觸後的剪接應力與固相分率的變化以及牆體溫度與中心溫度和兩者溫度差隨時間的變化。在圖 2.5-8 中能發現到當固相分率到達一個臨界點時其剪切力突然增加，這裡將這個點所對應到的溫度以及該溫度下的重量固相分率定義為最密堆積溫度 T_{pk} 和最密堆積固相分率 f_{pk}^s 。理論上來說由於球體的體積最密堆積密度為 0.74，因此球形晶粒的理論最密堆積重量固相分率可由體積最密固相分



率推得。圖 2.5-10 則表示了晶粒形貌以及大小對於枝晶接觸的影響[100]。

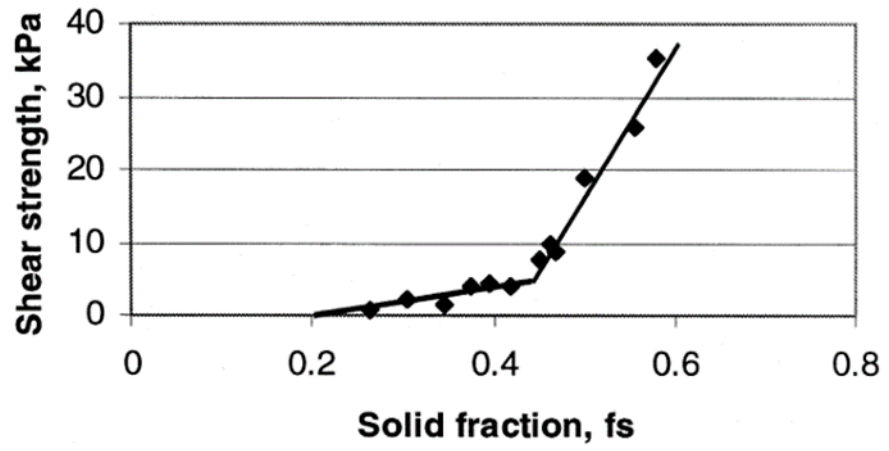


圖 2.5-8 為 Al±4%Si±4%Cu 合金的剪切應力固相分率圖[100]。

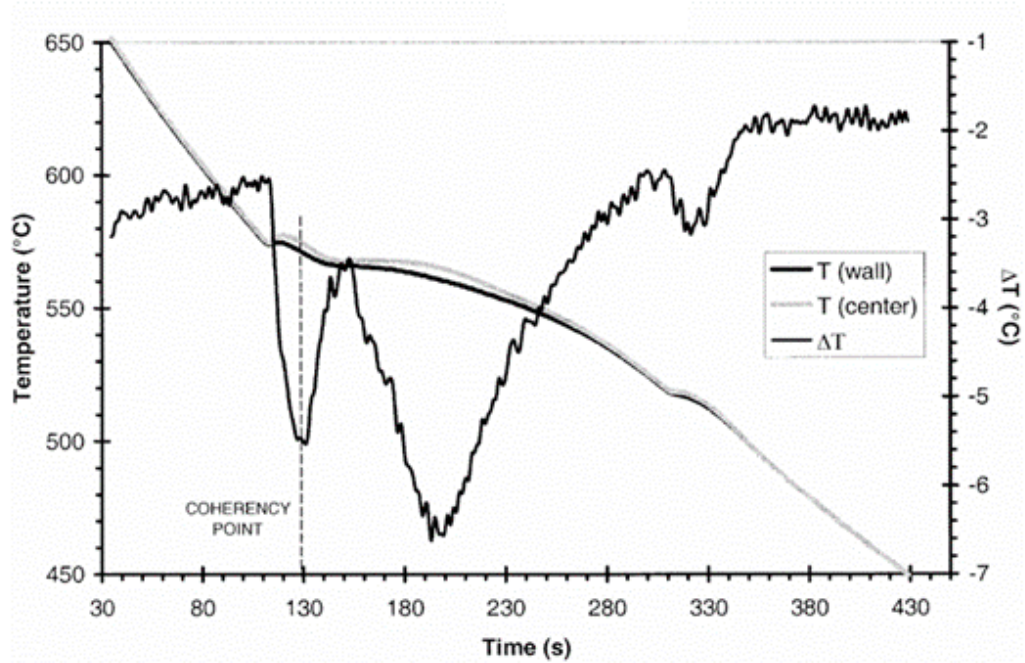


圖 2.5-9 Al-4Cu-10Si 合金其冷卻時其牆體溫度與中心溫度以及兩者溫度差隨時間的變化其中當溫度差的絕對值來第一次來到最大時被定義為枝晶接觸點[102]。

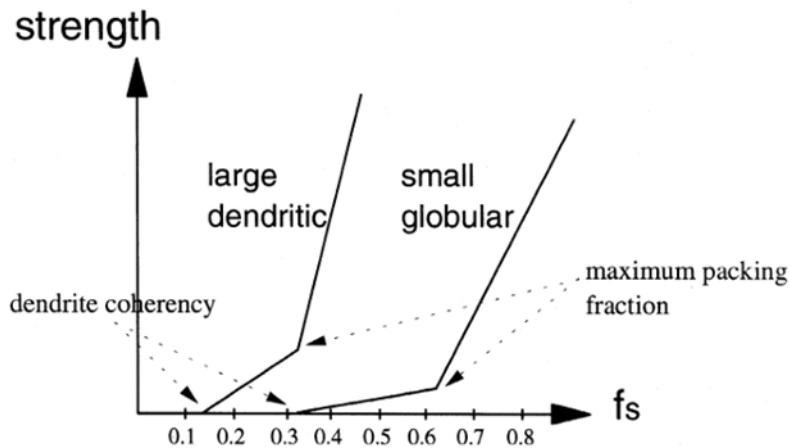


圖 2.5-10 不同晶粒大小和晶粒形貌對剪切力的影響[100]。

在半固態合金中最密固相分率 f_{pk}^s 的重要性在於其標記出了固體顆粒之間互鎖並提供剛性的臨界點。在達到最密堆積固相分率前，枝晶間的間隙允許液體流動並協助晶體旋轉和重新排列，當枝晶持續堆積後開始相互限制彼此的移動導致剪接力增加，這種現象在凝固學中被視為從大量進料轉向枝晶間進料，並且液體流動不在那麼通暢，只能透過晶粒間的間隙流向剪切面並對剪切面的枝晶產生潤滑效果。合金產生屈服剪切力下降如圖 2.5-11 所示。當半固態合金的剪切面固相分率低於 f_{pk}^s 時由於液體灌入剪切面在凝固完成後就會形成宏觀偏析帶如圖 2.5-12(a)所示。但若是剪切面固相分率高於 f_{pk}^s 則流向剪切面的液體不足因此形成大量的撕裂 (tears) 和孔洞 (pores) 產生 [100]，如圖 2.5-12(b)。

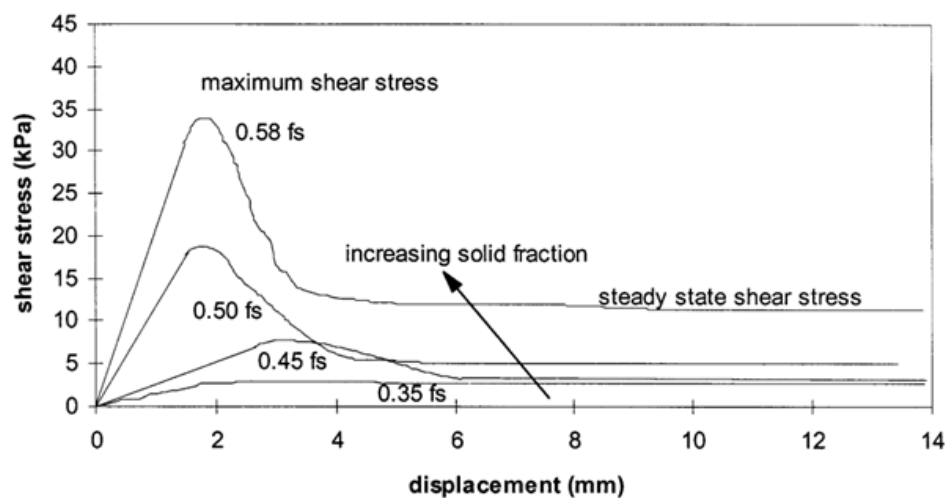


圖 2.5-11 Al-4Cu-4Si 合金銅合金進行直接剪切測試的剪切力與位移變化圖[106]。

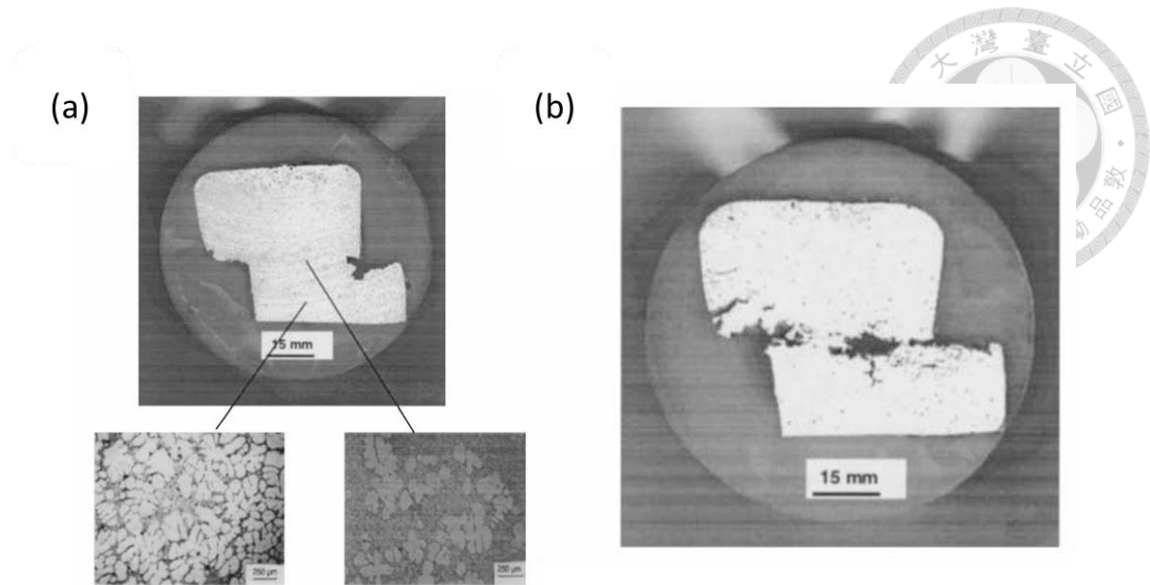


圖 2.5-12 Al-7Si-0.4Mg 合金在晶粒尺寸 1.7mm 下進行直接剪切測試(a)為固相分率 0.32 下的測試結果剪切面俱有明顯的宏觀偏析帶。(b)為固相分率為 0.43 下的測試結果剪切面俱有大量的孔洞和撕裂[100]。



2.5.3 三軸壓縮測試以及臨界狀態土壤力學

在 2.5.1 節中提到 Karez 等人透過同步輻射搭配單軸壓縮測試觀察到試片的變形主要透過顆粒的移動造成，並且顆粒在此過程中並沒有發生太大的形變保有準剛性的性質，這種顆粒性質類似於土壤顆粒，因此促使了許多學者嘗試利用土壤力學的角度了解顆粒的運動行為[2, 5, 6, 107]。三軸壓縮測試是在土壤力學中測試土壤機械性質的常見方法。圖 2.5-13 為傳統三軸壓縮示意圖，一般來說三軸壓縮測試分為兩個階段，首先會施加等向應力，這個階段在模擬自然界中土壤受到靜水壓力後的應力狀態(圖 2.5-13 (a))，隨後從上方透過移動壓頭施加偏應力到試片上觀察顆粒的流動以及機械性質的變化(圖 2.5-13(b))。不過由於傳統的三軸壓測試都在常溫下進行，因此 Altuhafi 等人[107]基於傳統三軸壓縮儀器的基礎上設計了可加熱式的三軸壓縮儀器以研究半固態鋁合金的三軸壓縮測試如圖 2.5-14 所示。儀器內部存在兩個容器，上方的容器裝載試片，是主要實驗發生的地方。下方的容器則裝滿 Al-33Cu(共晶狀態下的液體的溶質濃度)，當上方的試片在三軸壓縮的過程中發生膨脹或壓縮時會從下方擠出或吸取液體，造成下方容器內液體的體積變化推動底部的滑動底座從而得知試片的體積變化。

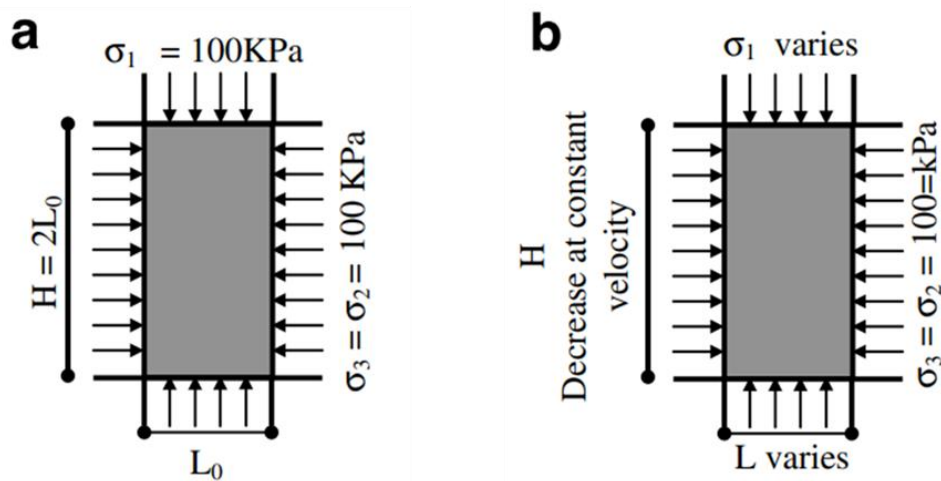


圖 2.5-13 傳統三軸壓縮測試示意圖[108]。

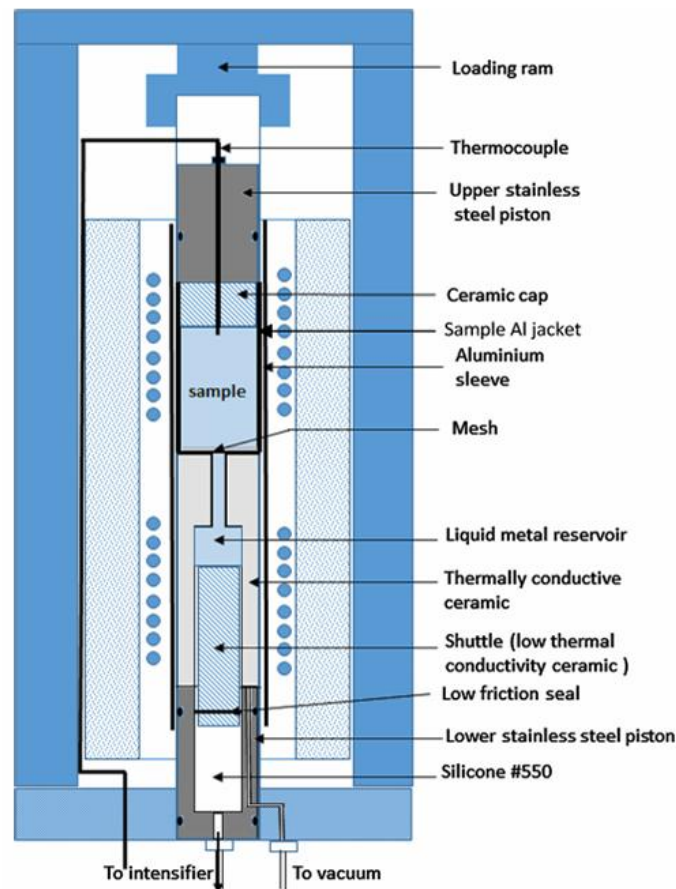


圖 2.5-14 Altuhafi 等人設計的半固態合金三軸壓縮裝置[107]。

在 Altuhafi 等人的實驗中，首先在常溫下通過通氣施加等向壓力，在到達目標壓力後才開始加熱，並開啟連通閥避免熱膨脹產生過大的膨脹壓力，圖 2.5-15(a)和(b)記錄了此研究在加熱階段的溫度變化以及在等向加壓期間體積的變化(正號代表體積壓縮)。值得注意的是所有試片的體積在到達指定的圍壓的情況下仍不斷收縮，這是因為鋁合金在高溫下受力除了晶粒更靠近比此外也誘發了黏塑性的變形，因此作者在此次的研究中會在到達指定圍壓後維持一段時間盡量去到達穩定的體積狀態。在完成等向施壓後，上方的壓頭會以每秒 0.002mm 的剪切速率向下壓縮直到應變到達 12%-14%。表 2.5-2 紀錄了在等向壓縮結束後以及剪切結束後的固相分率、孔隙率以及體積的變化。

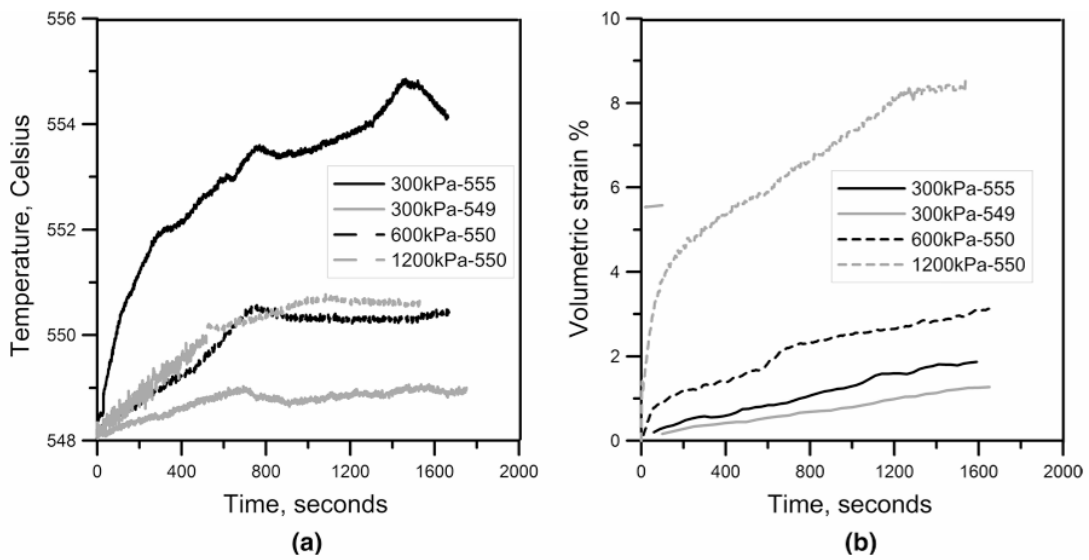


圖 2.5-15 (a)溫度隨時間的變化(b)試片體積隨時間的變化[107]。

表 2.5-2 此實驗在三軸壓縮測試時的溫度以及圍壓以及對應的固相分率和體積變化[107]。

Test	Cell Confining Pressure, kPa	Temperature at the Start of Shearing, °C	Estimated Solid Fraction/Void Ratio at Start of Shearing (After Compression Stage)		Volumetric Strain During Compression Stage (Pct)	Final Solid Fraction/Void Ratio	
			Solid Fraction	Void Ratio		Solid Fraction	Void Ratio
300 kPa-549	300	549	0.70	0.43	1.3	0.69	0.45
300 kPa-555	300	555	0.67	0.47	2.0	0.68	0.46
600 kPa-550	600	550	0.71	0.40	3.1	0.74	0.35
1200 kPa-550	1200	550	0.75	0.32	8.5	0.84	0.19

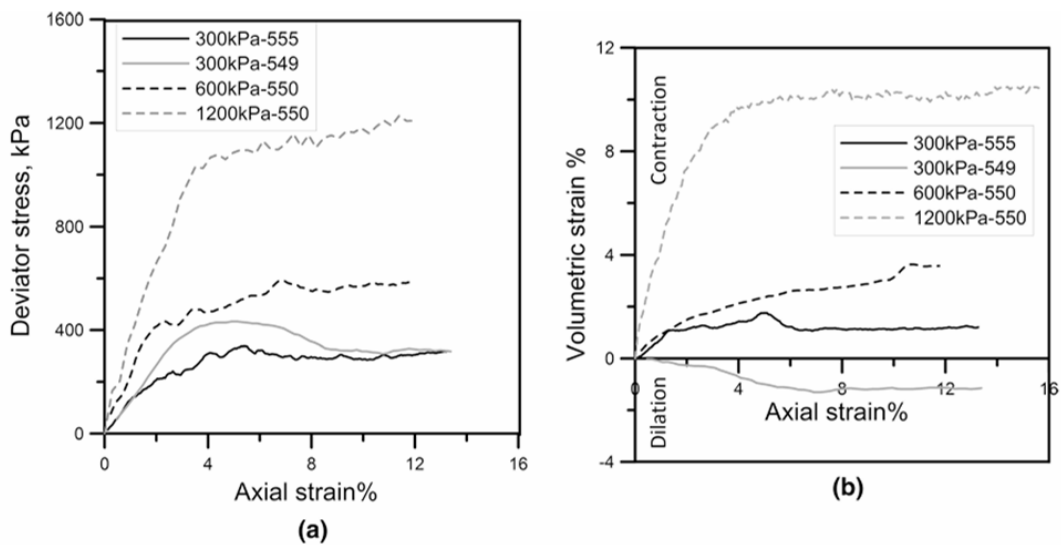


圖 2.5-16 (a)偏應力與應變的變化(b)體積應變隨應變的變化[107]。

從表 2.5-2 和圖 2.5-16(b)中可觀察到在所有的測試裡唯有在溫度 549°C 圍壓為 300kPa 下進入剪切階段時出現剪切誘發膨脹，圖 2.5-16(a)中該試片的偏應力變化與圖 2.5-4(a)中高固相分率試片的應力變化類似，皆會出現應力高峰。為了解釋為何出現體積膨脹以及應力高峰，這裡將介紹臨界狀態土壤力學。

臨界狀態土壤力學是土壤力學中的一個分支，其概念為不管土壤的初始狀態為何，在持續的剪切變形後會進入臨界狀態，其偏應力和體積不會再發生變化。這種狀態下通常被視為土壤發生破壞。其偏應力 q 、平均有效應力 p' 以及孔隙率 e 終將趨近於一條三維的曲線圖 2.5-17(a)，其中平均有效應力、偏應力以及孔隙率可由主應力 σ_1 、 σ_2 、 σ_3 和體積固相分率 g_s 計算：

$$p' = \frac{\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3}{3} \quad \text{Eq. 2.5-1}$$

$$q = \sqrt{\frac{1}{2}[(\sigma_1 - \sigma_2)^2 + (\sigma_2 - \sigma_3)^2 + (\sigma_3 - \sigma_1)^2]} \quad \text{Eq. 2.5-2}$$

$$e = \frac{1 - g_s}{g_s} \quad \text{Eq. 2.5-3}$$

但一般來說會將三維的 CSL 曲線投影到二維的 $e - \log(p')$ 以及 $q - p'$ 平面上，由此可定義出兩個臨界狀態方程式[109]：

$$q = Mp' \quad \text{Eq. 2.5-4}$$

$$e = \Gamma_{CSL} - \lambda \ln p' \quad \text{Eq. 2.5-5}$$

其中摩擦常數 M 、臨界狀態線的縱坐標 Γ_{CSL} 及 CSL 梯度 λ 是土壤特性，用於半固態可代表材料特性。因此在臨界土壤力學的架構下，這個概念可以用來判斷材料在剪切過程中是否已經達到其降伏應力，進入了「臨界狀態」。並且在先前的研究中[4, 107]也發現不同初始固相分率的半固態鋁合金在受剪切變形後都會趨近於同



一條 CSL 曲線。

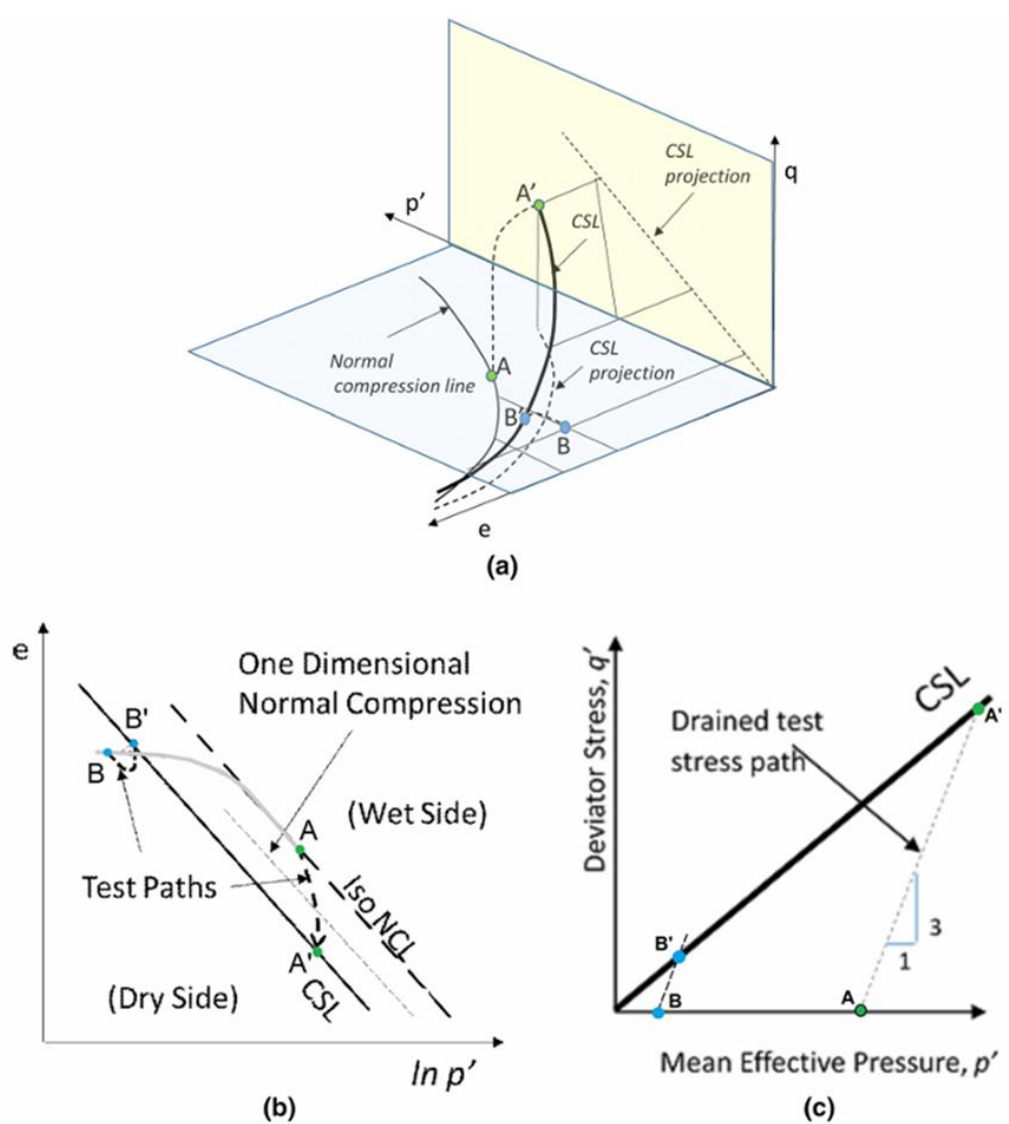


圖 2.5-17(a) 三維狀態下的臨界曲線(CSL)，(b) 三維 CSL 投影到 $e - \log(p')$ 平面上，(c) 三維 CSL 投影到 $q - p'$ 平面上[107]。

由上述的概念可以得知壓縮顆粒並不一定會使試片體積收縮，當試片內部的初始孔隙率高於 CSL 曲線如圖 2.5-11(b) 的點 A 在進行壓縮後試片會產生收縮的現象直至孔隙率趨近 CSL 曲線，相反當初始孔隙率低於 CSL 曲線在壓縮後則會出現膨脹。而這種出現膨脹的現象與先前在 2.5.1 節中高固相分率的壓縮現象類似，基本的概念是相同的，因此單軸壓縮很多時候被視為不施加額外圍壓的三軸壓縮測試。圖 2.5-18 為實驗結束冷卻後的試片切片圖，在 300kPa-549°C 的切片中能清

楚的看到相較於其他試片，共晶相和孔洞有明顯的增加，這意味著在半固態下時，有額外的液體被灌入試片中這與圖 2.5-16(b)指出的體積膨脹現象相符。這種膨脹剪切帶與經歷剪切誘發膨脹的緻密土壤樣品中的剪切帶相似，推測 300kPa-549°C 試片的應力-應變行為是源於剪切誘發膨脹。圖 2.5-16(b)也指出當圍壓越大時，會導致更高的偏應力以及體積壓縮應變出現，這是由於圍壓越高顆粒越排列緊密往往需要高大的力量來完成形變，這與圖 2.5-18(b)(c)中觀察到共晶相隨圍壓增加而大幅減少，且晶粒變形的情況也更明顯的現象相符。最後圖 2.5-19 記錄了此次實驗所得到的 CSL 曲線結果。

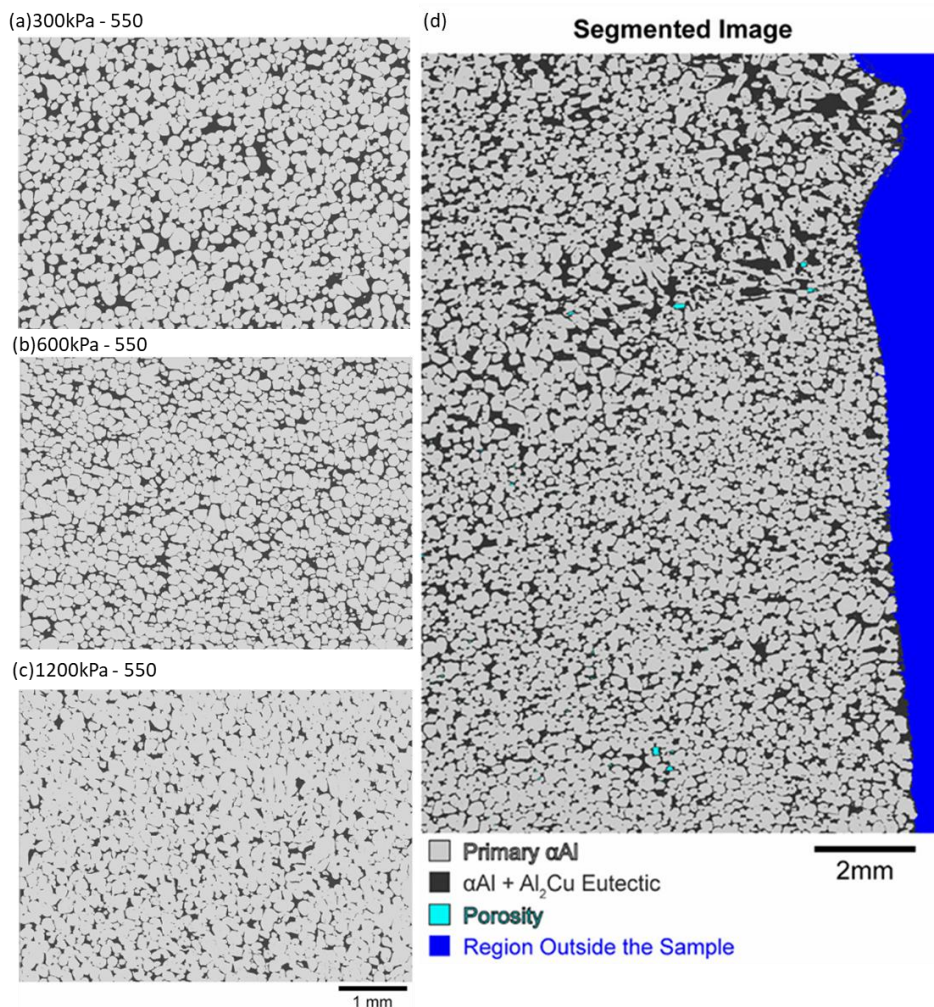


圖 2.5-18 以試片和壓縮軸垂直方向取得的拋光後試片微結構圖，亮灰色部分為 α Al 黑色部分為加熱時為液相的共晶相。由圍壓和加熱溫度將試片區分為(a)300 kPa-549°C，(b)600 kPa-550°C，(c)1200 kPa-550°C，(d)為 300 kPa-549°C 樣品的分割顯微影像。當中清楚的標出了膨脹剪切帶以及孔隙[107]。

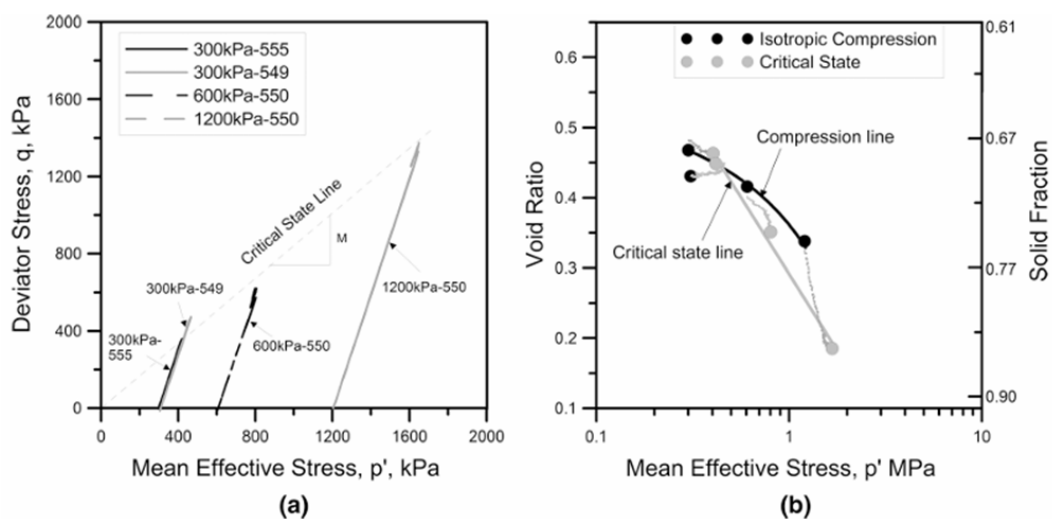
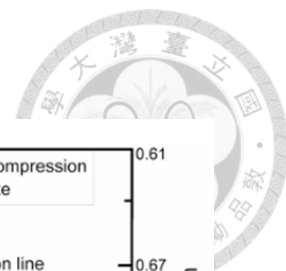


圖 2.5-19 Altuhafi 實驗所測的 CSL 曲線結果，(a)偏應力-平均有效應力平面中的應力路徑。(b)壓縮階段後的樣品組織狀態（以黑色實心圓表示），以及試驗結束時在孔隙比-有效平均應力對數（ $e - \ln(p')$ ）平面中的狀態。



2.5.4 排水壓縮

先前介紹的單軸壓縮與三軸壓縮，會在邊界上施加固定或是不施加壓力，並透過上方壓頭的移動來觀察晶粒的移動與變化。而與之相對的是固定邊界在壓縮過程中被視為無限圍壓的排水壓縮。圖 2.5-20 為 Su 等人[6]的實驗裝置圖，首先將球化後的 Al-8Cu 以及 Al-15Cu 試片加熱到 583°C，隨後上方的壓頭以每秒 0.01 的應變速率向下施壓直到壓頭偵測到的力到達 12kN。接著將試片取出進行淬冷以觀察晶粒在壓縮後的形貌變化。

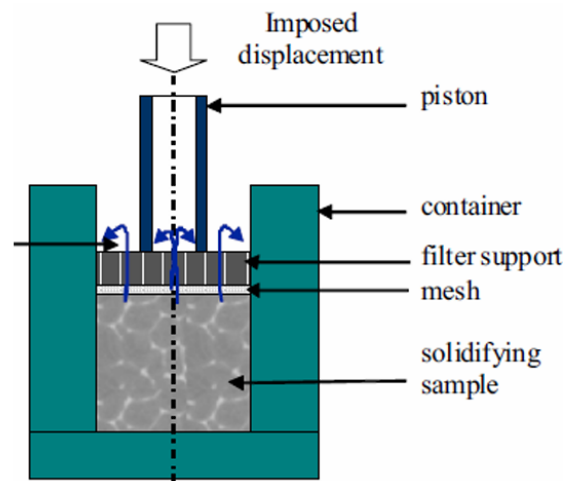


圖 2.5-20 排水壓縮實驗示意圖[6]。

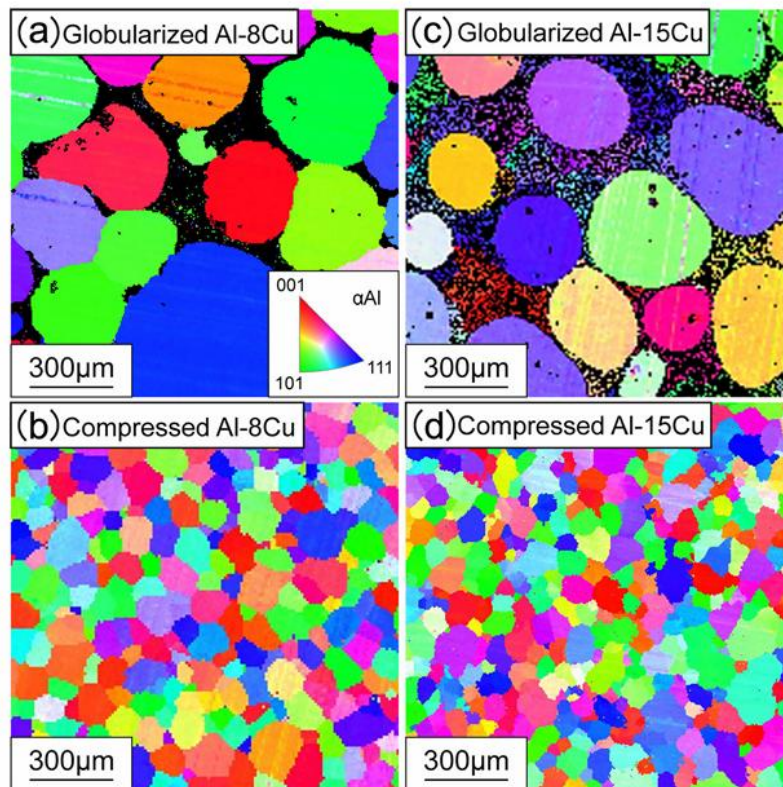


圖 2.5-21 Al-Cu 合金的 IPF(Inverse Pole Figure map)，圖(a)球化後的 Al-8Cu，(b)壓縮後的 Al-8Cu。(c)球化後的 Al-15Cu，(d)壓縮後的 Al-15Cu[6]。

從圖 2.5-21 中能發現在經過壓縮後幾乎所有的共晶相都消失了，最主要的原因是因為晶粒相互擠壓變形擠出了在高溫時熔融的共晶相導致。另外 Su 等人除了進行實驗外，透過離散元素法模擬排水壓縮，其中 Al-15Cu 在 583°C 時的固相分率大約為 0.6，而 Al-8Cu 則為 0.82。一般來說顆粒的最密堆積密度為 0.74，一但大於 0.74 顆粒的形狀會開始偏離圓形，這一點在圖 2.5-21(a)的球化試片中能清楚看到。因此在製作顆粒模型方面 Su 等人透過兩顆單顆顆粒黏在一起形成 clump 來模擬 15Cu 晶粒，而 8Cu 則是透過 Voronoi 切割的方式生成這種偏離球體的顆粒，這兩種顆粒模型呈現於圖 2.5-22 中。

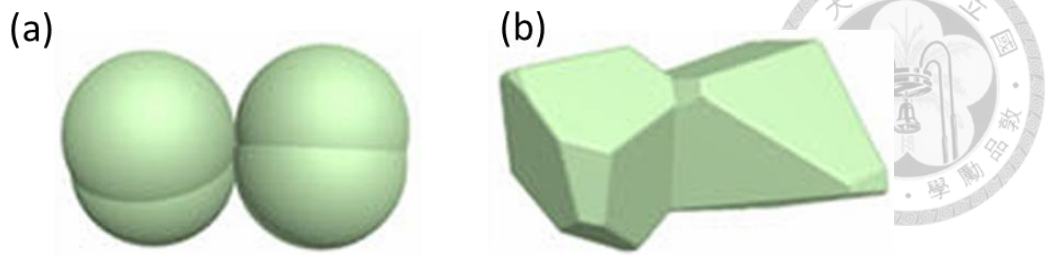


圖 2.5-22 (a) clumps 單元，(b) rblocks 單元[6]。

最後透過從 BSE(背散射電子成像)收集到的晶粒尺寸數據以高斯分布的方式輸入到直徑 24mm 高 12mm 的圓柱形中如圖 2.5-23。隨後設定顆粒與牆之間與顆粒與顆粒之間的碰撞模型分別為 Hertz 和 Burgers 碰撞模型以模擬顆粒與牆之間的非線性碰撞以及顆粒與顆粒間的黏彈性碰撞。表 2.5-3 列出了此次模擬所使用的碰撞參數。

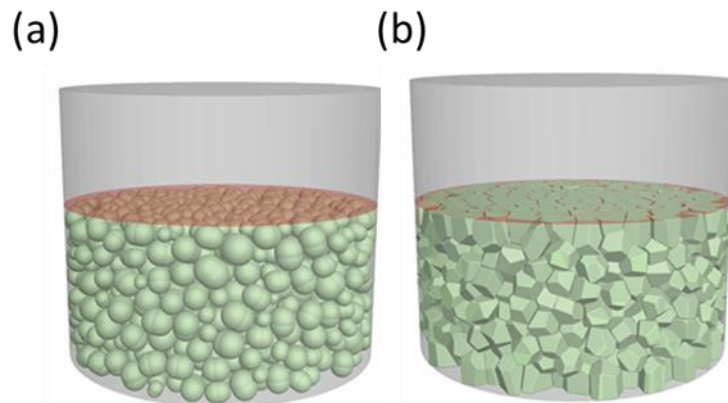


圖 2.5-23 (a)15Cu 晶粒模型(b)8Cu 晶粒模型[6]。

表 2.5-3 Su 等人模擬排水壓縮所使用的碰撞模型[6]。

Parameter Setting	Parameters	Contact Model	Value	Unit
Fixed Parameters	Poisson's ratio (ν)	Hertz	0.384	
	normal damping ratio (β)	Hertz	0.2	—
	normal contact stiffness ($k_{2,n}$)	Burgers – Kelvin Part	1.55×10^7	N/m
	normal damping coefficient ($\eta_{2,n}$)	Burgers – Kelvin Part	2.40×10^6	N · s/m
	normal damping coefficient ($\eta_{1,n}$)	Burgers – Maxwell Part	From Eq. [SI-9]	N · s/m
		p-w friction coefficient (μ_{RB-w} or μ_{S-w})	Hertz	0
Setting I: Standard G and $k_{1,n}$	p-p friction coefficient (μ_{RB-RB} or μ_{S-S})	Burgers	0.01	—
	shear modulus (G)	Hertz	1.71×10^{10}	Pa
	normal contact stiffness ($k_{1,n}$)	Burgers – Maxwell Part	2.50×10^7	N/m
Setting II: Reduced G and $k_{1,n}$	shear modulus (G)	Hertz	1.71×10^9	Pa
	normal contact stiffness ($k_{1,n}$)	Burgers – Maxwell Part	1.00×10^7	N/m



此研究中的重力加速度被設為 1.075mm/s^2 向上以模擬液體對晶粒造成的浮力，隨後上方的牆壁以每秒 0.01 的應變速率向下施壓，其中固相分率的計算模式是透過下壓高度的變化求得如下：

$$g_s = g_{s0} \frac{h_0}{h} = g_{s0} \frac{h_0}{(h_0 + vt)} \quad \text{Eq. 2.5-6}$$

其中 g_{s0} 為初始體積固相分率、 h_0 為初始試片高度、 v 為壓縮速度、 t 為時間。圖 2.5-24(a)記錄了模擬以及實驗的應力與體積固相分率的變化，能發現到 15Cu 在初期壓縮時與實驗的曲線相似，但到了固相分率到達 0.7 後應力開始上升。而 8Cu 則在一開始時應力就開始飆升偏離了實驗所得到的結果，上述後期應力偏離實驗結果的原因有很多，首先顆粒在壓縮後期顆粒之間會因為受力而出現塑性變形如圖 2.5-21(b)和(d)所示，導致應力上升速度並沒有像模擬所預測的那般快速。第二因為排水壓縮的後期大部分的液體都被排走，理論上顆粒受到液體浮力的影響會減弱，模擬所使用的重力加速度也該有所調整。最後則是 Su 等人在後續研究中發現到晶粒在後期有發生動態再結晶，導致顆粒系統出現軟化以及尺寸上的分佈變化進而導致應力上升速度沒有模擬的快。

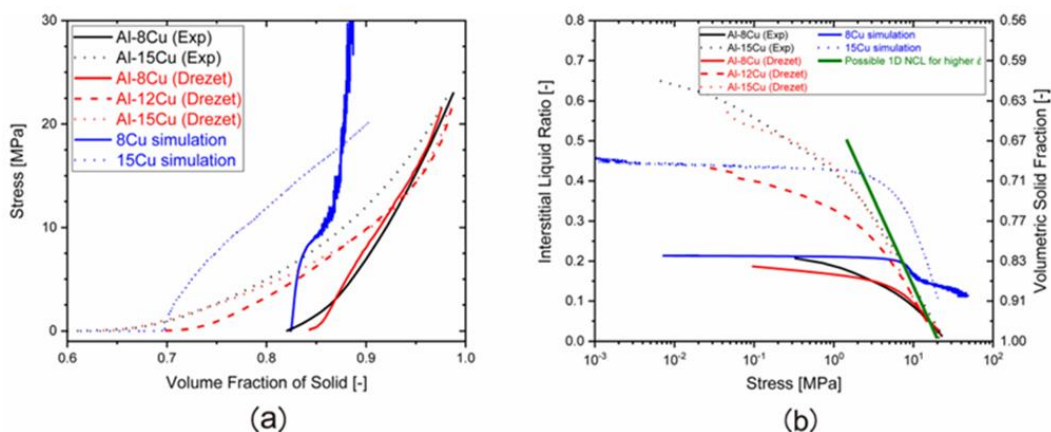


圖 2.5-24(a)應力對固相分率變化圖(b)孔隙液體分率對應力變化圖[6]。



圖 2.5-24 (b)中可以發現到液體間隙率與取對數後的應力在後期會趨近於一條直線被稱為一維的 NCL 曲線(normal compression line)，這與先前介紹的 CSL 曲線的概念類似，可以表達為：

$$e = \Gamma_{1DNCL} - \lambda \log p' \quad \text{Eq. 2.5-7}$$

根據計算斜率 $\lambda = 0.4356$ ，截距 $\Gamma_{1DNCL} = 0.5732$ ，並且跟 Altuhafi 等人的實驗數據比較發現到在相對較快的應變速率下 NCL 的截距有增加的跡象（這部分的量化跟模型中的 Burgers 接觸模型有關，可在 2.7 章中講述碰撞模型時搭配參考），並且最終都會近似於相近的斜率，且在模擬實驗中也出現部分相似的特性。



2.6 顆粒流變性質

在這一節中討論的顆粒運動行為主要討論於介觀下的顆粒，這類型的顆粒尺寸足夠大以至於布朗運動以及膠體相互作用都可忽略，在中體積固相分率下的顆粒懸浮液其顆粒交互作用主要考慮一下三種機制：摩擦、碰撞和潤滑接觸[110]。在中低體積固相分率下顆粒的運動行為幾乎不受任何約束，但當固相分率逐漸增加後顆粒的運動逐漸受到約束，當固相分率達到臨界值 g_c 後顆粒間產生連續的顆粒網路這會導致顆粒的流動行為發生變化如：形成剪切流產生層狀結構、產生剪切誘發膨脹或是發生應力重組現象。一般來說臨界固相分率大約落在 0.52 上下，但 Lun 和 Brady 等人[111, 112]分別利用快速剪切流的模擬和 Stokes 動力學模型得出可能的臨界固相分率與面心立方排列(FCC)的體積固相分率相同。而 Babic 等人[113]則認為臨界固相分率會受到剪切速率以及材料的剛性有關。而最大隨機固相分率 g_m 為另一個描述顆粒在系統的參數，其定義為當固相分率達到 g_m 時，在顆粒不變形的情況下系統將無法容納更多的顆粒，Meakin 等人[114]透過隨機分散的單顆顆粒系統得出 $g_m = 0.635$ 。由上述可知顆粒間的交互作用的往往牽涉到顆粒的性質、形狀分布、大小分佈等…，不同的顆粒性質或起始狀態，皆會影響到後續顆粒系統的變化。以下的小節相會介紹常見的顆粒交互作用以及帶來的影響。

2.6.1 顆粒間的交互作用

在顆粒間最常見的交互作用分別為顆粒與顆粒間滑移時所產生的摩擦和顆粒間的碰撞，而顆粒間的碰撞又可以簡單的分為顆粒與顆粒間的直接接觸，這類型的接觸極易受到顆粒的表面粗糙度、彈性和塑性變形的影響[115]。另一種為間接接觸，顆粒的表面間存在液體膜並沒有直接的接觸在顆粒間產生潤滑的效果[110]。

首先這裡先介紹最簡單的碰撞，假設在單一顆粒尺寸的系統中，當兩顆無初始自旋的顆粒在同一條直線上發生碰撞時，可利用牛頓碰撞定律描述質心的相對速度在碰撞後與法向向量之間的關係如 Eq. 2.6-1，其中 c_n 為初始的質心法向速度、 c'_n 則為碰後的質心法向速度而 e 為恢復係數，若碰撞為彈性碰撞則 $e = 1$ ，其餘情況下 $0 < e < 1$ 。然而在碰撞的過程中顆粒發生黏滑性的行為會使計算切線方向上的速度變得頗為麻煩，但 Foerster 等人[116]證明了碰撞後的切向速度與碰撞前的速度分量和初始顆粒自旋呈現線性相關 Eq. 2.6-2。 c_t 為初始的切向速度、 c'_t 為碰撞後的切向速度 $R\Omega$ 為等效的自旋速度 $R\Omega = R_1\omega_1 + R_2\omega_2$ ， R_i 為顆粒的半徑、 ω_i 則為初始的角速度。最後 a_i 則取決於運動性質(粘滯運動或滑移運動)。

$$c'_n = -ec_n \quad \text{Eq. 2.6-1}$$

$$c'_t = a_1c_n + a_2c_t + a_3R\Omega \quad \text{Eq. 2.6-2}$$

然而若是牽涉到更複雜的碰撞系統如三顆顆粒的碰撞系統仍然沒有公式能夠很好的表達顆粒的運動狀態，甚至牛頓定律也無法適用。主要原因是碰撞產生的彈性波在整個顆粒系統中傳播導致。但 Ancey 等人[117]證明顆粒間碰撞產生的動量交換依然發生且仍為主要的運動機制，因此牛頓定律在此複雜的碰撞系統中雖然無法完整的描述顆粒的運動行為但仍然能作為近似公式。對於持續接觸的顆粒系統，摩擦起著關鍵的作用，通常會使用庫倫定律[110]描述為 Eq. 2.6-3， S 和 N 分別代表切向和垂直方向上的接觸力而 λ 則為摩擦係數。

$$S = \lambda N \quad \text{Eq. 2.6-3}$$

接下來介紹的是間接接觸，這類型的接觸由於液體也參與進來因此也被稱為潤滑接觸。這類型的接觸其力的產生主要由擠壓液體、液體膜的剪切以及顆粒旋轉造成。Cox 等人[118]提出在穩態下擠壓造成的力為：



$$F_{sq} = \frac{3}{2} \pi \mu \frac{R^2}{\delta} \mathbf{c}_n \quad \text{Eq. 2.6-4}$$

其中 μ 為液體黏度， δ 為液體顆粒間的液體薄膜厚度， \mathbf{c}_n 為碰撞時顆粒的相對法線方向速度。而剪切所貢獻的力則為

$$F_{sh} = \pi \mu R \ln \left(\frac{\delta}{R} \right) \mathbf{c}_t \quad \text{Eq. 2.6-5}$$

其中 \mathbf{c}_t 為碰撞顆粒的相對切線方向速度。最後顆粒旋轉造成的力可寫為：

$$F_{rot} = 2 \pi \mu R^2 \ln \left(\frac{\delta}{R} \right) \mathbf{n} \times \boldsymbol{\Omega} \quad \text{Eq. 2.6-6}$$

其中 \mathbf{n} 為兩顆顆粒質心的連線向量， $\boldsymbol{\Omega}$ 為顆粒角速度，可參考圖 2.6-1。透過這幾條式子發現到在高固相分率下， δ/R 很小這會導致擁有 $\ln \left(\frac{\delta}{R} \right)$ 項的剪切力和顆粒旋轉造成的力相較於擠壓力皆可忽略不計。但與此同時 Eq. 2.6-4 計算結果會趨近於無窮大，因此實際上當顆粒間間隙小於一臨界值時，上述提到的公式將無法適用。根據 Smart 和 Leighton[115]所做的實驗表明顆粒間最小間隙的量級與顆粒的典型粗糙度 (typical size of roughness) 相當，可以透過此方法計算出最大潤滑力 [110]。

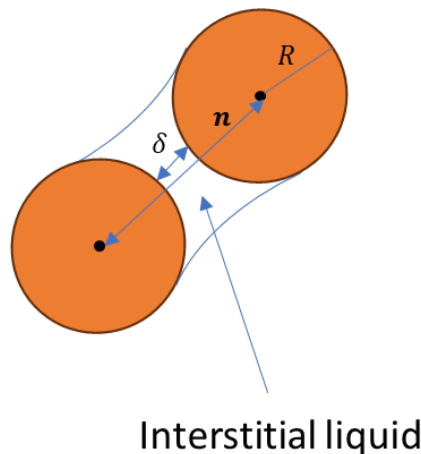


圖 2.6-1 顆粒與間隙液體示意圖。



2.6.2 顆粒流動狀態

顆粒在受力便會開始運動，很多時候我們會把一群顆粒的移動視為流體(畢竟液體很多時候也被視為一群分子在做顆粒運動)，而在流體力學中會把不同運動狀態下的流體依據雷諾數(Reynolds number)分為雜亂無序的湍流(Turbulence)和運動穩定的層流(laminar flow)。顆粒流動的狀態也是如此，不過必須討論到是否有液體參與。

首先介紹有液體參與的情況，若是顆粒流動的過程中以碰撞作為主要的交互作用則顆粒的慣性必須要足夠大以克服液體的排斥力。因此可以通過考慮顆粒的慣性(mv^2)以及正向擠壓力 Eq. 2.6-4 (通常以擠壓力開始主導潤滑力的臨界距離 ε^* 以及最小距離 ε 之間計算)的比值來進行分析：

$$Ba = \frac{4\pi}{3\ln\left(\frac{\varepsilon^*}{\varepsilon}\right)} \frac{\rho_p R^3 v^2}{\mu R^2 v} \approx \frac{1}{\ln\left(\frac{\varepsilon^*}{\varepsilon}\right)} \frac{\rho_p R^2 \dot{\gamma}}{\mu} \quad \text{Eq. 2.6-7}$$

其中相對法向速度 v 以顆粒的半徑 R 以及剪切速率 $\dot{\gamma}$ 近似 $v \approx 2R\dot{\gamma}$ 。透過 Eq. 2.6-7 計算出來的比值被稱為 Bagnold number。而在較高的固相分率中，顆粒與顆粒之間較常出現碰撞容易有應力鏈的產生，此時會傾向於比較碰撞接觸以及摩擦接觸間的大小。在持續碰撞的過程中作用於顆粒的摩擦力 S 可以被視為有效應力 N (即總體應力扣除液體所造成的貢獻)，透過修改 Eq. 2.6-7 可以得到另一組無因次參數 Coulomb number：

$$Co = \frac{\rho_p R^2 \dot{\gamma}}{S} \quad \text{Eq. 2.6-8}$$

同樣的也有人嘗試比較潤滑力與摩擦力的大小來區分顆粒狀態，這種相應的比值被稱為 Leighton number：



$$Le = \frac{\mu R \dot{\gamma}}{S \varepsilon}$$

根據上述的無因次數，可劃分 3 種顆粒交互作用中占主導地位的接觸類型：

- i. 當 $Co \ll 1$ 且 $Le \ll 1$: 摩擦接觸主導。
- ii. 當 $Co \gg 1$ 且 $Le \gg 1$: 碰撞接觸主導。
- iii. 當 $Ba \ll 1$ 且 $Le \gg 1$: 流體動力主導。

上述所說的顆粒流動狀態屬於比較極端的類型但由於時顆粒間的交互作用常發生轉換因此它們之間存在過渡區域：

- i. 當 $Co \approx 1$ 且 $Le \ll 1$ (或 $Ba \gg 1$): 摩擦-碰撞區域，此區域摩擦作用與碰撞作用競爭主導地位。
- ii. 當 $Le \approx 1$ 且 $Co \ll 1$ (或 $Ba \ll 1$): 摩擦-流體動力區域，此區域潤滑接觸和摩擦接觸競爭主導地位。
- iii. 當 $Ba \approx 1$: 流體動力-碰撞區域，此區域潤滑接觸和碰撞接觸競爭主導地位。

除了上述的幾個無因次參數外，由於懸浮液牽涉的參數眾多因此需要更多的無因次參數去描述顆粒的運動行為如：密度比、Davis 數(反映顆粒剛度與流體動力作用力的比值)，這些參數在研究流體-顆粒相互作用[119]以及顆粒-顆粒相互作用[120]非常重要並常會出現在顆粒與流體運動的方程式中。

由於顆粒懸浮液牽涉到的物理參數過多，因此有不少研究是關於排除液體只單純討論顆粒的交互作用，根據 Cruz 等人[121]的研究，他們利用 DEM 進行了二維顆粒剪切的實驗，並提出利用剪切時間(shear time)和 τ_s 以及慣性時間(Inertial time) τ_i 的比值推導了慣性數(Inertial number)來描述顆粒的運動狀態。其具體推導方式如

下：剪切時間可由剪切速率的倒式表述如 Eq. 2.6-10，而慣性時間則可由牛頓第二運動定律估算如 Eq. 2.6-11， P 為顆粒所受的壓力、 m 則為顆粒質量，且由於 Cruz 等人是以二維的情況假設顆粒因此顆粒質量 $m = \rho d^2$ ， ρ 為顆粒密度而 d 為顆粒直徑，最後相除即可得到 Eq. 2.6-12。

$$\tau_s = \frac{1}{\dot{\gamma}} \quad \text{Eq. 2.6-10}$$

$$\tau_i = \sqrt{\frac{m}{P}} \quad \text{Eq. 2.6-11}$$

$$I = \frac{\tau_i}{\tau_s} = \dot{\gamma} \sqrt{\frac{m}{P}} = \dot{\gamma} d \sqrt{\frac{\rho}{P}} \quad \text{Eq. 2.6-12}$$

Cruz 等人在他們的剪切模擬實驗中發現到顆粒的有效摩擦係數 μ^* 會隨著慣性數增加而呈現類似線性的增長如圖 2.6-2(a)而顆粒配位數則隨著慣性數增加而下降如圖 2.6-2(b)，並且當慣性數越小時，摩擦係數與配位數皆會趨近於一臨界值，這都意味著顆粒系統的機械性質隨著慣性數越小變得越來越穩定，因此這種顆粒狀態被稱為準靜態。而當慣性數增加，顆粒的機械系統則越不穩定顆粒間的交互作用開始傾向於碰撞這種顆粒狀態被視為碰撞態，而同樣的在準靜態轉向碰撞態時也存在過渡區被稱為黏性流如圖 2.6-3。Cruz 等人在其研究最後指出當慣性數在 10^{-1} 時被視為黏性流與碰撞流的轉換點，但是對於準靜態何時轉變為黏性流則沒有明確的指出。直到 Perez 等人[122]透過 DEM 進行大量的三軸壓縮模擬測試才明確劃分出當慣性數大於 2.5×10^{-3} 時顆粒系統會由準靜態轉向黏性流。

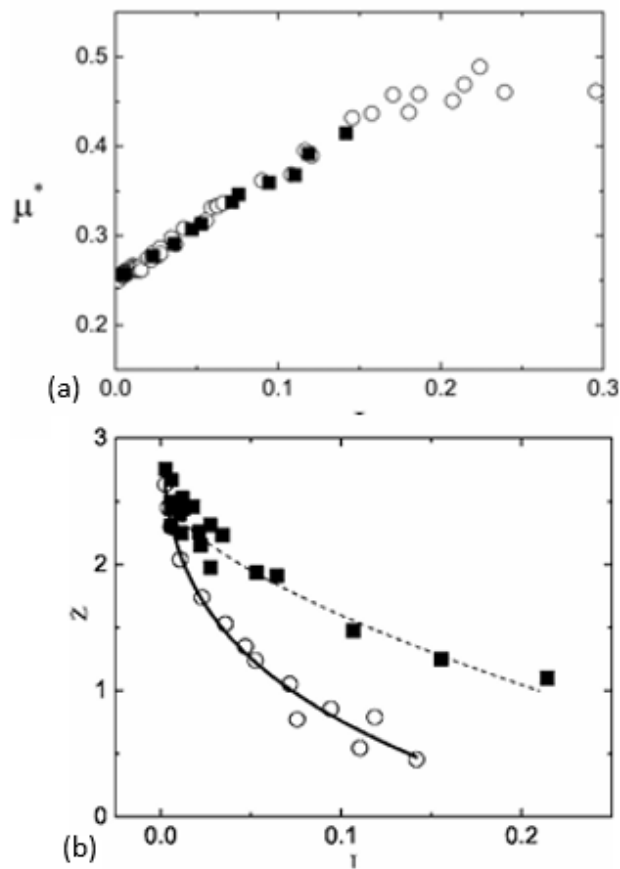


圖 2.6-2(a)為顆粒的有效摩擦係數與慣性數的變化圖(b)為配位數對慣性數的變化圖[121]。

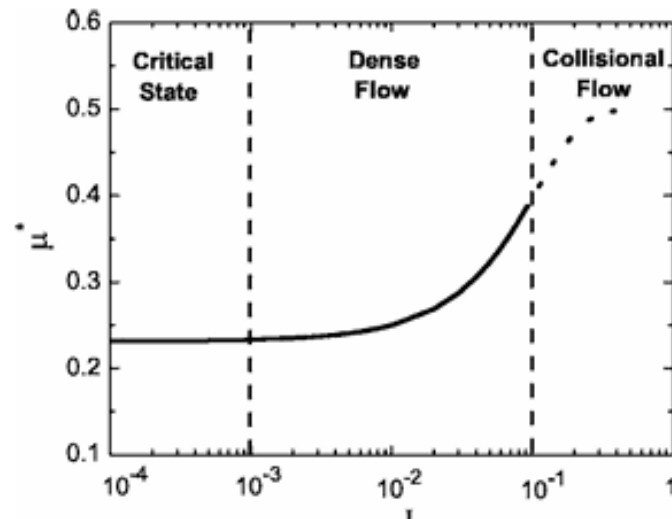


圖 2.6-3 有效摩擦係數與慣性數變化以及顆粒狀態劃分圖[121]



2.6.3 破壞準則

材料降服(yielding)是固體力學與材料科學中的核心議題之一。當材料在外力作用下產生不可逆變形時，即認為該材料已屈服。通常當材料發生屈服後是破壞發生的前兆，因此屈服常被視為材料可靠性的重要依據。不過在描述屈服之前要先討論材料內部的應力分析。

首先以簡單的二維情況來說，當材料內部應力平衡時，其應力分布如圖 2.6-4(a) 所示，產生分別在 x 和 y 方向上的應力 σ_x 和 σ_y 以及作用在 x 面上沿 y 方向的剪應力 τ_{yx} 和在 y 面上沿 x 方向的剪應力 τ_{xy} 。但若是材料被沿著對角線切除如圖 2.6-4(b) 所示，需要一應力和剪應力作用在斜面上以維持靜力平衡[123]，透過三角函數分析將各方向的應力轉換到與斜面應力方向平行可得：

$$\sigma_c = \sigma_x (c \cos \theta \cos \theta) + \sigma_y (c \sin \theta \sin \theta) + 2\tau_{xy} (c \sin \theta \cos \theta) \quad \text{Eq. 2.6-13}$$

同樣的作法將各應力轉換到與斜面的剪切方向平行：

$$\tau_c = -\sigma_x (c \cos \theta \sin \theta) + \sigma_y (c \sin \theta \cos \theta) + \tau_{xy} (c \cos \theta \cos \theta) - \tau_{xy} (c \sin \theta \sin \theta) \quad \text{Eq. 2.6-14}$$

接者透過兩倍角公式將 Eq. 2.6-13 和 Eq. 2.6-14 整理成：

$$\sigma = \frac{1}{2}(\sigma_x + \sigma_y) + \frac{1}{2}(\sigma_x - \sigma_y) \cos 2\theta + \tau_{xy} \sin 2\theta \quad \text{Eq. 2.6-15}$$

$$\tau = -\frac{1}{2}(\sigma_x - \sigma_y) \sin 2\theta + \tau_{xy} \cos 2\theta \quad \text{Eq. 2.6-16}$$

最後透過三角恆等式 $\cos^2 2\theta + \sin^2 2\theta = 1$ ，將 Eq. 2.6-15 和 Eq. 2.6-16 平方後相加：



$$\left(\sigma - \frac{\sigma_x + \sigma_y}{2}\right)^2 + \tau^2 = \left(\frac{\sigma_x - \sigma_y}{2}\right)^2$$

Eq. 2.6-17

從 Eq. 2.6-17 中可以明顯認出這是一條圓形公式，繪製於 $\sigma - \tau$ 坐標系，這種圓被稱為莫爾圓(Mohr's Circle)如圖 2.6-5 所示。莫爾圓的重要性在於其圖形化了複雜的應力與剪應力關係，同時也能透過此方法快速的尋找出材料在受力後各個方向上的主應力(principle stress)和剪切應力(shear stress)，進行整體的應力分析。

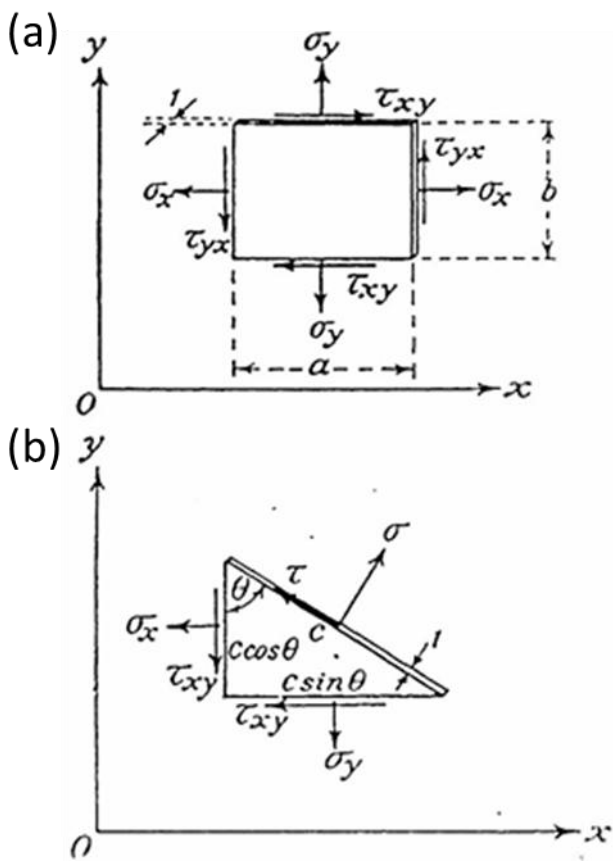


圖 2.6-4(a)二維材料平衡應力分析圖(b)切掉一邊後的二維材料平衡應力分析圖 [123]

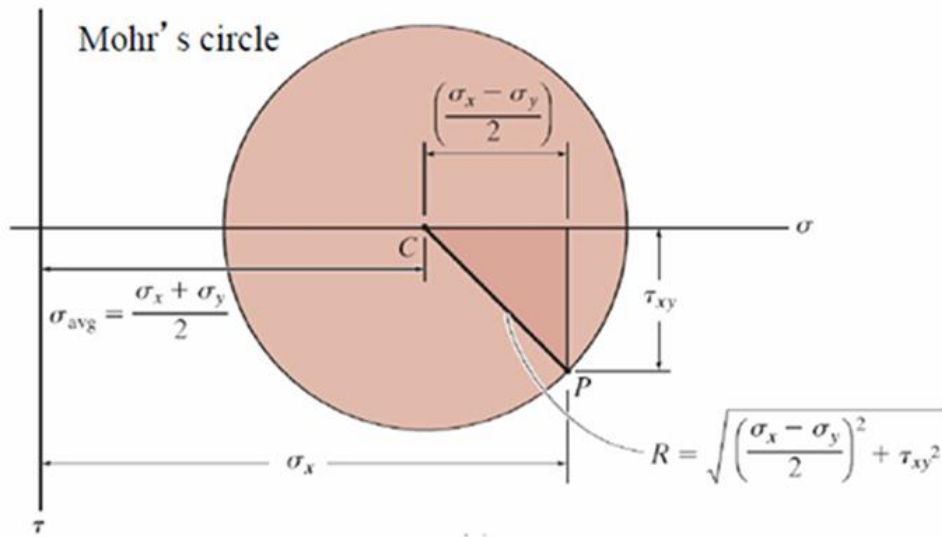


圖 2.6-5 二維莫爾圓[124]。

同樣的方式拓展到三維中如圖 2.6-6，切開的傾斜斜面單位法向向量為 (l, m, n) 面積為 A ，在這裡假定 ΔKOL 、 ΔJOK 和 ΔJOL 的面積分別為 Al 、 Am 和 An ，最後將所有的應力分別朝方向 1、方向 2、方向 3 進行三角函數的應力分析可得：

$$(\sigma - \sigma_{11})l - \sigma_{21}m - \sigma_{31}n = 0 \quad \text{Eq. 2.6-18}$$

$$-\sigma_{12}l + (\sigma - \sigma_{22})m - \sigma_{32}n = 0 \quad \text{Eq. 2.6-19}$$

$$-\sigma_{31}l + \sigma_{32}m + (\sigma - \sigma_{33})n = 0 \quad \text{Eq. 2.6-20}$$

轉換為矩陣後得到：

$$\begin{pmatrix} \sigma_{11} - \sigma & \sigma_{12} & \sigma_{13} \\ \sigma_{12} & \sigma_{22} - \sigma & \sigma_{23} \\ \sigma_{13} & \sigma_{23} & \sigma_{33} - \sigma \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l \\ m \\ n \end{pmatrix} = 0 \quad \text{Eq. 2.6-21}$$

為了解出此方程式的解左邊矩陣的行列式必須要為 0 因此可得：

$$\begin{aligned} \sigma^3 - \sigma^2(\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33}) + \sigma(\sigma_{11}\sigma_{22} + \sigma_{22}\sigma_{33} + \sigma_{33}\sigma_{11} - \sigma_{12}^2 - \sigma_{23}^2 - \sigma_{13}^2) \\ - (\sigma_{11}\sigma_{22}\sigma_{33} + 2\sigma_{12}\sigma_{23}\sigma_{13} - \sigma_{11}\sigma_{23}^2 - \sigma_{22}\sigma_{13}^2 - \sigma_{33}\sigma_{12}^2) = 0 \end{aligned} \quad \text{Eq. 2.6-22}$$

最終解出來的三個特徵值代表了三個方向的主應力 σ_1 、 σ_2 、 σ_3 ，而解出來的特

徵向量被視為主應力的主方向。因此主應力被定義為在一個定點和一個特定方向上作用的正向應力且此時剪切力為 0。同時能發現到 Eq. 2.6-22 中的係數決定了主應力的方向和大小，且不隨著座標軸的旋轉而有所改變，因而分別被稱為第一、第二、第三不變量：

$$I_1 = \sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33} \quad \text{Eq. 2.6-23}$$

$$I_2 = \sigma_{11}\sigma_{22} + \sigma_{22}\sigma_{33} + \sigma_{33}\sigma_{11} - \sigma_{12}^2 - \sigma_{23}^2 - \sigma_{13}^2 \quad \text{Eq. 2.6-24}$$

$$I_3 = \sigma_{11}\sigma_{22}\sigma_{33} + 2\sigma_{12}\sigma_{23}\sigma_{13} - \sigma_{11}\sigma_{23}^2 - \sigma_{22}\sigma_{13}^2 - \sigma_{33}\sigma_{12}^2 \quad \text{Eq. 2.6-25}$$

由於材料的破壞行為（如屈服、斷裂、剪切滑移等）不應依賴觀察者所選擇的座標系。這些不變量提供了這種與座標無關的應力描述，因此許多的破壞模型都以此為基礎建構，接下來將介紹常見的幾種破壞模型。

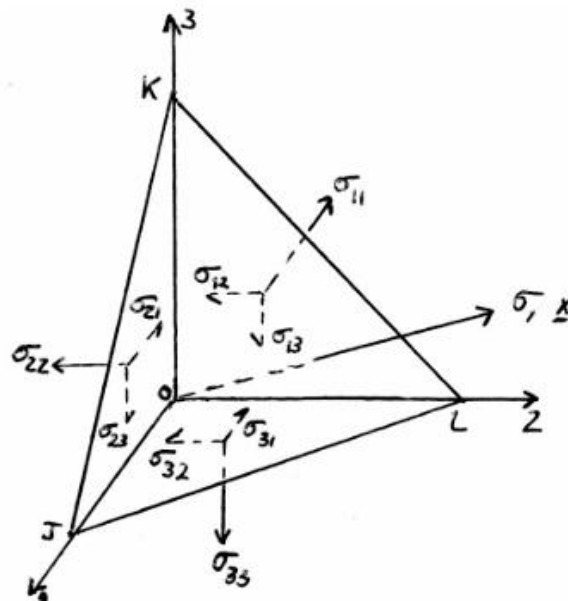


圖 2.6-6 三維材料應力分析圖[123]



首先最常見的模型為 Tresca Criterion，其概念相當簡單，材料會在最大剪應力達到一臨界值（即材料的剪切屈服強度）時開始屈服。常見於預測延性材料(金屬)塑性變形的開始，其數學形式為：

$$\tau_{max} = \frac{1}{2}(\sigma_1 - \sigma_3) \quad \text{Eq. 2.6-26}$$

其中主應力分別被定義為 $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$ 其大小被定義為：

$$\sigma_1 \geq \sigma_2 \geq \sigma_3 \quad \text{Eq. 2.6-27}$$

並且在單軸拉伸測試下，假設當發生屈服時的應力為 σ_y ，此時 $\sigma_2 = \sigma_3 = 0$ ，Tresca Criterion 可改寫為：

$$\tau_{max} = \frac{\sigma_y}{2} \quad \text{Eq. 2.6-28}$$

最後將 Eq. 2.6-28 代入 Eq. 2.6-26 可得：

$$\sigma_1 - \sigma_3 = \sigma_y \quad \text{Eq. 2.6-29}$$

另外在純剪切測試中 $\sigma_{11} = \sigma_{22} = 0$ ，透過莫爾圓計算可知 $\sigma_1 = -\sigma_3 = \tau$ ， $\sigma_2 = 0$ 。由此可知當發生屈服後 Tresca criterion 為：

$$\sigma_1 - \sigma_3 = \tau - -\tau = 2\tau = \sigma_y \quad \text{Eq. 2.6-30}$$

第二種常見的屈服模型為 Von Mises criterion，這一種模型以第二偏應力不變量 J_2 為基礎，透過 Eq. 2.6-31 轉換：

$$J_2 = \frac{1}{3}I_1^2 - I_2 \quad \text{Eq. 2.6-31}$$

這裡簡單介紹偏應力不變量 J 與應力不變量 I 的區別，在材料力學的角度中材料變

形會牽涉到體積變化以及形狀的變化，因此力量也可分為控制體積變化的靜水應力(Hydrostatic stress)以及造成剪切的偏應力(Deviatoric stress)。因此應力不變量中囊括了剪應力以及靜水應力，而偏應力不變量則排除了體積變化的影響，更注重描述剪切的行為。因此透過 Eq. 2.6-24 和 Eq. 2.6-25 代入 Eq. 2.6-31 中可得：

$$J_2 = \frac{1}{2} [(\sigma_1 - \sigma_2)^2 + (\sigma_2 - \sigma_3)^2 + (\sigma_3 - \sigma_1)^2] \quad \text{Eq. 2.6-32}$$

因此當偏應力不變量等於 Von Mises stress 的平方時，被認為材料開始出現屈服：

$$2\sigma_{VM}^2 = (\sigma_1 - \sigma_2)^2 + (\sigma_2 - \sigma_3)^2 + (\sigma_3 - \sigma_1)^2 \quad \text{Eq. 2.6-33}$$

在單軸拉伸測試下， $\sigma_1 = \sigma_y$ 且 $\sigma_2 = \sigma_3 = 0$ ，可得知：

$$\sigma_{VM} = \sigma_y \quad \text{Eq. 2.6-34}$$

而在扭轉測試中， $\sigma_1 = -\sigma_3 = \tau$ 且 $\sigma_2 = 0$ ，可得：

$$2\sigma_{VM}^2 = (\tau - 0)^2 + (0 + \tau)^2 + (-\tau - \tau)^2 = 6\tau^2 \quad \text{Eq. 2.6-35}$$

與先前的 Tresca criterion 比較能發現到兩者預測材料屈服時的起始點不同，通常來說 Tresca criterion 預測的結果更為保守，而 Von Mises criterion 會更接近現實材料的受力行為，也應用於大多情況下的模擬軟體。

第三種常見的模型是 Mohr-Coulomb failure criterion，與先前討論的兩種模型不同，此模型更常應用於顆粒材料，其核心概念為當土壤單元內所受的剪切力大於或等於最大靜摩擦力，土壤便會開始滑動造成破壞。因此於土壤力學中以破壞時的剪應力（以下稱為剪切強度） τ_f 及正向應力 σ 代表摩擦力公式中的最大靜摩擦力及正向力，公式如下：



$$\tau_f = \sigma \tan \phi \quad \text{Eq. 2.6-36}$$

其中 $\tan \phi$ 相當於摩擦係數 μ ，為土壤的內涵性質 (intrinsic property)。應力之間與摩擦有關的關係如 所示，並且可看到於緊密排列時土壤顆粒會因彼此的互鎖 (interlock) 而脫離的趨勢。

由於土壤的剪切強度源自固體顆粒骨架而與顆粒間的液體無關，因此常以有效正向應力 σ_N 取代總正向應力 σ 來表示與剪切強度 τ_f 之間的關係。有效正向應力張量 σ' 與總正向應力張量 σ 關係式如下：

$$\sigma' = \sigma - u \quad \text{Eq. 2.6-37}$$

其中 u 為間隙液體的應力張量。為了描述顆粒的應力狀態，將先前莫爾圓的概念引入，在莫爾圓上會有一組應力和剪切應力組合導致顆粒材料發生破壞。透過 Eq. 2.6-36 的概念，不考慮互鎖 (interlock) 造成的非線性影響，可得一線性方程式：

$$\tau_f = c' + \sigma' \tan \phi' \quad \text{Eq. 2.6-38}$$

τ_f 為破壞剪切應力， c' 和 ϕ' 分別為內聚截距和抗剪角 (angle of shearing resistance)，兩者僅用來定義 τ 和 σ' 線性關係的數學常數，為內涵性質。此線性方程式被稱為破壞包絡線 (failure envelope) 如圖 2.6-8(a)，值得注意的是雖然同樣的材料在不同的受力情況代表不同的莫爾圓，然而能承受最大的剪切應力無法超過材料本身的破壞剪切應力 τ_f ，因此這些莫爾圓的任一點必不會高於破壞包絡線如圖 2.6-8(b)

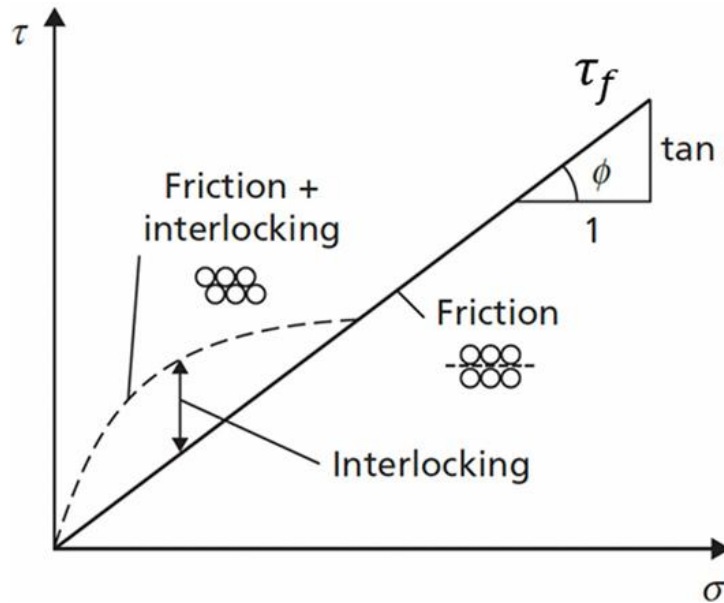


圖 2.6-7 沿滑移面的顆粒集合體之強度[125]

對於三維材料其莫爾庫倫模型如圖 2.6-8(c)所示，其描繪了 σ_1 和 σ_2 、 σ_2 和 σ_3 以及 σ_1 和 σ_3 的莫爾圓及其破壞包絡線，經計算後與抗剪角之間的關係為：

$$\sin \phi' = \frac{3M}{6 + M} \quad \text{Eq. 2.6-39}$$

其中 M 定義為 $q - p'$ 平面之斜率：

$$M = \frac{q}{p'} \quad \text{Eq. 2.6-40}$$

不過由於莫爾庫倫模型的基礎是在二維平面上，很難完整描述三維材料發生破壞時的應力分佈，因此近年來比較多學者引入了 π 平面如圖 2.6-9(b)。這種方法的好處是其清楚的表達了在方向 1、方向 2 以及方向 3 上的主應力發生破壞時的應力為何，只要顆粒材料內的主應力落在 π 平面內部材料就不會發生破壞。另外在不同的圍壓或是靜水壓下， π 平面會沿著(111)方向上移動如圖 2.6-9(a)所示。在未來進行真實三軸壓縮這種更複雜的應力環境，能更清楚的表達破壞時的顆粒應力分佈情況。

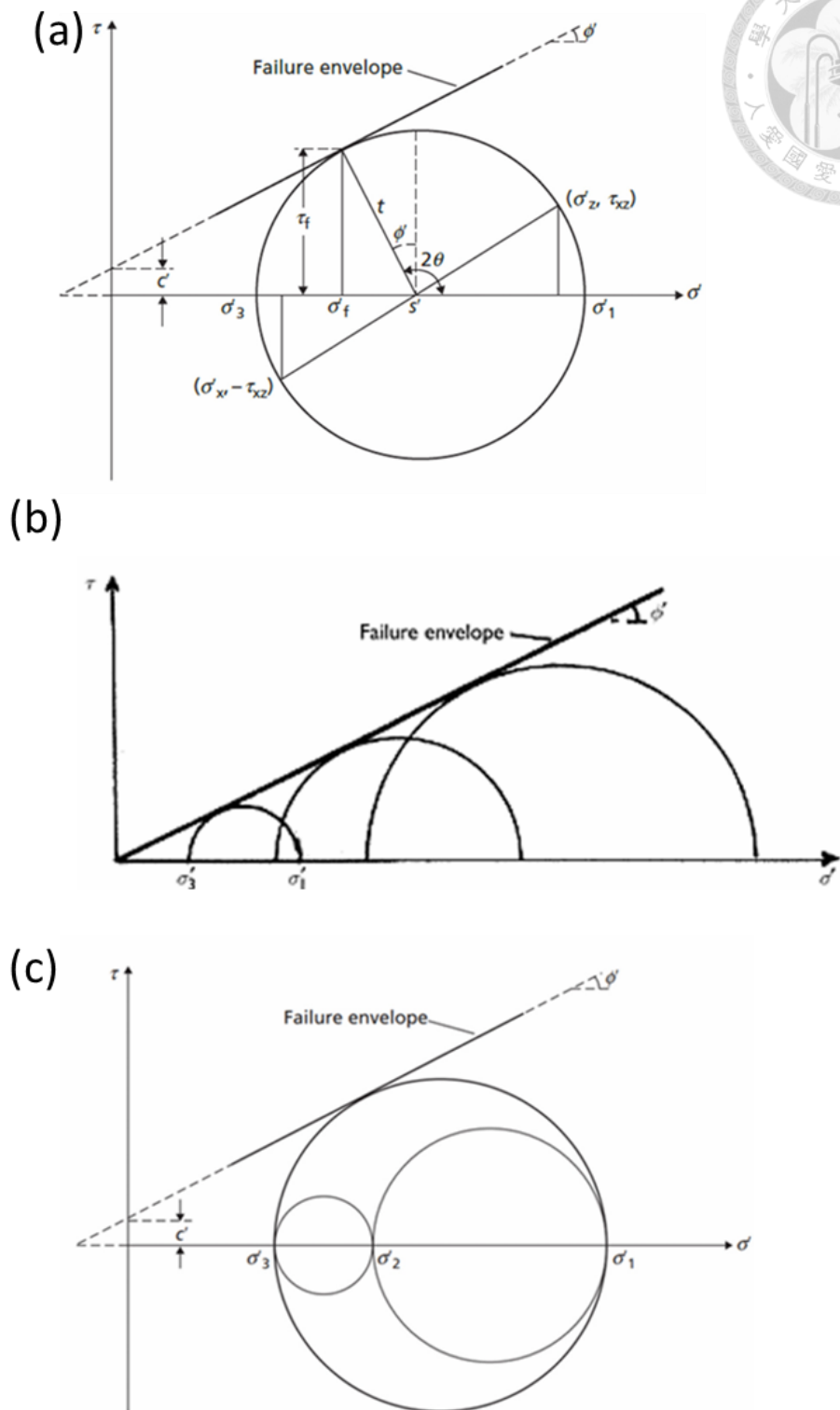


圖 2.6-8(a)二維材料的莫爾庫倫破壞模型[125];(b)不同應力狀態下的莫爾破壞圓 [125];(c)三維材料的莫爾庫倫破壞模型[125]。

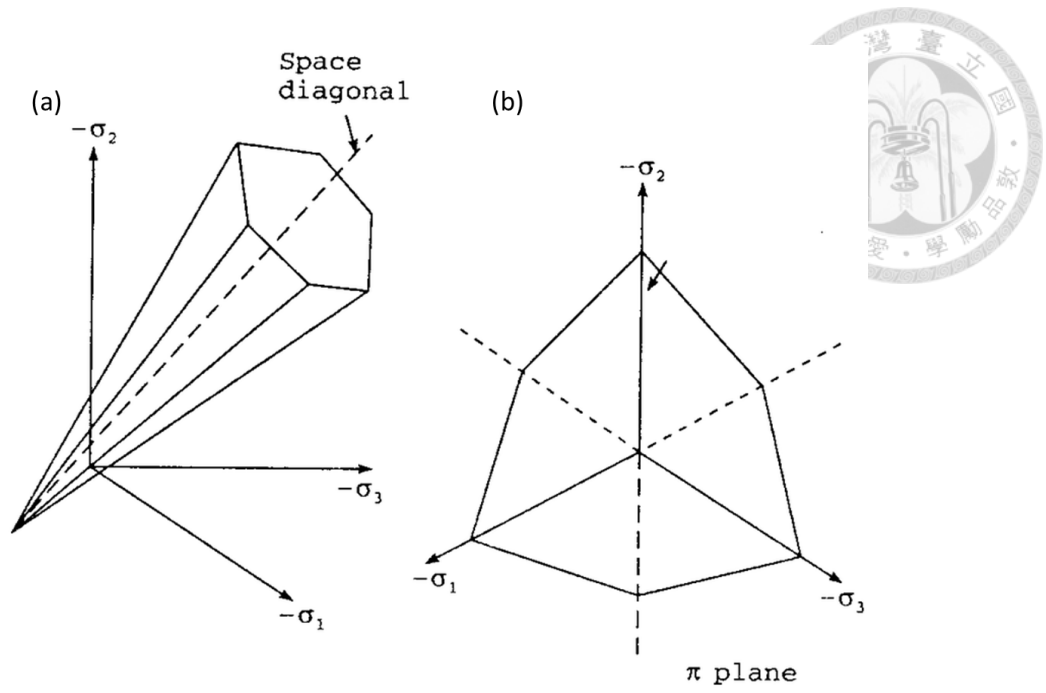


圖 2.6-9 (a)莫爾庫倫破壞模型在 3D 主應力空間下的分佈[126]；(b)莫爾庫倫破壞模型的 π 平面[126]



2.7 離散元素法

2.7.1 離散元素法在半固態合金上的應用

在先前的 2.5.2 章中介紹過枝晶接觸點 g_s^{coh} ，在凝固過程中若是固相分率超過枝晶接觸點，半固態材料開始俱有明顯的剪切、壓縮和抗拉強度通會被視為等效固體，而在在低於枝晶接觸點的情況下由於剪切強度低且增長緩慢被視為等效液體。

過去常見的模擬方法有諸如；有限元素法(FEM)、有限差分法(FDM)等，但這些方法較適合模擬單相或是連續的材料，主要應用於低固相分率的半固態合金($10\% < g_s < 55\%$)的等效流體建模以及高固相分率($g_s^{coh} < g_s < 99\%$)的等效固體建模。但上述的方法在對於中等固相分率($g_s^{coh} < g_s < 95\%$)中無法模擬晶粒與晶粒和晶粒與液體之間的交互作用。不過在 2.5.1 節中介紹 Karch 博士所設計的單軸壓縮搭配臨場同步輻射 X 光實驗，在晶粒壓縮的過程中整體顆粒的形狀以及體積並沒有發生太大的變化，晶粒具有準剛性的性質，類似於岩石土壤顆粒，這也促使不少學者[2, 5, 127]嘗試利用土壤力學中常用的數值模擬方法離散元素法(DEM)來模擬晶粒間的交互作用。

離散元素法為 Cundall 博士於 1971 年提出的數值分析方法[128]，將不連續介質視為大量微小的離散元素並於特定的邊界條件下計算離散元素間的力和位移，進而推導出整體離散元的運動行為。在過去由於離散元素法是一個非常耗費計算資源的方法，因此大多半固態合金的流變模擬僅限於二維尺度。例如：Yuan 等人[5]透過利用細胞自動機製造了二維的樹枝狀等軸晶體，並進行剪切測試模擬並發現到剪切強度的增加代表剪切誘發膨脹的開始，另外 Su 等人[2]利用二維離散元素法耦合晶格波茲曼法模擬出了臨場實驗中晶粒與液體間的流變行為。而隨著電腦

計算能力的進步，Su 等人[6]也成功創建出三維的排水壓縮模型，並以臨界土壤力學解釋了部分的顆粒運動。因此本次研究將延續利用離散元素法軟體 PFC 進行三維的三軸壓縮測試模擬，以更好的理解高溫半固態合金的變形。





2.7.2 離散元素法原理

Cundall 博士對於離散元素法給予了以下假設：

1. 離散元素的基本為二維的圓形以及三維的球形
2. 離散元素被視為剛體，根據文獻[129]DEM 所使用的接觸模型可以分為硬接觸和軟接觸，PFC3D 中允許顆粒間的軟接觸存在極小的重疊，因此接觸模型中存在阻尼器。
3. 離散元素法主要透過牛頓第二定律並根據離散元素的物理屬性(密度、剪切模數、剛度等)去計算出離散元素當下以及未來離散元素的運動狀態。
4. 離散元素法之間可透過鍵結模型將顆粒相互網綁在一起模擬聚結的效果。

圖 2.7-1 為 PFC6.0 的程式運行流程圖，在初始化階段需決定模型的邊界條件、離散元的大小及形狀、碰撞模型以及各項物理參數，並設定求解條件。隨後程式會以迴圈的方式不斷運行，計算每個時間步長(timestep)下的顆粒運動狀態直到滿足求解條件為止。

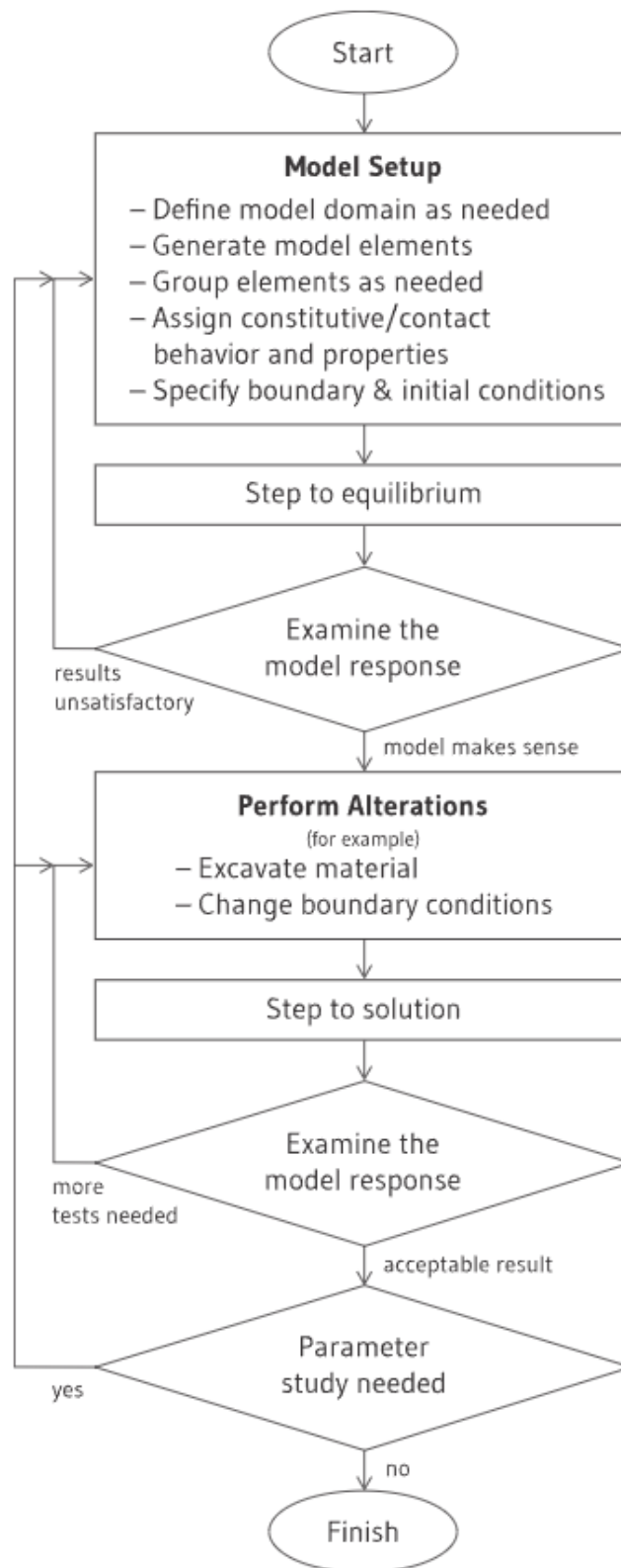


圖 2.7-1 PFC 程式流程圖[130]

如剛剛上一段所說，PFC 計算顆粒的方式是透過迴圈不斷的累積達成，每個迴



圈又可以被細分出獨立的節點用以標記出單次運算中的計算優先順序如表 2.7-1 所示。接下來將大致介紹每個節點的計算事件：

1. 決定時間步長(Timestep Determination)：離散元素法依賴於透過迴圈的累積來計算不同時間狀態下的顆粒運動狀態，因此單個迴圈又可以被視為一個微小的時間步長(timestep)，透過不斷的累積形成連續的時間及運動狀態(類似積分的概念)。時間步長的計算方法參考 Chung 等人[131]的算法：

$$\Delta t_{critical} = \sqrt{\frac{m_i}{k_T}} \quad (\text{translation motion}) \quad \text{Eq. 2.7-1}$$

$$\Delta t_{critical} = \sqrt{\frac{I_i}{k_R}} \quad (\text{rotational motion}) \quad \text{Eq. 2.7-2}$$

其中 m_i 和 I_i 分別為顆粒的質量和轉動慣量，而 k_T 和 k_R 為平行剛度和旋轉彈性係數可表達為：

$$k_T = (k_n - k_t)u_q^2 + k_t \quad \text{Eq. 2.7-3}$$

$$k_R = r_i^2 k_t (1 - u_q^2) \quad \text{Eq. 2.7-4}$$

而 k_n 和 k_t 則為垂直和切線方向上的碰撞彈簧係數，其中 r_i 代表顆粒 i 的半徑、 q 為自由度($q = 1,2,3$)，而 u_q 為在單位碰撞方向上第 q 分量。以本次實驗所使用的 Hertz 碰撞模型為例， k_n 和 k_t 的計算方法如下：

$$k_n = \frac{2G \left[\frac{3(1-\nu) \cdot r^* F_{n,i,j}}{4G} \right]^{\frac{1}{3}}}{(1-\nu)} \quad \text{Eq. 2.7-5}$$

$$k_t = \frac{2G \left[6(1-\nu) \cdot G^2 r^* F_{n,i,j} \right]^{\frac{1}{3}}}{(2-\nu)} \quad \text{Eq. 2.7-6}$$

其中 $F_{n,i,j}$ 為顆粒 i 和 j 之間的垂直碰撞力、 G 為剪切模數、 ν 為蒲松比而 r^* 為兩顆粒的等效直徑：

$$r^* = \frac{r_i r_j}{r_i + r_j}$$



r_i 和 r_j 分別代表顆粒的半徑。最終我們將各個方向上的碰撞計算完成後，取最小的時間步長並且乘上0.2即是本次模擬所使用的時間步長。從上述公式中能發現到時間步長主要是由顆粒的材料(密度)以及剛度控制，不過在PFC中除了上述兩種常見的變因外，顆粒的大小、固相分率、邊界的大小、顆粒系統當下的運動狀態其實都會影響到時間步長的大小。

2. 運動定律(Law of Motion)：離散元素法最主要是利用牛頓定律，利用當下的受力狀態計算出顆粒 i 當下的加速度($\ddot{x}_i(t)$)與角加速度($\ddot{\theta}_i(t)$)[132]：

$$\ddot{x}_i(t) = \frac{1}{m_i} \sum_{n=1}^{N_{c,i}} F_{c,n} + \frac{1}{m_i} F_{d,i} - g \quad \text{Eq. 2.7-8}$$

$$\ddot{\theta}_i(t) = \frac{1}{I_i} \sum_{n=1}^{N_{c,i}} [(x_{c,n} - x_i) \times F_{c,n} + M_{c,i}] + \frac{1}{I_i} M_{d,i} \quad \text{Eq. 2.7-9}$$

其中 m_i 、 I_i 、 x_i 分別為顆粒的質量、轉動慣量和質心位置； $F_{c,n}$ 為作用於粒子表面 $x_{c,n}$ 的第 n 個接觸力； $F_{d,i}$ 和 $M_{d,i}$ 為流體阻力和流體力矩； g 為重力。

3. 模擬時間更新(Advanced Time):在計算完各顆粒的加速度以及角加速度後透過牛頓定律和 Verlet 時間積分法推導出半個時間步長($t + \frac{\Delta t}{2}$)後的速度(\dot{x}_i)和角速度($\dot{\theta}_i$)以及一個時間步長($t + \Delta t$)後的位移(x_i)和角位移(θ_i)[133]

$$\dot{x}_i\left(t + \frac{\Delta t}{2}\right) = \dot{x}_i(t) + \frac{1}{2} \ddot{x}_i(t) \Delta t \quad \text{Eq. 2.7-10}$$

$$x_i(t + \Delta t) = x_i(t) + \dot{x}_i\left(t + \frac{\Delta t}{2}\right) \Delta t \quad \text{Eq. 2.7-11}$$



$$\dot{\theta}_i\left(t + \frac{\Delta t}{2}\right) = \dot{\theta}_i(t) + \frac{1}{2}\ddot{\theta}_i(t)\Delta t \quad \text{Eq. 2.7-12}$$

$$\theta_i(t + \Delta t) = \theta_i(t) + \dot{\theta}_i\left(t + \frac{\Delta t}{2}\right)\Delta t \quad \text{Eq. 2.7-13}$$

透過上述式子即可求出下一個時間步長下的顆粒物理狀態。不過上述的計算方法只適用於球形，若是在多球團塊中，基於其形狀不對稱性，需要透過四元數(Quaternion)對當中的旋轉運動進行修改：

$$q = q_0 + q_i i + q_j j + q_k k \quad \text{Eq. 2.7-14}$$

其中 i 、 j 、 k 為基底元素， q_0 為實部，且基底元素的乘基有以下假設：

$$i^2 = j^2 = k^2 = ijk = -1 \quad \text{Eq. 2.7-15}$$

$$ij = k \quad \text{Eq. 2.7-16}$$

$$jk = i \quad \text{Eq. 2.7-17}$$

$$ki = j \quad \text{Eq. 2.7-18}$$

其中 Buss 等人[134]提出了使用二階擴展法計算，利用角速度的泰勒展開式為基礎計算，首先從角動量出發可寫成：

$$\boldsymbol{\omega}^{(t)} = \mathbf{I}^{(t)-1} \mathbf{L}^{(t)} \quad \text{Eq. 2.7-19}$$

其中 $\boldsymbol{\omega}^{(t)}$ 為 t 秒時的角速度、 $\mathbf{L}^{(t)}$ 為角動量而 $\mathbf{I}^{(t)-1}$ 為 t 秒時的倒轉動慣性張量：

$$\mathbf{I}^{(t)-1} = q_c \mathbf{J}^{(-1)} q_c^* \quad \text{Eq. 2.7-20}$$

其中 \mathbf{J} 為主慣性矩(principal moments of inertia)，而透過將 Eq. 2.7-19 對時間微分即可得到角加速度：

$$\dot{\boldsymbol{\omega}}^{(t)} = q_c \mathbf{J}^{(-1)} q_c^* (\dot{\mathbf{L}}^{(t)} - \boldsymbol{\omega}^{(t)} \times \mathbf{L}^{(t)}) \quad \text{Eq. 2.7-21}$$

而一個 timestep 的平均角速度 $\bar{\boldsymbol{\omega}}$ 為：



$$\bar{\omega}^{(t)} = \omega^{(t)} + \dot{\omega}^{(t)} \frac{\Delta t}{2} + (\dot{\omega}^{(t)} \times \omega^{(t)}) \frac{\Delta t^2}{12} \quad \text{Eq. 2.7-22}$$

隨後我們將得到的平均角速度 $\bar{\omega}$ 代入 $\theta = \bar{\omega} \Delta t$ ，即可得到多球團塊的旋轉角度，最後可得旋轉後的四元數：

$$q_c^{t+\Delta t} = \left(\cos\left(\frac{\theta}{2}\right) + \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \frac{\bar{\omega}}{\|\bar{\omega}\|} \right) q_c \quad \text{Eq. 2.7-23}$$

將得到的新四元數代回 Eq. 2.7-19 即可得到新的角速度：

$$\omega^{(t+\Delta t)} = q_c^{(t+\Delta t)} J^{(-1)} q_c^{(t+\Delta t)*} L^{(t)} \quad \text{Eq. 2.7-24}$$

另外一種是使用 Johnson 等人[135]的等人的四階擴展法，首先將四元數對時間微分：

$$\dot{q}_c = \frac{1}{2} \omega q_c \quad \text{Eq. 2.7-25}$$

隨後將 Eq. 2.7-19 和 Eq. 2.7-20 代入及可得：

$$\dot{q}_c = \frac{1}{2} (q_c J^{(-1)} q_c^* L^{(t)}) q_c \quad \text{Eq. 2.7-26}$$

透過使用四階 Runge-Kuttaz 法可得到：

$$q_c^{t+\Delta t} = q_c^t + \frac{\Delta t}{6} (k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4) \quad \text{Eq. 2.7-27}$$

其中四元數 k_1 可得：

$$k_1 = \frac{1}{2} (q_c J^{(-1)} q_c^* L^{(t)}) q_c \quad \text{Eq. 2.7-28}$$

隨後我們透過中間值計算可得：

$$q_{c1} = \frac{1}{2} \left(q_c^{(t)} + k_1 \frac{\Delta t}{2} \right) q_c \quad \text{Eq. 2.7-29}$$

而四元數 k_2 ：



Eq. 2.7-30

$$k_2 = \frac{1}{2} (q_{c1} J^{(-1)} q_{c1}^* L^{(t)}) q_{c1}$$

而中間值可得：

$$q_{c2} = \frac{1}{2} \left(q_c^{(t)} + k_2 \frac{\Delta t}{2} \right) q_c$$

Eq. 2.7-31

而隨後的 k_3 和 k_4 也是一樣的算法，最後將完整的 Eq. 2.7-27 代入 Eq. 2.7-24，就能得到下一個 timestep 的角速度。通常來說 PFC6.0 可以以 clump order 指令決定使用哪個算法，但是若沒指定，其默認的算法為四階擴展法為主。

4. 碰撞偵測(Contact Detection): 根據當下的離散元素狀態，新增新的碰撞以及刪除不合理的碰撞。
5. 力與位移定律(Force-Displacement Law): 根據設定好的碰撞模型、參數以及步驟 4 決定的碰撞分佈，計算各碰撞間對顆粒造成的力和力矩。

表 2.7-1 單運算週期中各個節點的操作順序[130]

Cycle Point	Cycle Operation
-10	Validate the data structures
0	Determine a stable timestep
10	Equations of motion (or thermal bodies update)
15	Body coupling between processes
20	Increment time
30	Update the cell space
35	Create/delete contacts
40	Force-Displacement law (or thermal contact update)
42	Accumulate deterministic quantities
45	Contact coupling between processes
60	Second pass of equations of motion
70	Thermal calculations
80	Fluid calculations



2.7.3 離散元素法形狀設計

在 PFC 當中的離散元有以下幾種默認的形態：

1. 球(Balls)：2D 為扁薄的圓盤形、3D 為球體，可依據運動方程式以及球的密度和尺寸可以計算其位移以及滾動。
2. 牆(Walls)：2D 時為線、3D 為平面。通常做為開發者選定的邊界條件。
3. 團塊(Clumps)：為多個球(pebbles)組合在一起，通常應用於模擬非正球形顆粒的運動。
4. 剛性塊(Rigid blocks (rblocks))：2D 為多邊形、3D 為多面體。

在離散元素法中，離散元形狀的微小變化很容易影響到後續離散元素法的計算，例如球形顆粒團由於很容易排列成 FCC 的最密堆積結構，具有較準確的準固態行為且在本次的研究中透過顆粒膨脹法也發現到高球度的顆粒越容易堆疊出高固相分率系統。不過由於現實生活中顆粒很少出現正球形，因此多數離散元素法的模擬中會使用多球團塊製造非球形顆粒[6, 136-138]，不過此方法在更高的分率下(>80%)下不適用，由於在高固相分率下顆粒的形狀偏離球體，且有特定的排列位置，因此像是 Su 等人[6]透過 PFC 內建的 Voronoi tessellation 指令切割出特定的剛性塊來滿足要求，不過此種生成方法由於剛性塊表面平滑，Su 等人在後續的模擬中發現到模擬顆粒出現非物理性的震動，因此其他學者則是透過第三方軟體諸如：Neper、CAD 等方式建立不規則顆粒後以此為模板組成多球團塊如圖 2.7-2 以增加在模擬壓縮時的穩定性[139-142]。

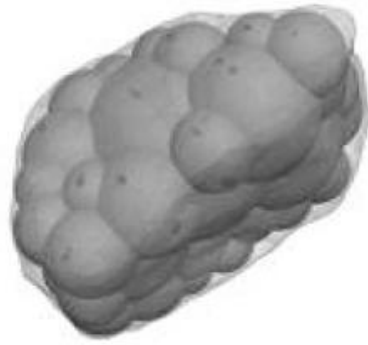


圖 2.7-2 透過多球團塊擬和第三方軟體建構出顆粒模型[139]

另外近幾年由於電腦科學的進步，其他學者[143, 144]嘗試將耦合 FEM 與 DEM，以模擬顆粒與邊界發生碰撞後邊界發生變形的行為。另外陳孟淳學姊也在未來工作中提過透過 FEM 模擬顆粒碰撞後發生形變得物理現象。不過以上的想法在 PFC 中都會面臨沒有 GPU 加速導致平行運算效率極低的問題，因此有其他學者[145-147]嘗試利用 GBM 模型建模，其基本的想法如下：

1. 透過第三方軟體創建出塊體模型如圖 2.7-3(a)
2. 隨後將塊體灌入 PFC 中進行分組如圖 2.7-3(b)
3. 接著將基礎的離散元元素灌入塊體中(通常為球顆粒)
4. 透過鍵結模型(bonding model)組合在一起如圖 2.7-3(c)

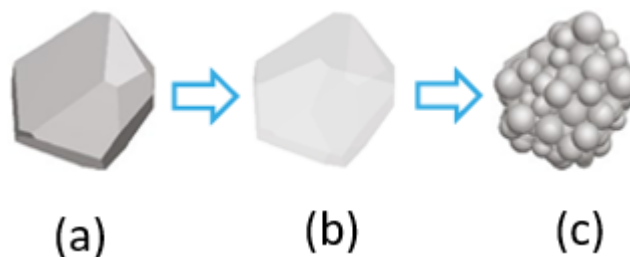


圖 2.7-3 GBM 模型建模流程圖[147]

這種模型的優點在於塊體是由顆粒組成，並結合 PFC 中內建的碰撞模型，因此可以將塊體作為單位進行分組。塊體之間的運動行為可透過其他碰撞模型計算，同時塊體內部的顆粒則能透過基本的離散元素與鍵結模型，在一定程度上模擬顆粒的

變形行為。這樣的做法可避免依賴 GPU 進行平行運算，大幅縮短計算時間。然而其缺點是由於碰撞模型本身較為複雜，對顆粒數量的配置有嚴格限制。





2.7.4 接觸模型

在離散元素法中接觸模型的設定是相當重要的，它透過力與位移定律決定了顆粒在發生碰撞後的加速度、速度等物理量進而影響後續顆粒的運動過程，一般來說接觸模型主要由彈簧(spring)、阻尼器(dashpot)、滑移元件(slides)組成。這裡將介紹常見的的線性接觸模型、Hertz 接觸模型、Burgers 接觸模型。

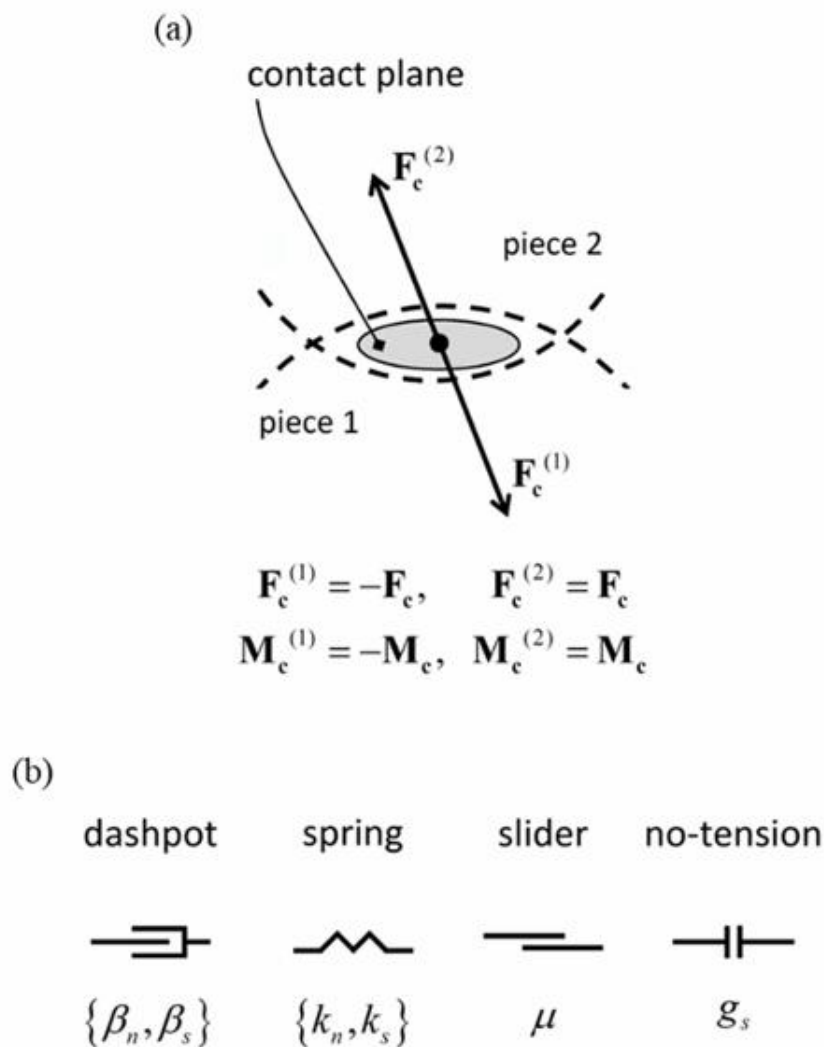


圖 2.7-4 (a) 接觸於兩離散元素上的內力及力矩，(b)與流變相關的元件[130]



1. 線性碰撞模型：

線性碰撞模型是 PFC 中最簡單的模型，在垂直和切線方向上各由一組相互並聯的彈簧以及阻尼器組合而成，由於此處彈簧遵守虎克定律，因此彈簧力與位移成正比。另外在切線方向上設有滑移元件以模擬顆粒間在切線方向上滑移時的摩擦力，完整的線性模型元件示意於圖 2.7-5，其中 g_s 代表此處不存在張力。

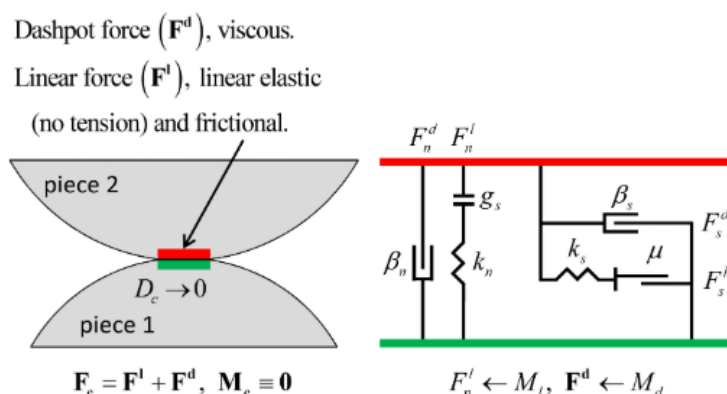


圖 2.7-5 線性模型[130]

表 2.7-2 線性接觸模型之參數

參數符號	參數描述	單位
k_n	法向彈簧係數	N/m
k_s	切向彈簧係數	N/m
μ	摩擦係數	-
β_n	法向臨界阻尼比	-
β_s	切向臨界阻尼比	-
M_l	更新正向力模式	-
M_d	阻尼模式	-

線性模型提供的接觸力主要由彈簧力和阻尼力組合，兩力不提供力矩且在法向(n)和切向(s)的力分別為：

$$F_c = F^l + F^d, \quad M_c \equiv 0 \quad \text{Eq. 2.7-32}$$

$$F^l = -F_n^l \hat{n}_c + F_s^l \quad \text{Eq. 2.7-33}$$

$$F^d = -F_n^d \hat{n}_c + F_s^d \quad \text{Eq. 2.7-34}$$



在線性模型中垂直方向上的計算有兩種模式，在絕對模式下($M_c = 0$)彈簧力與表面間隙 g_s 相關，而在累加模式下($M_c = 1$)則與法向位移增加量 $\Delta\delta_n$ 相關。而法向彈簧的有效彈性係數可視為將兩離散元間的彈簧串聯在一起。整體計算方法如下，其中兩離散元的法向彈性係數分別為 $k_n^{(1)}$ 及 $k_n^{(2)}$

$$F_n^l = \begin{cases} \begin{cases} k_n g_s, & g_s < 0 \\ 0, & \text{otherwise} \end{cases}, & M_l = 0 \\ \min((F_n^l)_0 + k_n \Delta\delta_n, 0), & M_l = 1 \end{cases} \quad \text{Eq. 2.7-35}$$

$$\frac{1}{k_n} = \frac{1}{k_n^{(1)}} + \frac{1}{k_n^{(2)}} \quad \text{Eq. 2.7-36}$$

而在切線方向的部分，則會分為兩個部分，一個部分為小於最大靜摩擦力 F_s^μ ，另一部分為大於靜摩擦力以及根據切向位移增量 $\Delta\delta_s$ 的累加之動摩擦狀態，累加起始於接觸開始發生時，此時 F_s^l 及 $\Delta\delta_s$ 皆為 0。同樣的切線方向上的有效彈簧係數也可視為將兩離散元間的彈簧串聯在一起，整體計算如下：

$$F_s^* = (F_s^l)_0 - k_s \Delta\delta_s \quad \text{Eq. 2.7-37}$$

$$\frac{1}{k_s} = \frac{1}{k_s^{(1)}} + \frac{1}{k_s^{(2)}} \quad \text{Eq. 2.7-38}$$

$$F_s^\mu = -\mu F_n^l \quad \text{Eq. 2.7-39}$$

$$F_s^l = \begin{cases} F_s^*, & \|F_s^*\| \leq F_s^\mu \\ F_s^\mu (F_s^* / \|F_s^*\|), & \text{otherwise} \end{cases} \quad \text{Eq. 2.7-40}$$

其中 $(F_s^l)_0$ 為一開始接觸後的切向力。

而法向方向的阻尼力 F_n^d 會假設阻尼力 F^* 與速度成正比；若模式為 no-tension normal 則從 F^* 與正向彈簧力 F_n^l 二者中取小。最後為了簡化碰撞上的計算，將兩離散元各自的質量轉換為有效慣性質量 m_c (Eq. 2.7-41)，計算方法如下：



$$m_c = \begin{cases} \frac{m^{(1)}m^{(2)}}{m^{(1)} + m^{(2)}}, & \text{sphere - sphere} \\ m^{(1)}, & \text{sphere - wall} \end{cases} \quad \text{Eq. 2.7-41}$$

$$F_n^d = \begin{cases} F^*, M_d = \{0,2\}(\text{full normal}) \\ \min(F^*, -F_n^l), M_d = \{1,3\}(\text{no tension normal}) \end{cases} \quad \text{Eq. 2.7-42}$$

$$F^* = c\delta_n = (2\beta_n\sqrt{m_c k_n})\delta_n \quad \text{Eq. 2.7-43}$$

在切線方向上的阻尼力 F_s^d 計算如下，其中 s 代表是否滑動(阻尼力是否超過最大摩擦力)，也可透過調控 M_d 調整是否滑動。

$$F_s^d = \begin{cases} (2\beta_n\sqrt{m_c k_n})\delta_n, & s = \text{false or } M_d = \{0,1\}(\text{full shear}) \\ 0, & s = \text{true and } M_d = \{2,3\}(\text{slip - cut}) \end{cases} \quad \text{Eq. 2.7-44}$$

2. Hertz 接觸模型

Hertz 接觸模型根據 Mindlin 和 Deresiewicz 理論將物件之形狀與彈性材料特性納入力與位移計算，並推導出法向彈簧的彈性係數 k_n 正比於 $\sqrt{\delta_n}$ 而切向彈簧的彈性係數 k_s 正比於 $\sqrt[3]{F_n^h}$ 。圖 2.7-6 為 Hertz 模型的元件示意圖，而相關參數列於表 2.7-3，其中 g_c 代表此處無張力。

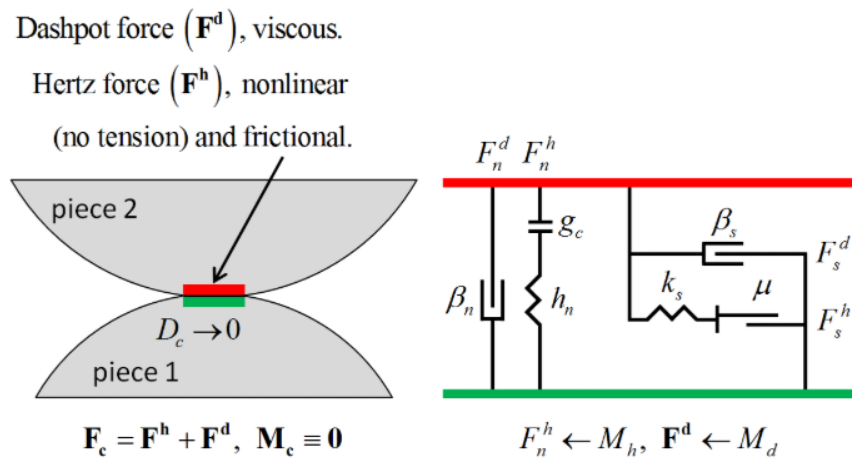


圖 2.7-6 Hertz 模型示意圖[130]

表 2.7-3 Hertz 接觸模型相較線性接觸模型新增之參數

參數符號	參數描述	單位
------	------	----

h_n	法向赫茲係數	$\text{N} \cdot \text{m}^{2/3}$
μ	摩擦係數	-
$\langle G \rangle$	有效剪切模數	Pa
$\langle R \rangle$	接觸半徑	m
$\langle \nu \rangle$	蒲松比	-

在 Hertz 模型的情況下，接觸力改為非線性彈簧力 F^h 與阻尼力組合，兩力皆不提供力矩且各分為垂直(n)與切向(s)

$$F_c = F^h + F^d, \quad M_c \equiv 0 \quad \text{Eq. 2.7-45}$$

$$F^l = -F_n^h \hat{n}_c + F_s^h \quad \text{Eq. 2.7-46}$$

$$F^d = -F_n^d \hat{n}_c + F_s^d \quad \text{Eq. 2.7-47}$$

正向非線性彈簧力 F_n^h 可用法向彈性係數 k_n 計算(Eq. 2.7-50)，不過在納入材料及形狀特性後，彈性係數如先前所說與 $\sqrt{\delta_n}$ 成正比(Eq. 2.7-48)，最終 F_n^h 與 δ_n 不在成線性關係。

$$k_n = \frac{2\langle G \rangle \sqrt{2\tilde{R}}}{3(1 - \langle \nu \rangle)} \delta_n^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq. 2.7-48}$$

$$h_n = \frac{2\langle G \rangle \sqrt{2\tilde{R}}}{3(1 - \langle \nu \rangle)} \quad \text{Eq. 2.7-49}$$

$$F_n^h = \begin{cases} -h_n \delta_n^{\frac{3}{2}} = -k_n \delta_n, & \delta_n > 0.0 \\ 0.0, & \text{otherwise} \end{cases} \quad \text{Eq. 2.7-50}$$

其中 $\langle G \rangle$ 為剪切模數、 \tilde{R} 為接觸半徑， ν 則為蒲松比。

而切線方向上的彈簧力 F_s^h 與 Eq. 2.7-40 相似，需同時討論超過最大靜摩擦力 (Eq. 2.7-53) 以及超過最大靜摩擦力後隨切向位移增量 $\Delta\delta_s$ 累加之動摩擦狀態 (Eq. 2.7-51)，但需將形狀和材料特性考慮到切向彈性係數 (Eq. 2.7-52)：

$$F_s^* = (F_s^h)_0 + k_s \Delta\delta_s \quad \text{Eq. 2.7-51}$$



$$k_n = \left(\frac{2(3G^2(1-\nu)R)^{\frac{1}{3}}}{2-\nu} \right) |F_n^h|^{\frac{1}{3}} \quad \text{Eq. 2.7-52}$$

$$F_s^\mu = \mu F_n^h \quad \text{Eq. 2.7-53}$$

$$F_s^h = \begin{cases} F_s^*, & \|F_s^*\| \leq F_s^\mu \\ F_s^\mu (F_s^*/\|F_s^*\|), & \text{otherwise} \end{cases} \quad \text{Eq. 2.7-54}$$

正向和切向阻尼力 F_n^d 和 F_s^d 類似於 Eq. 2.7-42 以及 Eq. 2.7-44，一樣考慮了形狀與彈性材料的特性：

$$F_n^d = \begin{cases} F^*, M_d = \{0,2\}(\text{full normal}) \\ \min(F^*, -F_n^l), M_d = \{1,3\}(\text{no tension normal}) \end{cases} \quad \text{Eq. 2.7-55}$$

$$F^* = c |g_c|^{\frac{1}{4}} \delta_n = \left(2\beta_n \sqrt{\frac{3}{2} m_c k_n} \right) |g_c|^{\frac{1}{4}} \delta_n \quad \text{Eq. 2.7-56}$$

$$F_s^d = \begin{cases} (2\beta_s \sqrt{m_c k_s}) |g_c|^{\frac{1}{4}} \delta_s, & s = \text{false or } M_d = \{0,1\}(\text{full shear}) \\ 0, & s = \text{true and } M_d = \{2,3\}(\text{slip - cut}) \end{cases} \quad \text{Eq. 2.7-57}$$

3. Burgers 接觸模型

Burgers 接觸模型合併了 Kelvin 和 Maxwell 模型，Kelvin 模型為一組彈簧與阻尼並聯的元件，兩部件所受之力不同但變形量相同；Maxwell 模型則為一彈簧與阻尼串聯，兩部件所貢獻之變形量不同但共享相同的力。相關參數列於表 2.7-4。Burgers 接觸模型在傳統土壤力學用來模擬潛變的發生亦或是模擬瀝青的黏彈性行為，而 Su 等人[6]則利用此模型模擬了晶粒在排水壓縮中晶粒的部分黏塑性行為。

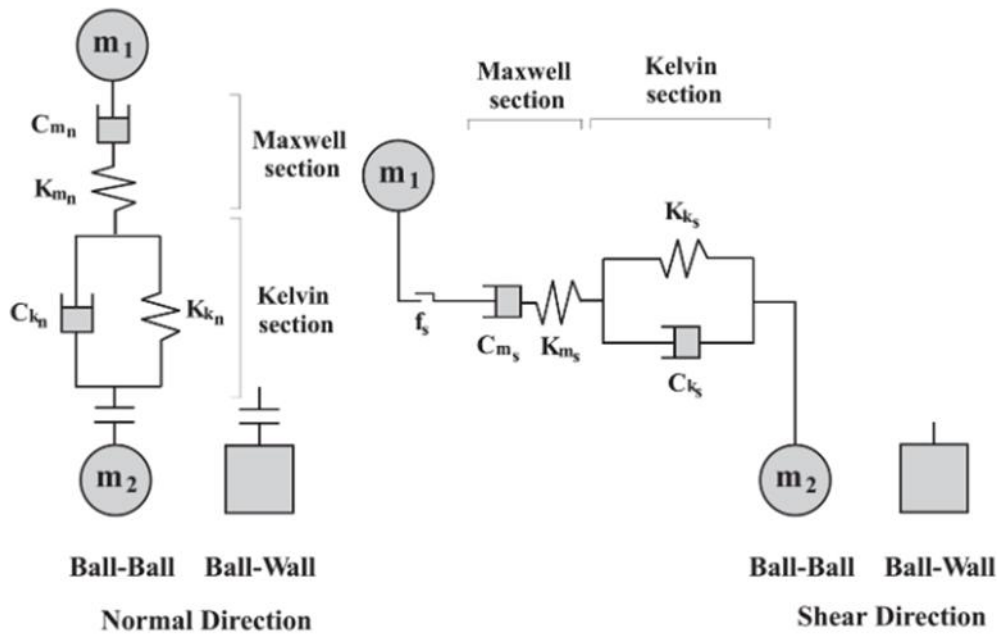


圖 2.7-7 Burgers 接觸模型[130]

表 2.7-4 Burgers 接觸模型相較線性及 Hertz 接觸模型新增之參數

參數符號	參數描述	單位
$k_{2,n}$	法向彈簧勁度—Kelvin 區段	N/m
$\eta_{2,n}$	法向阻尼係數—Kelvin 區段	N · s/m
$k_{1,n}$	法向彈簧勁度—Maxwell 區段	N/m
$\eta_{1,n}$	法向阻尼係數—Maxwell 區段	N · s/m
$k_{2,s}$	切向彈簧勁度—Kelvin 區段	N/m
$\eta_{2,s}$	切向阻尼係數—Kelvin 區段	N · s/m
$k_{1,s}$	切向彈簧勁度—Maxwell 區段	N/m
$\eta_{1,s}$	切向阻尼係數—Maxwell 區段	N · s/m
μ	摩擦係數	-

Burgers 接觸模型的力與位移關係可寫成二階微分方程：

$$F + \left[\frac{\eta_2}{k_2} + \eta_1 \left(\frac{1}{k_2} + \frac{1}{k_1} \right) \right] \dot{F} + \frac{\eta_2 \eta_1}{k_2 k_1} \ddot{F} = \pm \eta_1 \delta \pm \frac{\eta_2 \eta_1}{k_2} \dot{\delta} \quad \text{Eq. 2.7-58}$$

其中 F 為 Burgers 接觸模型的接觸力，由上述方程式可得解析解：

$$F^{t+1} = \pm \frac{1}{C} \left[\delta^{t+1} - \delta^t + \left(1 - \frac{B}{A} \right) \delta_2^t \mp DF^t \right] \quad \text{Eq. 2.7-59}$$



其中 t 為時間， δ_2 為 Kelvin 模型的變形量， C 和 D 分別為：

$$C = \frac{\Delta t}{2\eta_2 A} + \frac{1}{k_1} + \frac{\Delta t}{2\eta_1}$$

$$D = \frac{\Delta t}{2\eta_2 A} - \frac{1}{k_1} + \frac{\Delta t}{2\eta_1}$$

Eq. 2.7-60

Eq. 2.7-61

另外 Burgers 模型中切向力 F_s 在小於最大靜摩擦力 F_s^* 的情況下其切向力 F_s 的計算皆根據 Eq. 2.7-59，而當切向力 F_s 據 Eq. 2.7-59 求得大於最大靜摩擦力 F_s^* 時其值為 F_s^* ，如 Eq. 2.7-63 所述：

$$F_s^* = -f_s F_n \quad \text{Eq. 2.7-62}$$

$$F_s = \begin{cases} F_s, & \|F_s\| \leq F_s^* \\ F_s^*(F_s/\|F_s\|), & \text{otherwise} \end{cases} \quad \text{Eq. 2.7-63}$$

不過大部份的 Burgers 接觸模型的碰撞參數大部分都要透過模擬簡單的實驗獲得，因此 Su 等人透過一組簡單的微觀雙顆粒模型，將顆粒與牆之間裝上 Hertz 模型，而顆粒與顆粒之間則裝上 Burgers 碰撞模型，以擬和 Braccini 等人[148]的排水壓縮實驗從而得知所需的碰撞模型參數如圖 2.7-8 所示。發現到最終的流變應力與 Maxwell 的阻尼係數有關。從 Braccini 等人的實驗得出的結果，流變應力與壓縮應變以及溫度有關，可寫成下列的式子：

$$\sigma_{z,flow} = A_1 \left[\dot{\epsilon} \exp\left(\frac{Q}{RT}\right) \right]^m \quad \text{Eq. 2.7-64}$$

其中 Q 為活化能為 154 kJ/mol 、 $m = 0.26$ ，最後 $A_1 = 1.44 \times 10^5 \text{ Pa} \cdot \text{s}^{0.26}$ 為一常數。

Su 等人透過剛剛的微觀模型得知 Burgers 接觸模型的 Maxwell 阻尼係數與後期流變應力的關係可寫為與應變速率有關的方程式：



$$\sigma_{z,Burgers} = A_2 \dot{\eta}_{1,n}$$

Eq. 2.7-65

其中 $A_2 = 1.42 \times 10^3 m^{-1}$ 一樣也是個常數。接者假設 $\sigma_{z,flow} = \sigma_{z,Burgers}$ ，最後相除即可得到 $\eta_{1,n}$ 與應變速率與溫度之間的關係：

$$\eta_{1,n} = A_3 \dot{\epsilon}^{m-1} \exp\left(\frac{mQ}{RT}\right)$$

Eq. 2.7-66

$A_3 = A_1/A_2 \approx 102 kg \cdot s^{-1.78}$ ，而剩餘的參數則需透過大量的微觀實驗擬和 Braccini 等人的實驗從而得知。

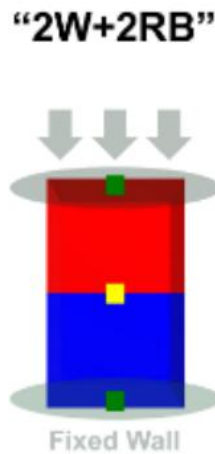


圖 2.7-8 Su 等人所使用的微觀模型[6]



2.7.5 伺服剛性壁與伺服柔性壁

在 PFC 中伺服壁是常用於施加壓力或是控制壓力的方法，而在 PFC 中伺服牆至少分為以下三種：

1. 單面剛性牆：為 PFC 中最簡單的一種伺服牆，為剛性牆的一種，通常在 3D 中會以多個剛性牆組成一組容器如圖 2.7-9 所示

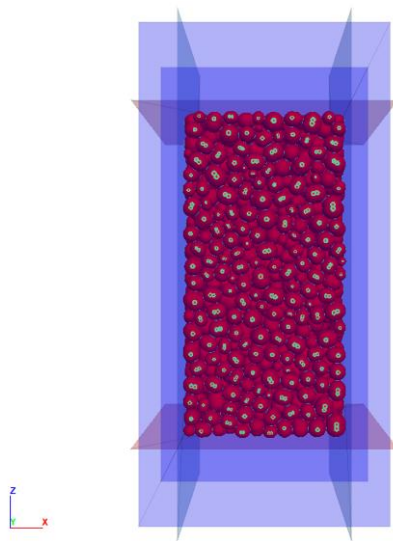


圖 2.7-9 6 個單面剛性牆組成的三軸壓縮容器

2. 圓柱形鋼性牆：這種剛性牆主要是以 FLAC3D 組成圓柱體並耦合 PFC3D 模擬顆粒運動如圖 2.7-10。相較於單面剛性牆的好處為不容易在邊界處形成應力集中的現象，但由於 PFC 不支援 GPU 加速因此非常需要電腦效能。

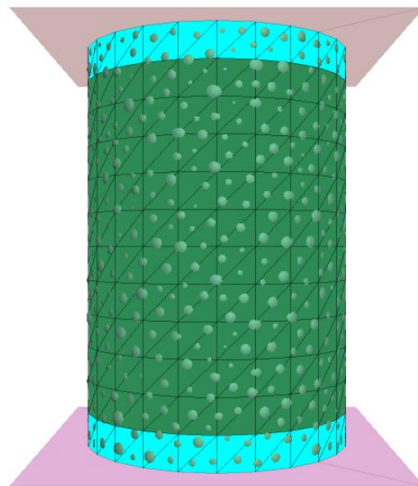


圖 2.7-10 圓柱形刚性伺服牆構建的三軸壓縮容器[149]

3. 柔性牆：柔性牆(membrane)是目前利用離散元素法中最常見的伺服牆，其主要是透過好幾顆顆粒透過鍵結模型(bonded model)組合在一起如圖 2.7-11 和圖 2.7-12，柔性牆與先前介紹的刚性牆最大的區別在於它允許顆粒在牆體上產生突起，對於顆粒運動的束縛性遠小於刚性牆，因此大多應用於研究顆粒系統的破壞行為。但由於此方法需要控制的顆粒多且運動行為複雜，計算負擔也是這三種伺服牆中最重的。

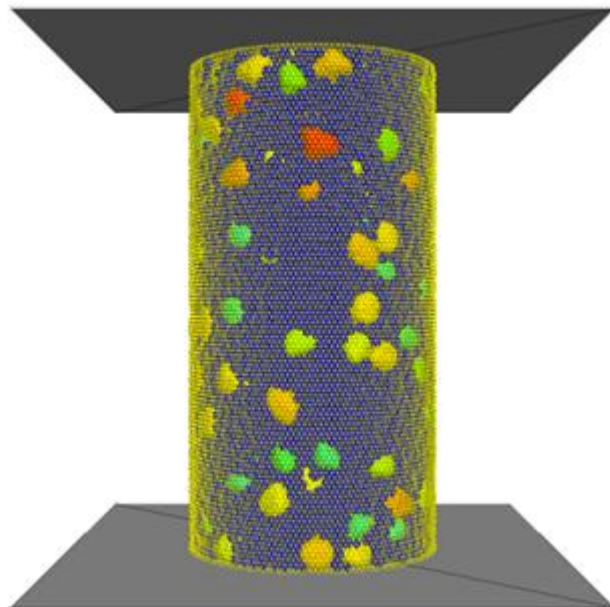


圖 2.7-11 由柔性牆組合而成的圓柱型三軸壓縮容器[142]

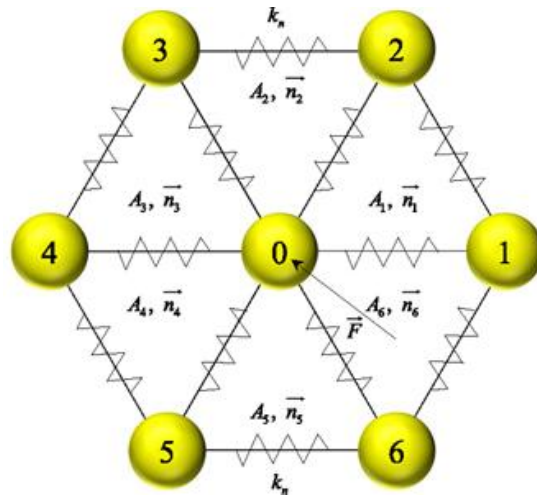


圖 2.7-12 柔性牆的顆粒設定和組成[142]

雖然上述的伺服牆形狀以及模式皆不相同但整體的概念是一樣的，透過控制牆體或是柔性牆的顆粒速度來控制壓力的變化。根據 PFC6.0 手冊上提供的公式，顆粒施加在牆體上的壓力 σ^c 與目標壓力 σ^t 和牆體的移動速度 v_n 的關係為：

$$v_n = G(\sigma^t - \sigma^c) \quad \text{Eq. 2.7-67}$$

其中 G 為控制增益，計算方法如下：

$$G = \frac{\alpha \cdot A}{K^c * \Delta t} \quad \text{Eq. 2.7-68}$$

其中 α 為鬆弛係數(通常設為 0.8)； A 為伺服牆的面積； K^c 為作用在牆體上的碰撞模型的總彈性係數，最後 Δt 為時間步長。不過上述公式透過我實際操作下來發現到只適合用在線性模型上，若是造應用在諸如其他模型例如 Hertz 模型，則需透過改寫 Eq. 2.7-68。這裡我參考 Yuan 等人[5]提供的辦法比較 Eq. 2.7-48 和 Eq. 2.7-68 將 Eq. 2.7-68 修改為：

$$G = \frac{2\alpha \cdot A}{3K^c * \Delta t} \quad \text{Eq. 2.7-69}$$

當然伺服牆的整體操作機制在 PFC 中不只如此，另一項重要的參數為更新頻率，這項參數會以 PFC 的計算迴圈為基礎更新一次牆體的控制增益，因此其在

很大程度上決定了三軸壓縮在模擬過程中的應力波動以及計算效率，在這次的三軸壓縮模擬中是非常關鍵的角色。





Chapter 3 研究流程與方法

3.1 實驗流程

本研究合金樣品經中央大學李勝隆教授實驗室協助配置並且使用楊哲人教授的中溫爐於 553°C 球化 7 天，隨後利用同步輻射中心(NSRRC)中的加熱爐升溫到 550°C 和 570°C 中獲取切片影像。隨後透過 Avizo 進行影像重建並透過擎擘公司所提供的機器學習程式優化所得到的影像，透過 MATLAB 分析顆粒 3D 影像的直徑長度以及球形度的分佈。而模擬的部分我們使用離散元素法軟體 PFC3D，並且參考 Su 等人[6]提出的微觀壓縮模型(圖 2.7-8)，研究顆粒大小的變化以及顆粒密度的變化對應力應變曲線的影響並與 Braccini 等人的排水壓縮實驗[148]做比較以找到合適的碰撞模型參數。

接著我們將 MATLAB 所擬和的顆粒分佈資料輸入到我們設計的三軸壓縮宏觀模型中進行模擬。在模擬結束後會將靠近伺服牆的顆粒刪除以避免在後續的顆粒系統分析中出現應力集中的干擾，隨後透過 MATLAB 對顆粒系統的接觸數目、力的方向分佈等進行分析，同時也將記錄得到的偏應力、體積應變變化與 Altuhafi 等人的高溫三軸壓縮實驗做比較[107]，並觀察顆粒形狀、應變速率以及固相分率對臨界土壤力學的影響。



3.2 試片製備

3.2.1 實驗材料製備

此次研究試片由中央大學李勝隆教授實驗室協助配置，將純 Al、純銅以及 Al-5Ti-B 晶粒細化劑依重量比例分配好後分別澆注 Al-15Cu-0.05Ti、Al-12Cu-0.05Ti、Al-8Cu-0.05Ti 樣品。接者將鑄件放入楊哲人老師實驗室的中溫爐中在 553°C 下球化 7 天如圖 3.2-1，所後我們對所得的試片進行線切割成直徑約為 3.2mm 高為 2.8mm 的圓柱體，並套上由氧化鋁製成的杯套中如圖 3.2-2(b)所示。圖 3.2-2(a)為此次同步輻射實驗中所使用的加熱裝置，將試片放入銅環中間的圓柱型載具中，加熱到 550°C 後每 10°C 對試片進行一次拍攝直到 600°C 為止。



圖 3.2-1 在球化前的試片以及中溫爐

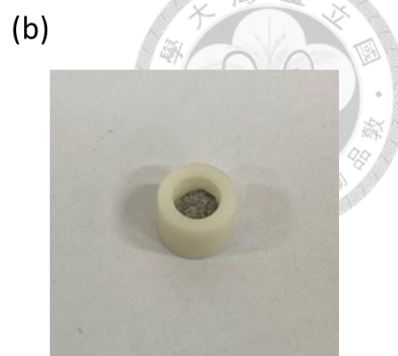


圖 3.2-2(a)同步輻射中心(NSRRC)的加熱載台；(b)Al-15Cu 與氧化鋁套筒



3.2.2 Avizo 影像重構與晶粒尺寸及球度分析

在同步輻射中心取得影像資料後，我們使用 Avizo® 3D (Thermo Fisher Scientific, USA) 搭配擎擘公司所提供的機器學習程式對取得的資料進行重構並對晶粒進行準確的分割。由於考慮到同步輻射中心的鏡頭有效成像範圍和實驗室的 GPU 效能極限，此次模擬我們選中的試片為 570°C 和 550°C 下的 15Cu 試片，這些試片符合我們對中等固相分率的需求同時重構後的晶粒數量有到達或接近 100 顆，相較於其他試片來說在統計方面較具代表性。圖 3.2-3(a)和(c)分別為 570°C 和 550°C 下 15Cu 經過同步輻射所得的二維切片影像，隨後經過 Avizo 進行重構形成圖 3.2-3(b)和(d)的三維晶粒影像圖。接著我們透過 CALPHAD 模擬軟體 Pandat (version 2021, CompuTherm, Middleton, WI, USA) 的鋁合金數據庫(PanAluminum 2024 database)計算各溫度下的 8Cu、12Cu 以及 15Cu 的理論體積固像分率並將其與溫度之間的關係曲線繪製於圖 3.2-4 中。在此次的計算中 570°C 和 550°C 下 15Cu 的理論固相分率分別為 0.598 和 0.691。另外在 2.6 節中介紹過有不少學者透過解析指出球形顆粒能排到的最高固相分率落在 62.5%到 74%，超過這個範圍後顆粒的形狀會越來越偏離球體，這點從圖 3.2-5(b)、(d)可以看出，但絕大部分的晶粒球形度維持在 0.95 以上，與先前大多數學者得到的結論相同。

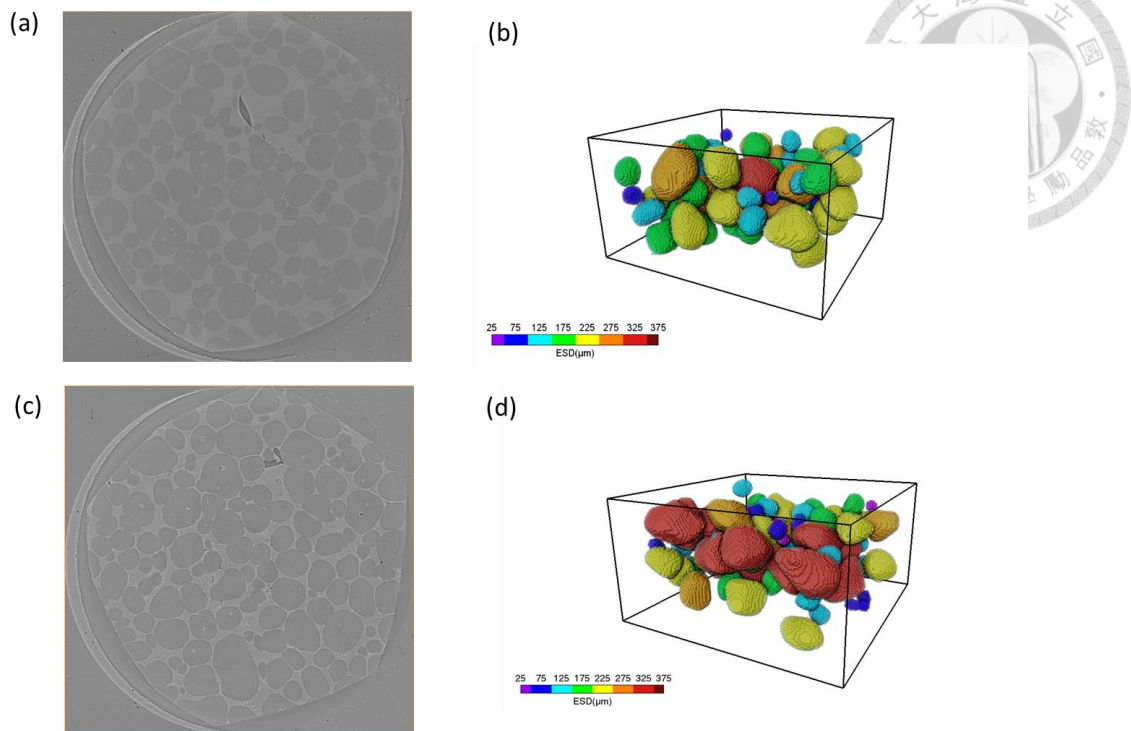


圖 3.2-3 (a)為 570°C 下的二維同步設切片圖，(b)透過 Avizo 重現後的三維 570°C 晶粒;(c)為 550°C 下的二維同步設切片圖，(d)透過 Avizo 重現後的三維 550°C 晶粒。

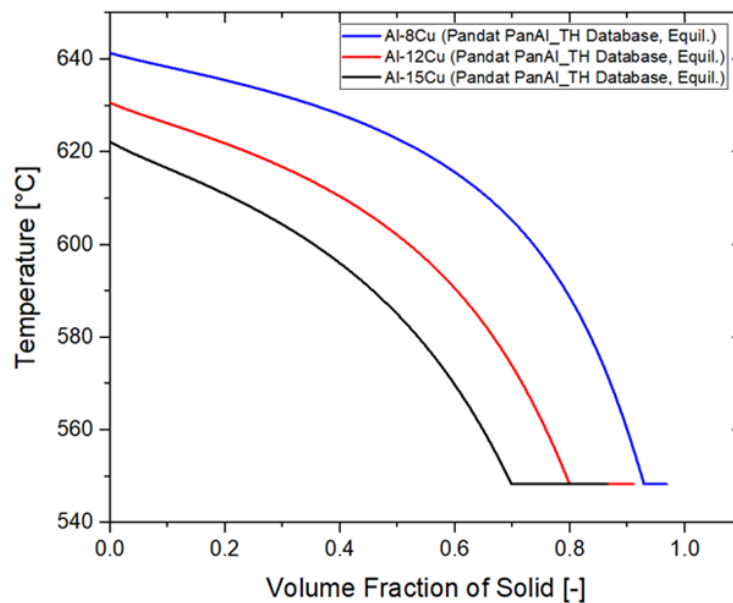


圖 3.2-4 為 Al-8Cu、Al-12Cu、Al-15Cu 透過 Thermo-Calc 計算不同溫度下的體積固像分率。

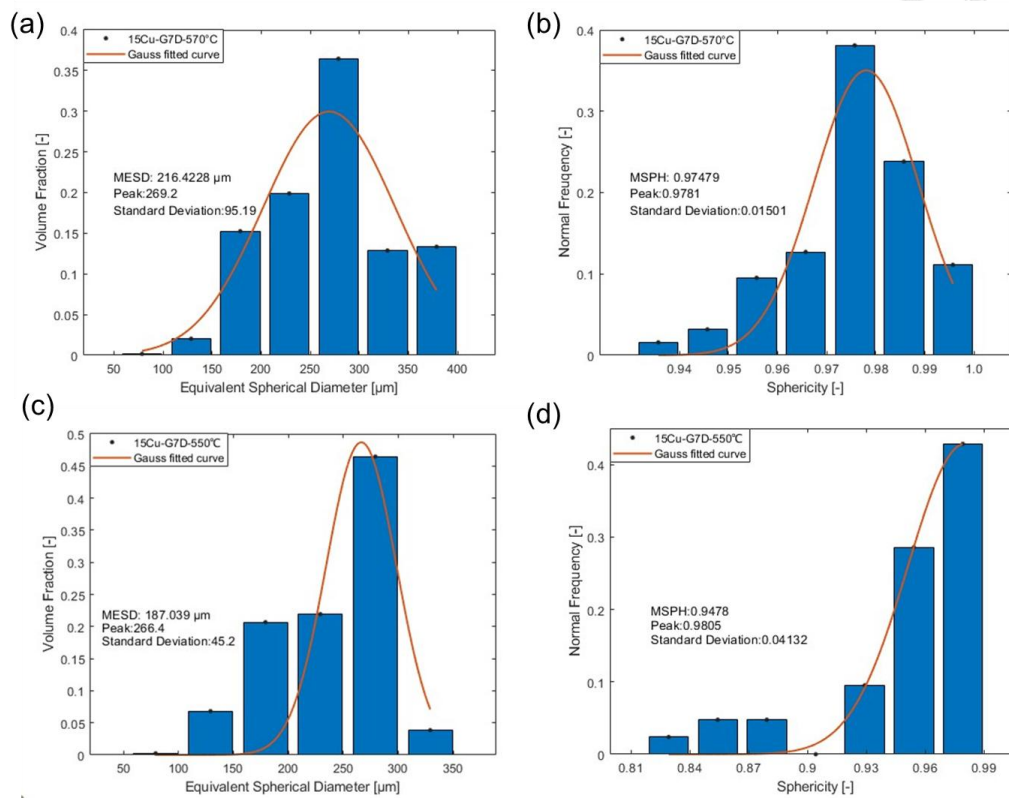


圖 3.2-5 (a)和(b)分別為 Al-15Cu 在 570°C 下的晶粒直徑分佈與體積分率分佈圖和球度度分佈圖。(c)和(d)為 Al-15Cu 在 550°C 下的晶粒直徑分佈與體積分率分佈圖和球度度分佈圖。



3.2.3 顆粒模型設計與建模

由圖 3.2-5(b)、(d)圖中可知道在 570°C 下的 15Cu 晶粒球形度至少在 0.95 以上，整體的形狀偏向橢圓形，因此這裡參考 Su 等人[6]的想法，透過將兩顆球體黏在一起形成多球團塊來模擬如圖 3.2-6 所示。而這兩顆顆粒間的圓心距離長短可以控制團塊的球形度變化，首先球體體積與表面積的計算方法如下：

$$V_{sphere} = \frac{4}{3}\pi r^3 \quad \text{Eq. 3.2-1}$$

$$A_{sphere} = 4\pi r^2 \quad \text{Eq. 3.2-2}$$

其中 r 代表球體的半徑。圖 3.2-7 展示了單顆球體模型其中藍色部分為雙顆粒團塊重疊部分被稱為球冠，其體積與表面積計算方法如下：

$$V_{cap} = \frac{1}{3}\pi h^2(3r - h) \quad \text{Eq. 3.2-3}$$

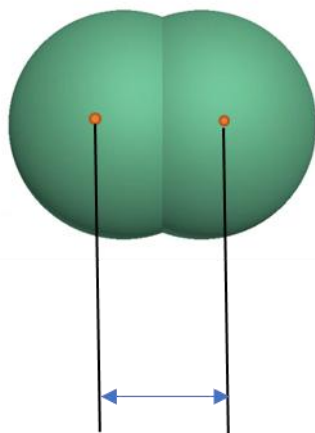
$$A_{cap} = 2\pi h \quad \text{Eq. 3.2-4}$$

其中 h 為球冠的高。將兩顆球體體積相加後扣掉球帽的體積即可得到所需團塊的體積。同樣的表面積算法也相同，最後代入球形度公式：

$$\frac{\frac{1}{3}\pi(6V_{clump})^{\frac{2}{3}}}{A_{clump}} \quad \text{Eq. 3.2-5}$$

最後此次模型我們取 570°C 下的平均球形度 0.975 為基礎，經計算後可得兩顆球體的圓心相距需為 $0.667r$ 。此數據同時應用於 550°C 下的 15Cu 模型，之所以會這樣是因為在 550°C 下的固相分率較高，因此有別於 570°C 時的顆粒生成方法，採用顆粒膨脹法完成，並在後續的測試中發現當球形度越靠近 1 時，越容易堆疊

出高固相分率。



$$\cong 0.667r$$

圖 3.2-6 15Cu 在 PFC 中的模擬晶粒

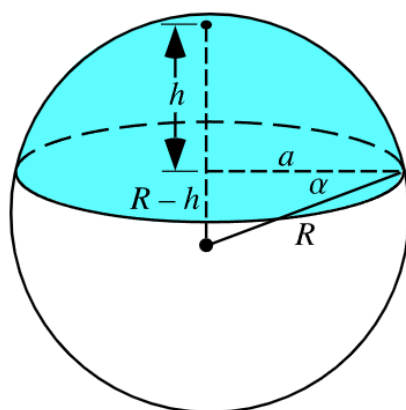


圖 3.2-7 單球體顆粒模型[150]



3.3 微觀模擬

在先前 Su 等人[6]的研究中，提出了利用微觀模型在有限的計算能力下測量出碰 Burgers 撞模型所需的各項參數，由於這裡由於顆粒尺寸與先前 Su 等人所測得的有所差異，因此我們也引用了這個辦法來測量此次模擬所需的碰撞模型參數。

3.3.1 尋找適合的接觸模型參數

這裡我將會介紹本次微觀模擬測試中在 PFC3D 中的具體的操作步驟：

1. 兩正方體使用 PFC 中的 rblock create 語法[130]生成兩相鄰正方體顆粒(2RB)，這裡的正方體邊長採用 570°C 下 Al-15Cu 的平均等效平均直徑製作，如圖 3.3-1 所示。為了降低模擬運算成本，參考 Lommen 等人[151]的方法將顆粒邊長放大 6 倍，使 15Cu 顆粒的邊長(L)訂為 1298 μm 如表 3.3-2 所示。
2. 參考 Su 等人的計算方法，將固體平均密度設為 $2670\text{kg}/\text{m}^3$ 。
3. 將兩顆粒的三軸方向速度與自旋設為 0 並固定。
4. 接觸模型使用表 3.3-1 為參數的 Hertz 接觸模型，一樣參考自 Su 等人提供的數據，用以模擬顆粒與牆體之間的非線性碰撞。而顆粒與顆粒間則採用 Burgers 接觸模型以模擬顆粒間的黏彈性碰撞，以及部分間隙液體的托拽現象。
5. 接著參考陳孟淳學姐所做的數據以及 Braccini 等人所做的實驗[148]，牆體之應變速率被設為 0.01s^{-1} 。
6. 設定壓縮時間為 2.5 秒以及 30 秒，以觀察前期以及整體的壓縮變化。
7. 每 1000 次計算週期紀錄一次活塞當下的力與位移值及應力應變值。
8. 完成後再次嘗試其他碰撞參數透過不斷迭代的方式直到能與 Braccini 等人[148]的實驗曲線吻合，得到本實驗中所使用的碰撞模型參數。

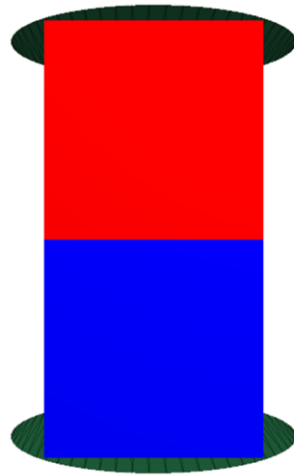


圖 3.3-1 雙立方體微觀測試模型

表 3.3-1 牆與顆粒之間的 Hertz 接觸模型參數[127]

參數	值	單位
剪切模數(G)	1.71×10^9	Pa
蒲松比 (ν)	0.384	-
臨界正向阻尼比(β_n)	0.2	-
臨界切向阻尼比(β_s)	0.2	-

表 3.3-2 Su 等人[6]以及本次實驗所使用的顆粒參數

顆粒參數	Su et al	本次實驗
晶粒尺寸[μm]	邊長 $a = 1410$	邊長 $a = 1298.4$
密度[kg/m^3]	2626	2626
等效重力[m/s^2]	0	0

3.3.2 顆粒尺寸對應力應變的影響

正如先前所說，由於此次的模擬與 Su 等人[6]提供的顆粒大小參數有落差，這就引起了我們對於顆粒大小的變化對於應力應變曲線的影響為何，主要的過程與 3.3.1 章近乎相同，但在此研究中分為三組實驗，一組為原先 Su 等人所做的微觀模擬實驗，一組為原先的顆粒數據放大了 8 倍，最後一組則為原先 0.2 倍，計算完成

後與 Su 等人的曲線做比較。



3.3.3 顆粒密度對時間步長以及應力應變的影響

在這次的宏觀三軸壓縮模擬中，由於顆粒數量眾多導致計算負擔極大，因此除了 Su 等人[6]提出的透過減少 Hertz 碰撞模型的剪切模數以及增大顆粒體積外，Ng 等人[152]指出可以透過增加顆粒的密度來增加時間步長以減緩計算負擔，這種方法適用於長期處於準靜態的三軸壓縮測試中，這是因為顆粒在這個狀態下速度移動極為緩慢，慣性對於碰撞的影響很小，因此在本次的實驗中主要是以放大後的 15Cu 顆粒尺寸為基礎，研究當顆粒密度被放大後的應力應變變化，同時我們也好奇剪切模數與顆粒密度對應力應變以及時間步長的影響何者較佔據主導地位。



3.4 三軸壓縮模擬

在完成了微觀壓縮模擬確認的各項碰撞參數後，我們接下來就會開始嘗試模擬高溫鋁合金的三軸壓縮變形行為，但由於在不同溫度下的鋁合金固相分率不同，製造顆粒的方式也有差異。因此接下來會個別詳述試片的製備過程、施加圍壓階段以及剪切階段。

3.4.1 15Cu-570°C

試片製備

1. 首先我們以六面剛性牆組合出一長方體容器如圖 3.4-1，其尺寸是根據經驗法則[153, 154]，容器的長與寬至少要是最大顆粒直徑的 10 倍且高須為長與寬的 2 倍以減少邊界效應的影響。因此此次容器的尺寸為 32 mm × 32 mm × 64 mm。

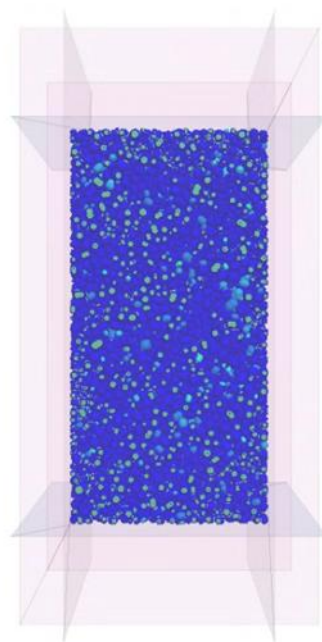


圖 3.4-1 本次三軸壓縮模型。

2. 接著 570°C 下的顆粒主要以先前所述的雙球團塊為主，隨後透過圖 3.2-5(c)中擬和的顆粒等效直徑高斯分佈曲線將其切成 20 個等份後乘以顆粒放大係數 6，並將所得的顆粒體積輸入到 PFC 中並以 clump distribute 指令[130]生成所需的

顆粒。圖 3.4-2 為在 PFC 中生成後的顆粒尺寸分佈，可以發現到尺寸的分佈不管是標準差、尺寸的峰值或是平均尺寸都與圖 3.2-5(c)相近。

3. 為了減少計算負擔，顆粒的密度被設為 2.652×10^8 為原先顆粒密度的十萬倍，為減緩試片模擬時靜力不平衡的現象，將球體的阻尼係數設為 0.7。
4. 而此次模擬中由於計算負擔的原因因此並沒有耦合 CFD 但我們假設液體對顆粒的浮力抵銷了重力對顆粒的影響因此等效重力在 PFC 中設為 0。
5. 將顆粒之間與牆體之間的碰撞模型設為線性模型並利用 PFC 中的 method deformability 指令[130]，這個指令有別於 property 指令能讓電腦依據顆粒大小的不同調整碰撞模型的楊氏係數進而達到更平衡的應力系統。其中各項參數被列於表 3.4-1。
6. 讓其運作一段時間直到顆粒之間的收斂比率低於 5×10^{-4} ，並透過計算全部顆粒的體積除以容器的體積得知固體密度。

最後所得的試片固相為 0.598 共計產生 28464 顆多球團塊。

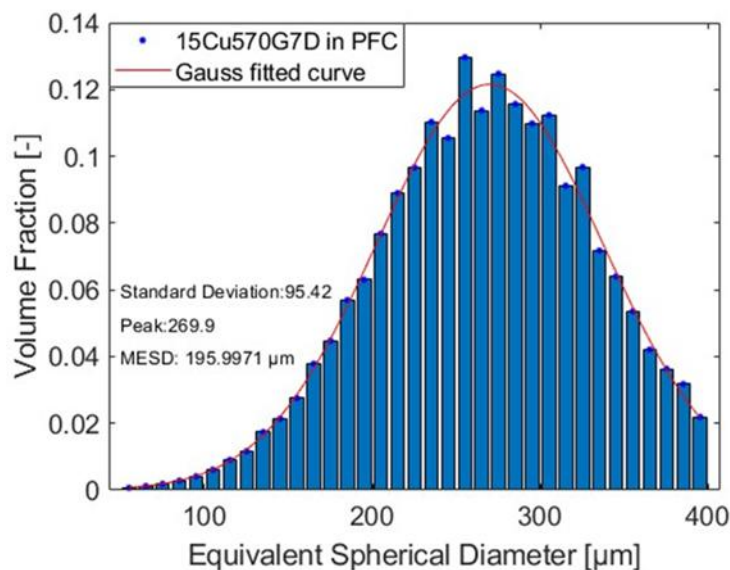


圖 3.4-2 15Cu-570°C 的顆粒模型尺寸分布圖。

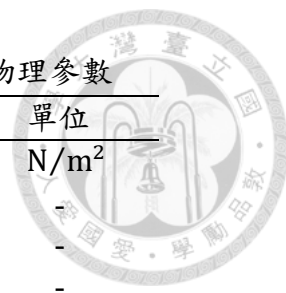


表 3.4-1 宏觀三軸壓縮模擬試驗中的線性接觸模型之物理參數

參數	值	單位
有效彈性模數模數(E^*)	1.0×10^8	N/m ²
法向和切向彈性係數比 ($kratio$)	0.5	-
臨界正向阻尼比(β_n)	0.7	-
臨界切向阻尼比(β_s)	0.7	-
摩擦係數	0.1	-

施加圍壓

在試片製備完成後，我們隨後將碰撞模型改為顆粒與顆粒之間為 Burgers 模型而顆粒與牆體之間為 Hertz 模型，隨後透過伺服牆的移動施加壓力，其應變速率控制在 5×10^{-4} ，以利於顆粒在這過程中能充分的重新排列，以及確保模擬過程中維持在準靜態，施加圍壓階段會在顆粒施加在牆體上的應力誤差與顆粒系統的收斂比率到達指定值後結束。此次實驗最終圍壓分別為 300kPa 和 600kPa，表 3.4-2 列出了此次模擬的伺服牆參數和完成條件。

表 3.4-2 伺服牆的相關參數以及圍壓施加完成的條件。

參數	值	單位
鬆弛係數(α)	0.01	-
增益係數更新頻率	40	cycles
應力誤差值	0.05	%
收斂比率	5×10^{-4}	-

剪切階段

在圍壓施加完成後，我們透過使上方的牆體以應變速率 5×10^{-4} 向下移動對顆粒施加偏應力，其中應變速率由下列式子計算：

$$\dot{\varepsilon} = \frac{v}{h}$$



Eq. 3.4-1

其中試片高度 $h = 0.0614$ m 為施加完圍壓後的高度，可得壓縮速率為 3.07×10^{-5} m/s。這麼低的應變速率是為了確保剪切過程中慣性數小於 2.5×10^{-3} 維持在準靜態。而在 x 和 y 方向上的伺服牆則為了減少圍壓的應力震盪，將其最大速度控制在 1.6×10^{-5} m/s，整體剪切持續時間至少為 640 秒以確保顆粒系統進入臨界狀態。



3.4.2 15Cu-550°C

試片製備

Al-15Cu 在 550°C 時下的固相分率為 0.691，根據先前在 2.6 節中關於最大隨機固相分率大約為 0.635，因此在為了不改變顆粒外觀及體積的情況下堆疊出更高的固相分率，我們採用 Salot 等人和 Chareyre 等人[155, 156]提出的顆粒膨脹法，具體操作如下：

1. 首先依照在 570°C 下的步驟一和步驟二的試片製備過程在完成後透過 PFC 中的 clump scale 指令[130]縮小顆粒體積到原先的三分之一。
2. 隨後將 Burgers 模型和 Hertz 模型裝上
3. 由於 clump scale 指令在放大或縮小顆粒時會使顆粒的質心位置發生移動，因此當放大倍數過大時會出現顆粒穿出牆體的現象，因此每一次顆粒的放大倍數被控制在 1.0012~1.0022 之間。
4. 完成一次顆粒放大後，由於顆粒體積增加彼此之間發生接觸，因此會運行一段時間直到顆粒系統內的接觸數目降為 100 以內或是顆粒施加在牆體上的應力小於 100Pa，即可回到步驟三，這個過程會重覆到接觸數目或是牆體上的應力無法下降為止。

在完成上述的步驟後顆粒的放大係數為 5.97，固相分率為 0.681，共計產生 23264 顆多球團塊顆粒。

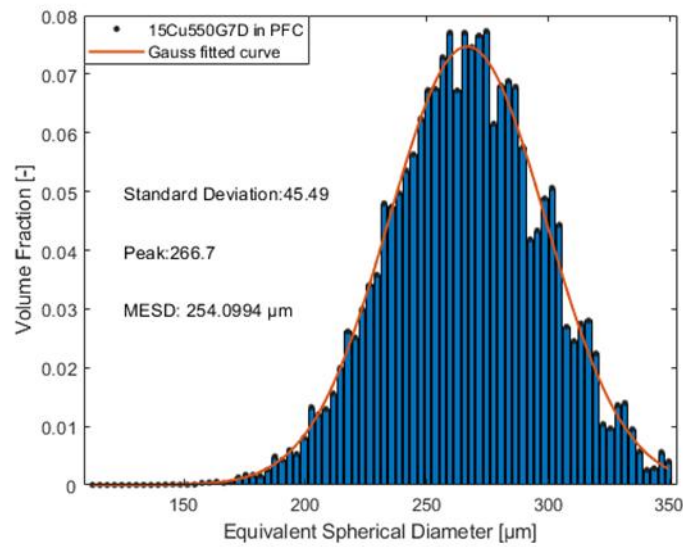


圖 3.4-3 15Cu-550°C 的顆粒模型尺寸分布圖。

施加圍壓

跟 15Cu-570°C 時的模擬一樣，透過移動伺服牆來施加圍壓，但只探討圍壓為 300kPa 時的情況。

剪切階段

此過程與 15Cu-570°C 時一樣，施加完圍壓後高度 $h = 0.0631$ m，壓縮速率為 3.15×10^{-5} m/s，壓縮時間至少為 640 秒。



3.4.3 混合碰撞模型

我們在 15Cu-550°C 的高固相分率試片中在顆粒與顆粒之間的碰撞模型皆為 Burgers 碰撞模型，但在後續的分析中發現到其體積應變並沒有像 Altuhafi 等人[107] 的實驗一樣出現膨脹，主要的模擬計算結果詳見 4.2.3 節。我們認為造成此現象的主要原因在於 Burgers 碰撞模型的應力傳遞具有時間依賴性。與瞬時反應的彈性模型相比，其鬆弛行為使顆粒受壓縮時無法即時發生對應的反應，延遲了顆粒間的重排與滑移。這種遲滯效應降低了在剪切過程中誘發膨脹的能力，從而抑制了剪切膨脹的表現。但由於大部份應用 Burgers 碰撞模型的論文都在探討三軸蠕變測試 (triaxial creep test)，且很少觀察體積的變化。而少數觀察到體積膨脹現象的論文如：Collop 等人[157]模擬瀝青的三軸壓縮測試時在顆粒垂直的碰撞壓縮方向上套用線性模型而在碰撞彈開時的拉伸以及剪切方向套用 Burgers 碰撞模型，並觀察到在垂直方向的彈性係數與剪切方向上的剪切係數比值越大膨脹效果越明顯如圖 3.4-4。但由於 Collop 等人[157]的模型設置在計算上實在太複雜了，因此我們參考了 Gbadam 等人以及 Xia 等人[158, 159]的做法透過降低 Burgers 碰撞模型在顆粒系統中的數目，並套用更多的瞬時碰撞模型來增加顆粒的滑移以及滾動的能力進而增加剪切誘發膨脹的機會。

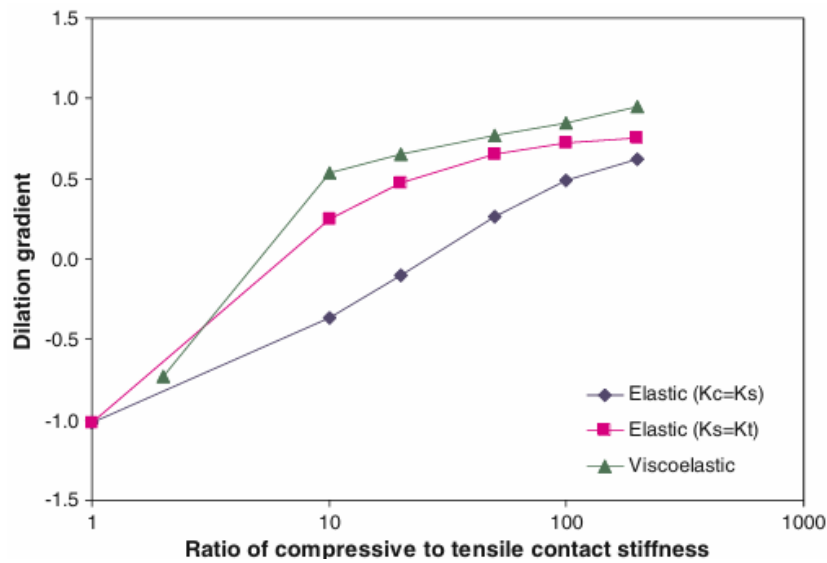


圖 3.4-4 Collop 等人[157]實驗所得的體積膨脹梯度與壓縮和膨脹彈性係數比值曲線圖。其中 K_c 為顆粒壓縮時的碰撞彈性係數， K_s 為碰撞剪切方向上的彈性係數， K_t 為顆粒彈開時的拉伸的彈性係數。

因此這裡我們提出了混合碰撞模型(mixed 接觸模型)，針對混合碰撞模型我們提出了以下的假設：

1. 從先前的枝晶接觸點的理論出發，通常越大的晶粒越容易出現 interlocking 的現象，在這種情況下顆粒之間以晶粒變形因應壓縮應力，因此以 Burgers 接觸模型模擬之。
2. 另一方面對於小顆粒而言由於 interlocking 的現象較大顆粒不明顯因此顆粒之間以滑動和位移以因應壓縮應力，因此以 Hertz 模型模擬。
3. 最後我們以圖 3.2-5 中的擬合高斯曲線為基礎以其峰值為分界線，低於此峰值的等效直徑被定義為小顆粒，而大於此直徑的顆粒被視為大顆粒。
4. 最後 Burgers 模型只被應用在大顆粒與大顆粒之間的碰撞，剩餘的碰撞皆以 Hertz 模型模擬如圖 3.4-5。
5. 最後我們參考了 Collop 等人[157]的結果，將 Burgers 接觸模型垂直與剪切方向上的彈性係數與阻尼係數比值設為 0.3，以增加顆粒滑動的機會。

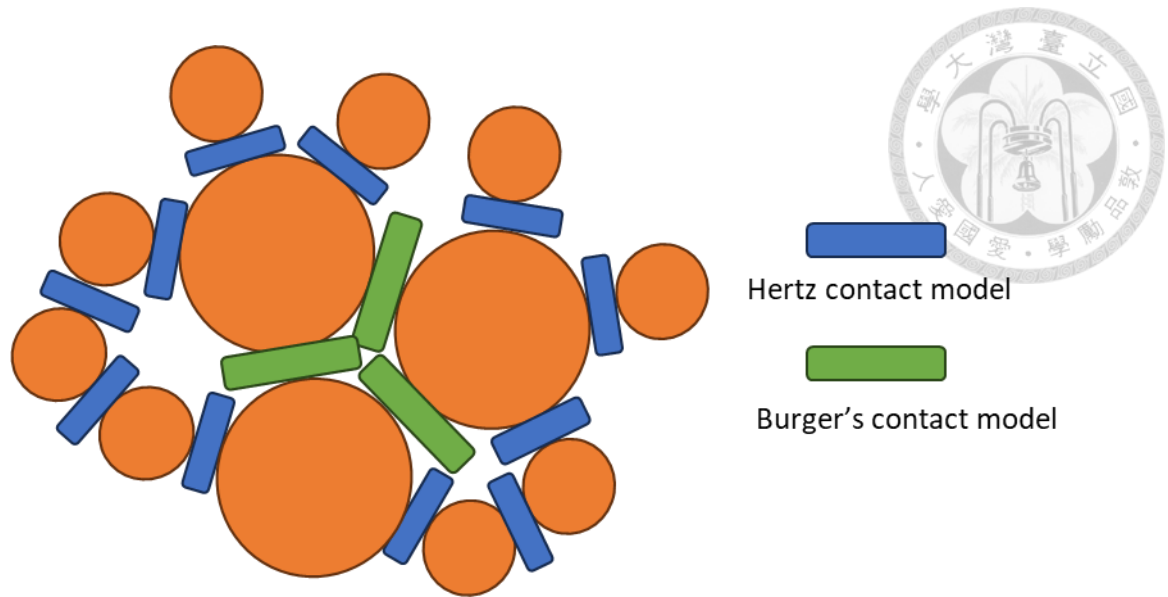


圖 3.4-5 Hertz 與 Burgers 混合碰撞模型示意圖。

在設置好上述模型後，再執行一次 15Cu-550°C 的實驗流程，並觀察是否有出現體積膨脹的現象。



3.4.4 模擬後處理

在三軸壓縮模擬結束後由於形狀關係，在後續的資料處理過程中發現到有應力集中和邊界效應的影響，為了避免此類效應對後續實驗分析的影響，會選擇將 X 和 Y 方向上的距離伺服牆 0.001 m 以內以及在 Z 方向距離伺服牆 0.002 m 內的顆粒刪除。隨後將資料導出交由 MATLAB 對顆粒內部的接觸分佈以及接觸力分佈以及宏觀的機械性質數據進行分析，幫助我們更了解顆粒在壓縮過程中的行為。



Chapter 4 結果與討論

4.1 微觀模擬結果

4.1.1 顆粒尺寸對於應力應變曲線的影響

透過先前的微觀壓縮模型，我們首先探討顆粒在不同顆粒尺寸下的應力應變行為，利用相同的碰撞參數分別在 8 倍和 0.2 倍下進行壓縮測試。圖 4.1-1 為測試結果，能從圖中觀察到當顆粒越大整體的應力應變曲線越小。這點在壓縮後期抵達流變應力時尤為明顯，根據 Su 等人[6]的發現流變應力與 Maxwell 部分的阻尼係數相關又阻尼係數可由 Eq. 2.7-66 決定，因此我們這裡假設 Eq. 2.7-66 中的 A_3 項與顆粒尺寸比例之間呈現反比關係，調整後的計算結果如圖 4.1-2，透過放大係數去調整 A_3 項能有效的調整不同尺寸顆粒後期的流變應力變化。最後前期變化的部分，主要由 Burgers 碰撞模型的其餘參數和 Hertz 模型的碰撞參數控制，經過大量的測試後證實這些參數與顆粒尺寸比例之間不存在任何簡單的正比與反比關係，因此當顆粒的尺寸發生改變時依然必須回歸到迭代法尋求合理的參數。

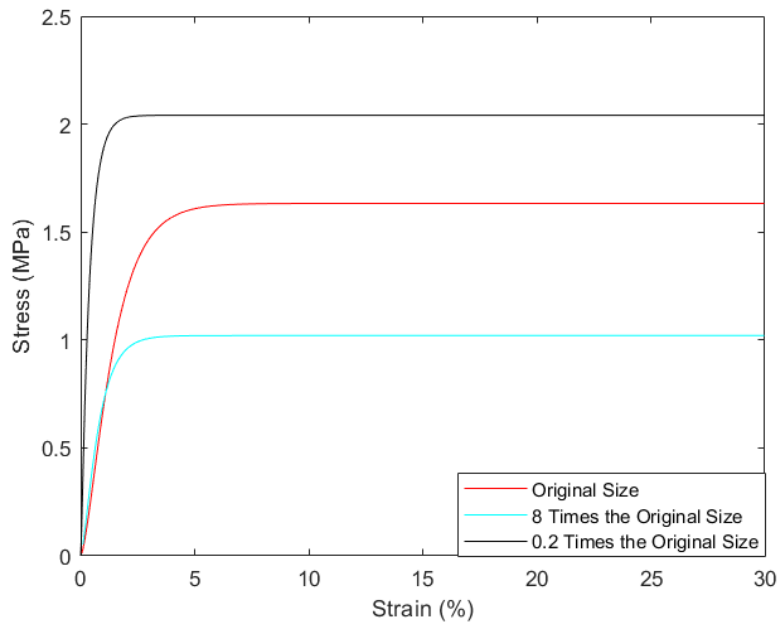


圖 4.1-1 在不同尺寸下顆粒應力應變曲線變化圖

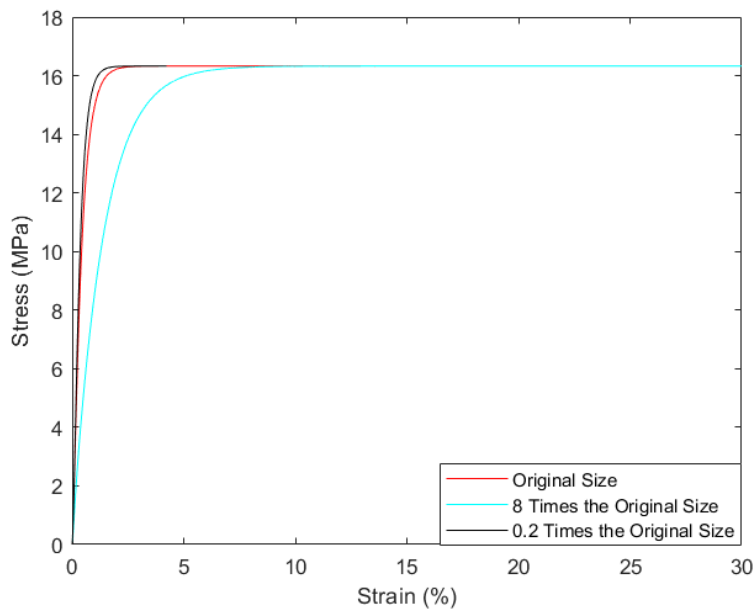


圖 4.1-2 調整 Maxwell 阻尼係數後的應力應變變化圖



4.1.2 顆粒密度對於應力應變曲線的影響

由於 Ng 等人[152]指出在某些情況下可以透過合理的增加顆粒質量進而增加時間步長以減少計算負擔，這裡我們透過增加顆粒的密度達十萬倍去觀察對於應力應變曲線的影響。圖 4.1-3 中紅色的線為 Su 等人[6]起初未經調整的 Hertz 剪切模數的應力應變曲線，藍色的部分則是 Braccini 等人[148]在排水壓縮應力應變曲線，而綠色的部分則是依據 Su 等人的顆粒以及碰撞數據將密度放大十萬倍的結果，可以看到前期應力應變曲線有軟化的現象，但在後期仍抵達相同的流變應力。而圖 4.1-4 綠色線則是本次三軸壓縮模擬使用的顆粒以及碰撞數據，靛青色線則是基於此數據放大十萬倍後的結果，可以發現到在增加 Burgers 碰撞模型中的彈性係數以及阻尼係數後，相較於先前的曲線，質量上升造成的軟化現象變得不明顯。另外 Su 等人曾提過下降剪切模數一個數量級來增加時間步長以此降低計算負擔，因此我們好奇究竟是剪切模數還是顆粒質量對時間步長的影響較大。圖 4.1-5 中分別對微觀模型中 Su 等人使用的剪切模數以及顆粒密度調整一個數量級並觀察時間步長的變化，從中能發現到調整顆粒的質量對時間步長的影響遠勝於調整剪切模數，因此可知若是能保持顆粒系統處在持續接觸且慣性碰撞不明顯的狀態時，透過增加顆粒質量能有效減少計算上的負擔。

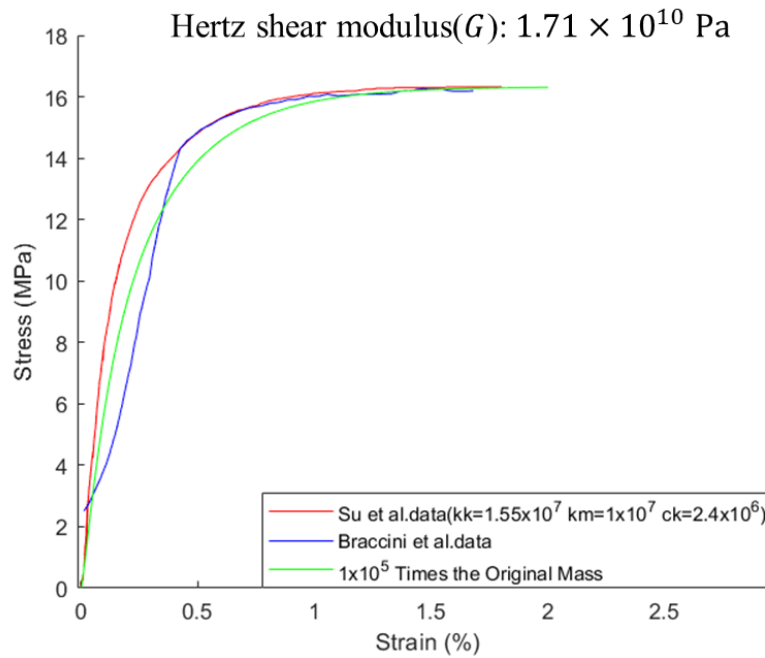


圖 4.1-3 微觀模型在剪切模數(G)為 1.71×10^{10} Pa下以 Su 等人[6]的碰撞以及顆粒數據比較密度放大十萬倍與沒放大的顆粒應力應變曲線並與 Braccini 等人[148]的實驗結果比較，其中 kk 、 ck 和 km 分別代表了 Burgers 碰撞模型中 Kelvin 部分的彈性係數、阻尼係數以及 Maxwell 部分的彈性係數。

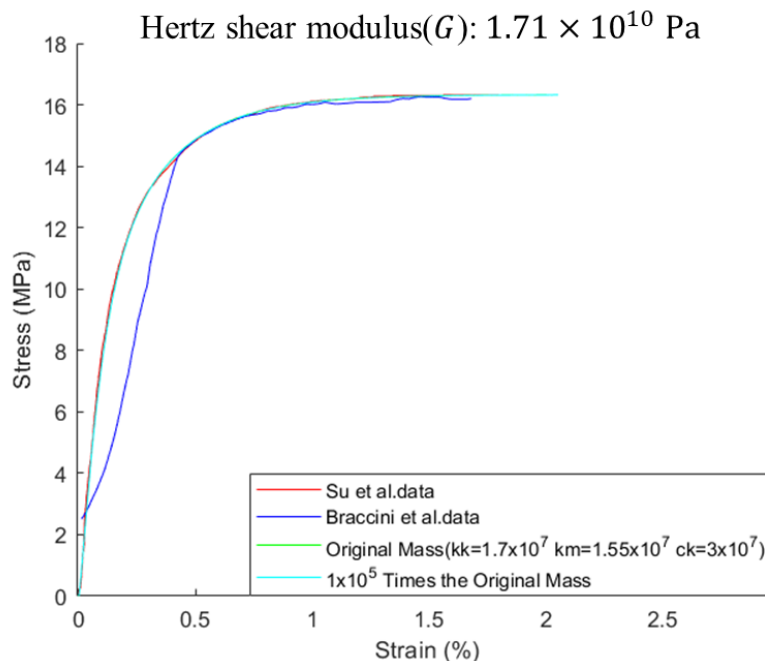


圖 4.1-4 微觀模型在剪切模數(G)為 1.71×10^{10} Pa下以本次實驗所使用的碰撞及顆粒數據比較密度放大十萬倍與沒放大的顆粒應力應變曲線並與 Braccini 等人[148]以及 Su 等人[6]的實驗結果比較，其中 kk 、 ck 和 km 分別代表了 Burgers 碰撞模型中 Kelvin 部分的彈性係數、阻尼係數以及 Maxwell 部分的彈性係數。

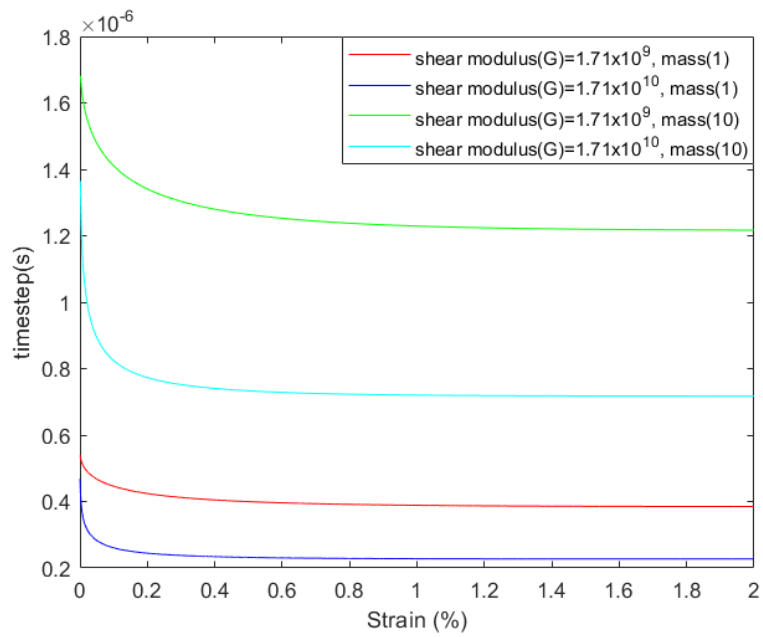
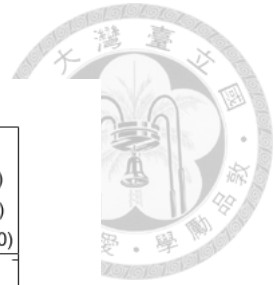


圖 4.1-5 在微觀模型中分別調整剪切模數與顆粒密度的數量級，並觀察對時間步長的影響。



4.2 三軸壓縮測試

4.2.1 三軸壓縮碰撞參數設定

在 4.1 章的討論中我們發現到了在持續接觸的顆粒系統中增加顆粒質量能夠有效的減少計算負擔的同時也能確保應力應變曲線不會發生太明顯的軟化現象。除此之外由 Eq. 2.7-69 中可計算出控制增益係數 G ，其中 K^C 為施加在牆體上的彈性係數總和，但由於顆粒分佈會隨時間變化，彈性係數的總合也會跟著改變，所以在程式中會賦予一更新頻率係數在達到特定的迴圈數後會更新一次增益係數。通常來說剪切模數越大更新的頻率也要越高，但隨之而來的是更大的計算負擔，所以這裡我們同樣選擇與 Su 等人[6]一樣將剪切模數下降一個數量級。表 4.2-1 列出本次進行三軸壓縮模擬所需之碰撞參數，該參數經由先前的微觀實驗所得。

表 4.2-1 三軸壓縮模擬測試所使用的碰撞模型參數，顆粒與牆體之間為 Hertz 模型，顆粒與顆粒之間採用 Burgers 模型。其中 Maxwell 部份的阻尼係數由 Eq. 2.7-66 得出，且由於溫度的不同在 550°C 時阻尼係數為 $9.05 \times 10^6 \text{ N} \cdot \text{s}/\text{m}$ ，而在 570°C 下為 $7.88 \times 10^6 \text{ N} \cdot \text{s}/\text{m}$ 。

參數	值	單位
Hertz 模型蒲松比(ν)	0.384	-
Hertz 模型法向與切向臨界阻尼比(β)	0.2	-
Hertz 剪切模數(G)	1.71×10^9	Pa
Burgers 模型 Maxwell 部分法向/切向接觸彈性係數 (k_1)	1.70×10^7	N/m
Burgers 模型 Maxwell 部分法向/切向接觸阻尼係數 (η_1)	Eq. 2.7-66	$\text{N} \cdot \text{s}/\text{m}$
Burgers 模型 Kelvin 部分法向/切向接觸彈性係數 (k_2)	1.55×10^7	N/m
Burgers 模型 Kelvin 部分法向/切向接觸阻尼係數 (η_2)	3.0×10^6	$\text{N} \cdot \text{s}/\text{m}$
牆與顆粒間摩擦係數(μ_{S-W})	0.0	-
顆粒與顆粒間摩擦係數(μ_{S-S})	0.01	-



4.2.2 15Cu-570°C 三軸壓縮結果

圖 4.2-1(a)和(b)為在完成施加 300kPa 圍壓後，將三維的碰撞和力量分佈投影到二維的玫瑰圖和力方向，其分別標示了在 xy 、 yz 和 xz 平面上接觸數目和力在各方向上的分佈，可以觀察到在圍壓施加完成後的接觸數量以及力量在各方向上的分佈相當均勻整體呈現圓形的對稱分布，顯示系統已成功達成施加等向圍壓的設定目標。另外圖 4.2-2 則為 600kPa 圍壓下的玫瑰圖和力方向，整體顆粒系統的接觸與力量分佈均勻且與先前 300kPa 的模擬相比其各方向上力量和接觸數目皆大於 300kPa 的模型。

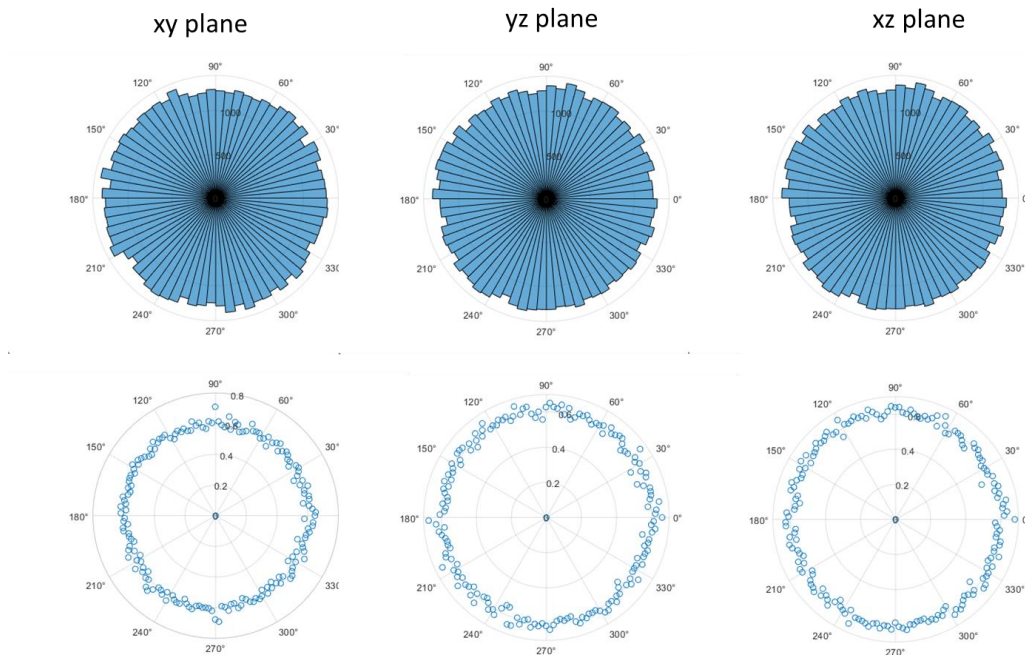


圖 4.2-1 300kPa-570°C 模型在完成施加圍壓後(a)顯示各方向上接觸分佈的玫瑰圖以及(b)顯示力量分佈的力方向。

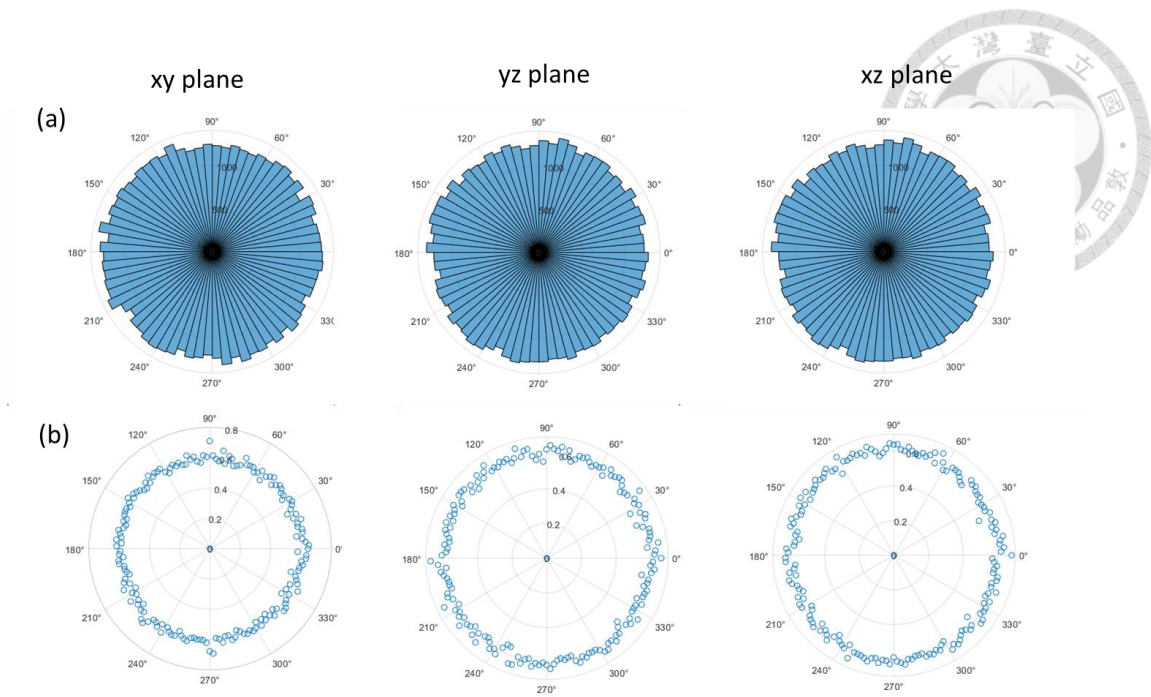


圖 4.2-2 600kPa-570°C 模型在完成施加圍壓後(a)顯示各方向上接觸分佈的玫瑰圖以及(b)顯示力量分佈的力方向。

圖 4.2-3 和圖 4.2-4 分別代表了圍壓為 300kPa 和 600kPa 的模型在受到剪切力後的 3D 接觸與力量分佈圖，其中半徑越長代表在該方向上的接觸數目越多，而顏色越黃則代表在該放向上的力量越大。從圖中能觀察到起初顆粒系統內接觸分佈為圓形，但隨著 z 軸方向上的壓頭向下施加偏應力，整體的分佈開始朝向 z 軸集中呈現橢圓形的形狀。其中可以觀察到圍壓越高其對 z 軸的取向性也越高。

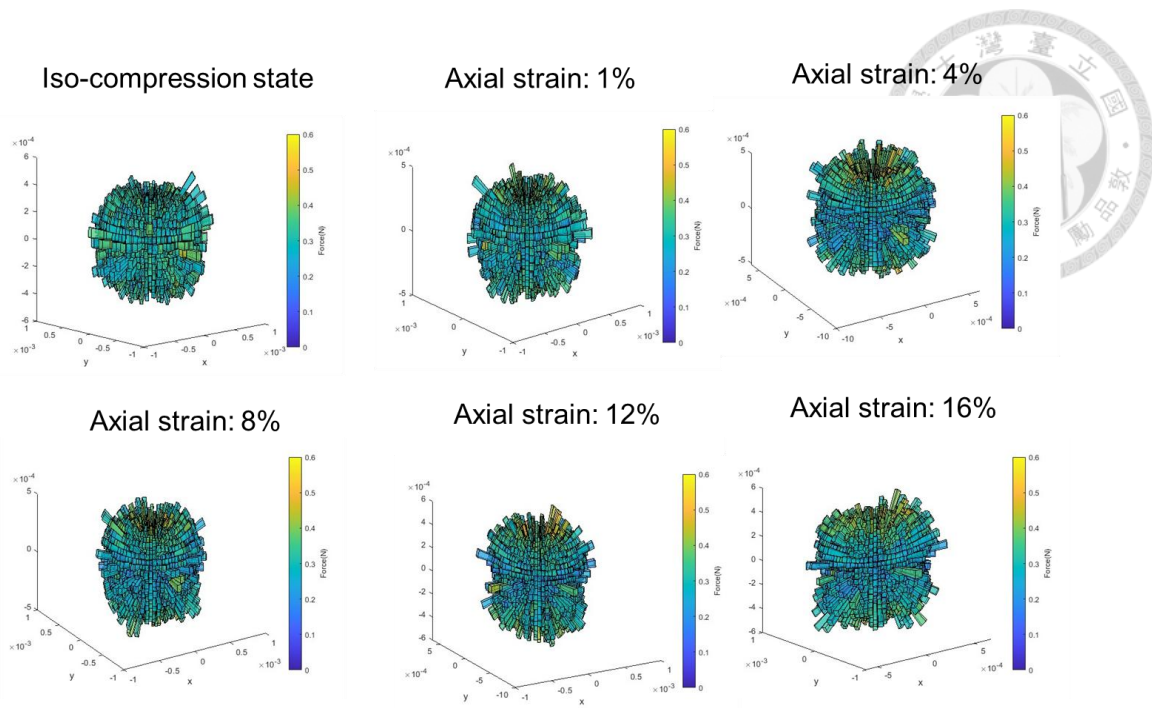


圖 4.2-3 300kPa-570°C 模型三維接觸方向與力量分布圖。

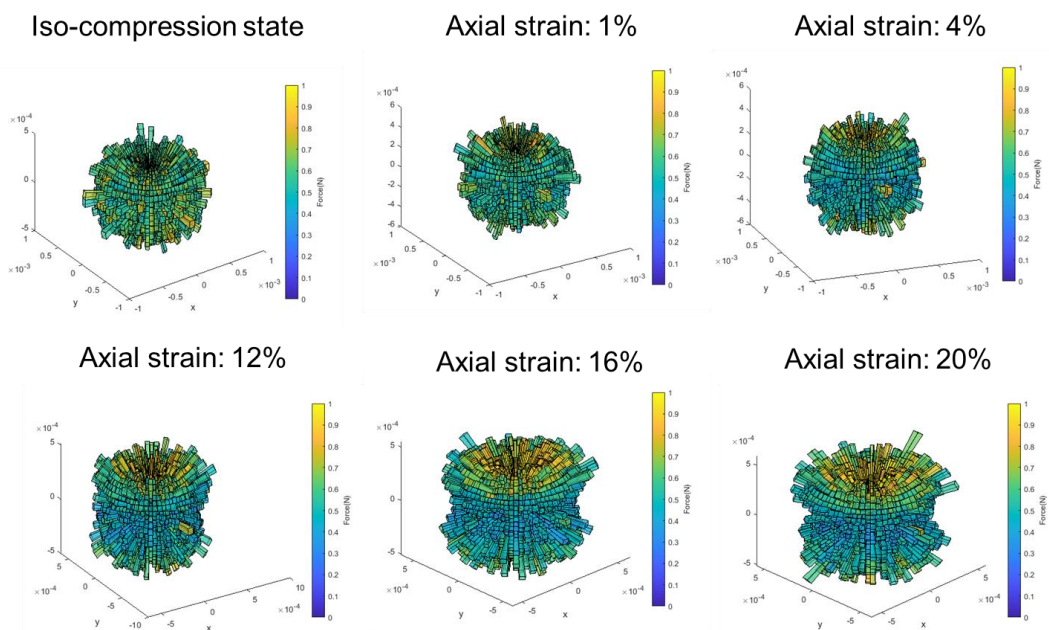


圖 4.2-4 600kPa-570°C 模型三維接觸方向與力量分布圖。

由於三維的情況下很難量化接觸以及力量的分佈，因此我們還是將其投影到二維的平面上分析。圖 4.2-5 和圖 4.2-6 為 300kPa 和 600kPa 的二維碰撞分佈玫瑰圖，其中在 xy 平面上由於固定圍壓因此整個剪切過程中並無太大變化，但在 xz 和 yz 平面上則可觀察到 z 軸的接觸明顯增加並隨著應變的增加整體接觸分佈呈現 8

字形的形狀。另外從中也能看到在圍壓越高的情況下整體接觸的取向性也越明顯，與先前在圖 4.2-3 和圖 4.2-4 觀察的相同。

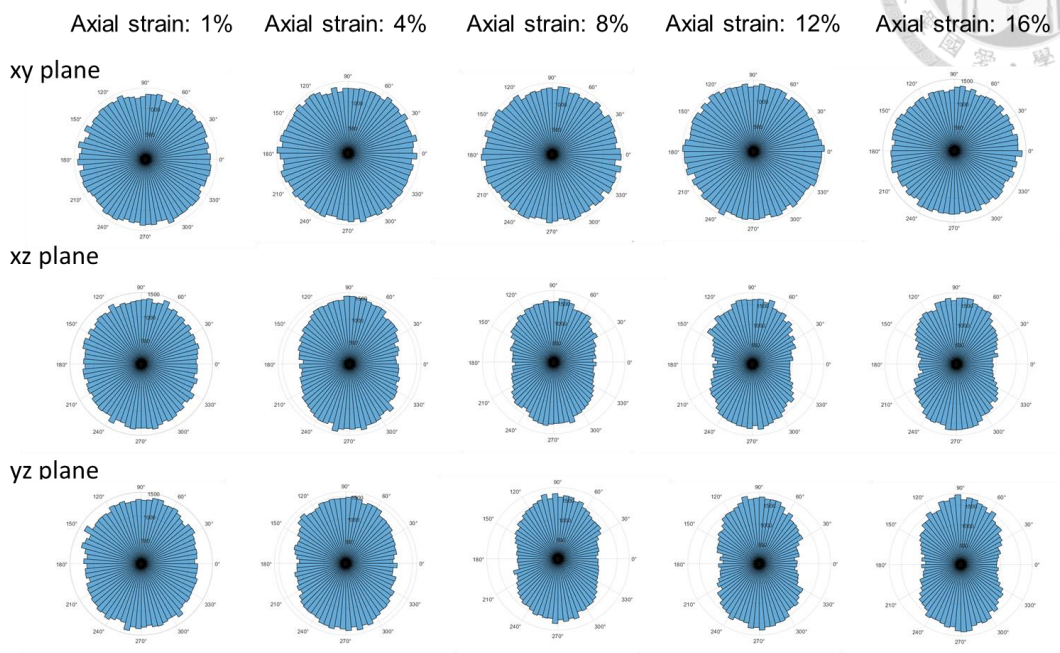
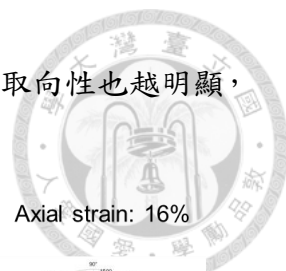


圖 4.2-5 300kPa-570°C 模型的投影二維接觸分佈圖。

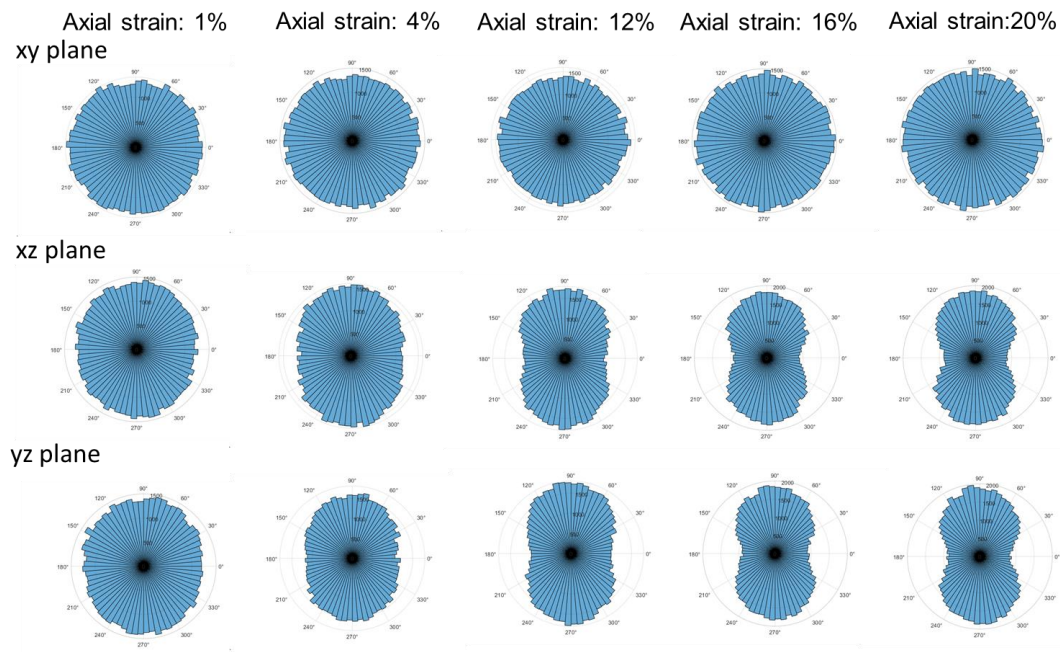


圖 4.2-6 600kPa-570°C 模型的投影二維接觸分佈圖。

另外圖 4.2-7 和圖 4.2-8 分別為 300kPa 和 600kPa 的二維平均力方向圖，其分佈的變化在剪切應變 1%時即可明顯的看到力量的分佈開始出現明顯的取向性，但



隨著剪切應變的增加，整體的分佈變化不大，力量並沒有持續在 z 軸方向上集中，同時在高圍壓的模型中可以看到，力量更容易聚集在 z 軸方向上，顆粒系統在力量上的取向性變得更加明顯。

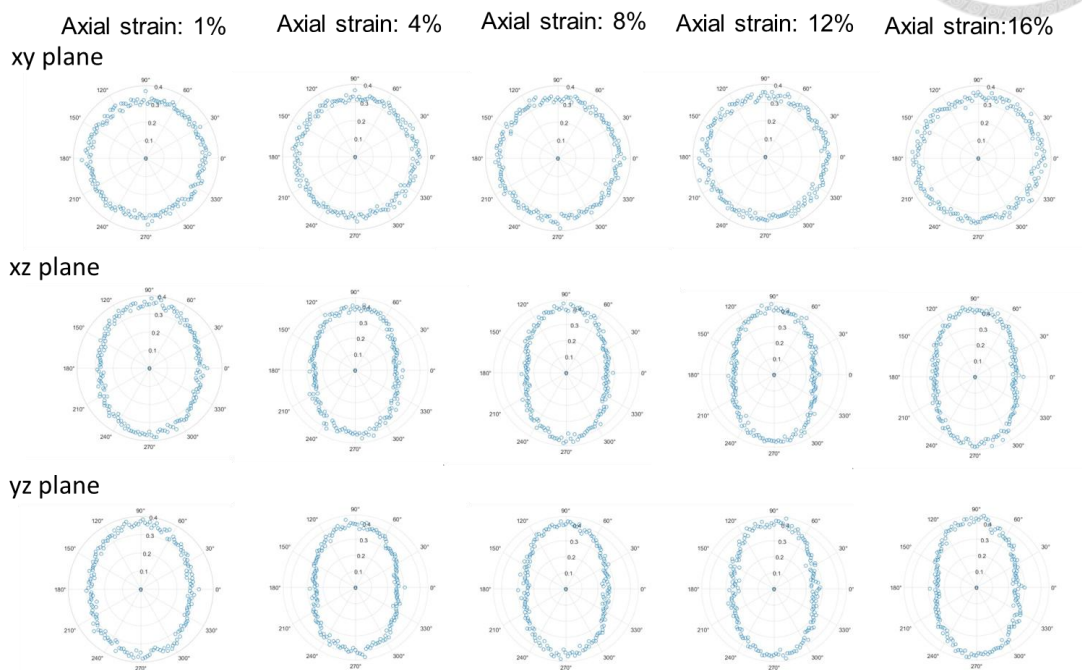


圖 4.2-7 300kPa-570°C 模型的投影二維力量分佈圖。

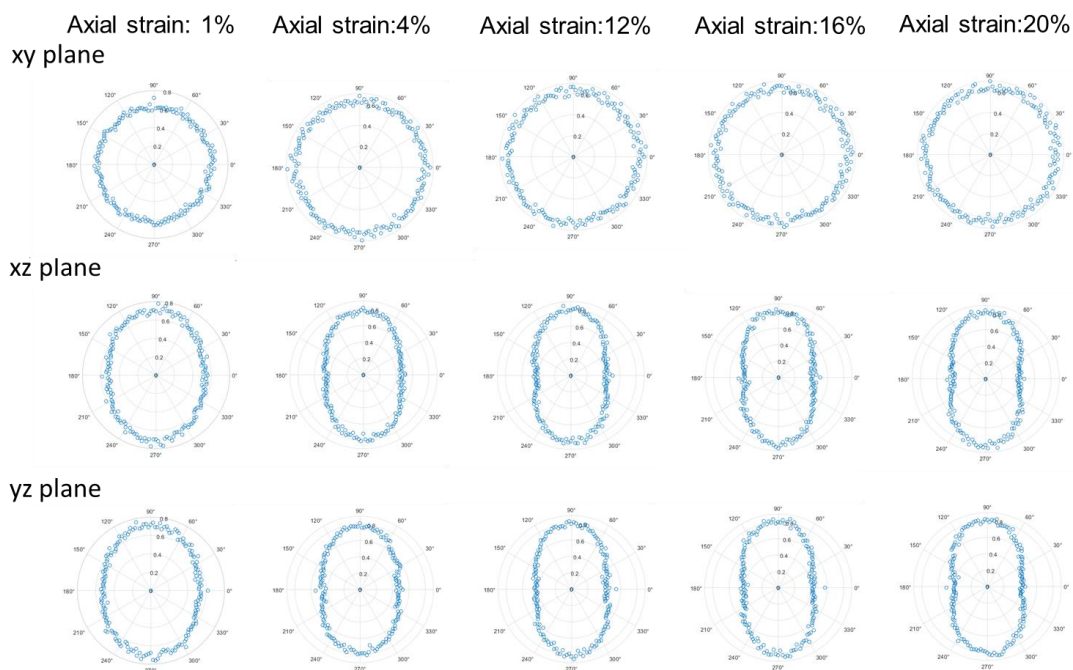


圖 4.2-8 600kPa-570°C 模型的投影二維力量分佈圖。

圖 4.2-9 為 300kPa 模型與 Altuhafi 等人[107]的三軸壓縮實驗隨剪切應變與偏

應力之間的關係比較，其中計算方法列在 Eq. 2.5-2。能清楚看到模型計算後的偏應力低於實驗所做出來的結果，這裡推測是因為 Hertz 模型中的剪切模數為了計算效率降低了一個數量級導致，但是整體的曲線趨勢大致相同，在進入臨界狀態後偏應力維持在一定值。這種現象在圖 4.2-10 的 600kPa 模型中也有出現，同時計算出來的偏應力曲線高於 300kPa 的計算結果，這與 Altuhafi 等人[107]做出來的實驗結果相符。

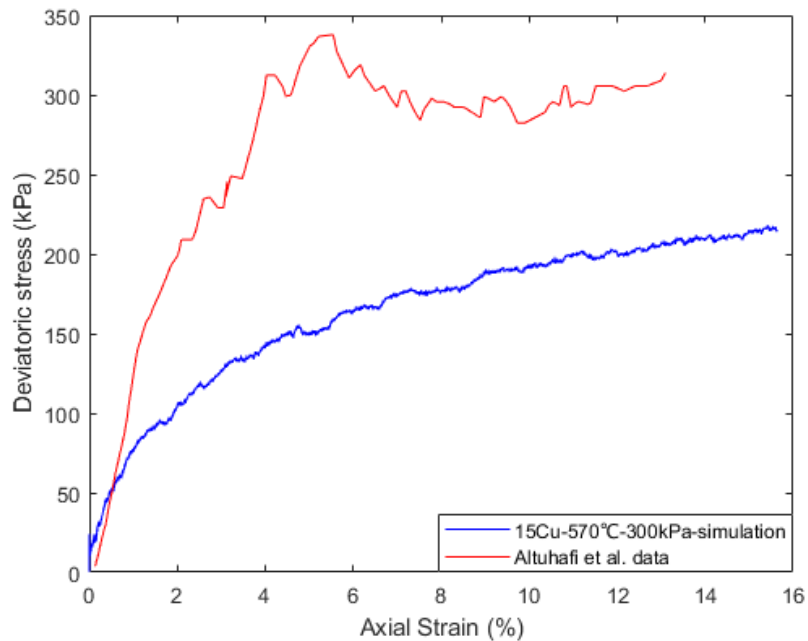


圖 4.2-9 300kPa-570°C 模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的偏應力曲線變化比較圖。

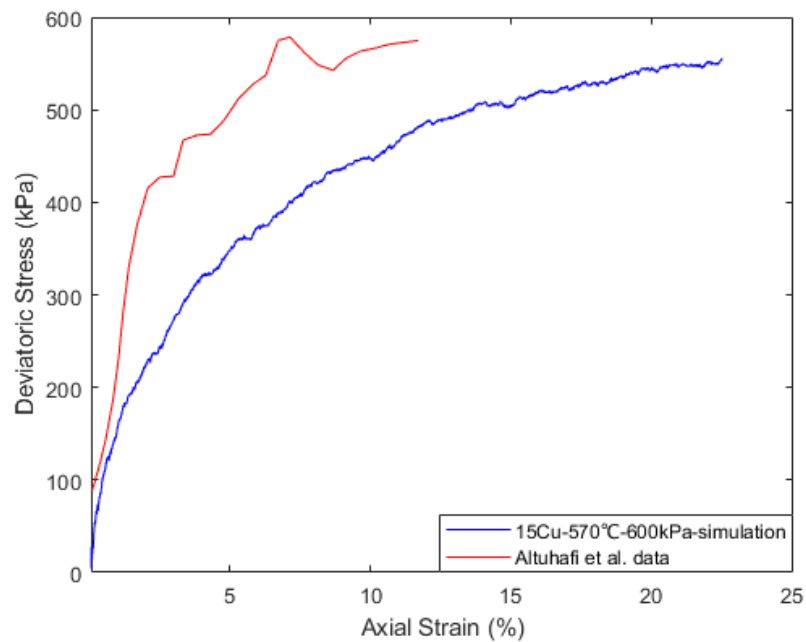


圖 4.2-10 600kPa-570°C模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的偏應力曲線變化比較圖。

另一方面圖 4.2-11 和圖 4.2-12 分別為 300kPa 和 600kPa 模型的體積應變變化圖，這裡體積應變正號代表壓縮，而負號則代表膨脹。從這兩張圖中可以看到體積應變明顯高於 Altuhafi 等人[107]的實驗結果，不過整體曲線的趨勢與實驗結果相符，在進入臨界狀態後體積應變不在變化，且圍壓越高的顆粒系統的體積應變也越大。

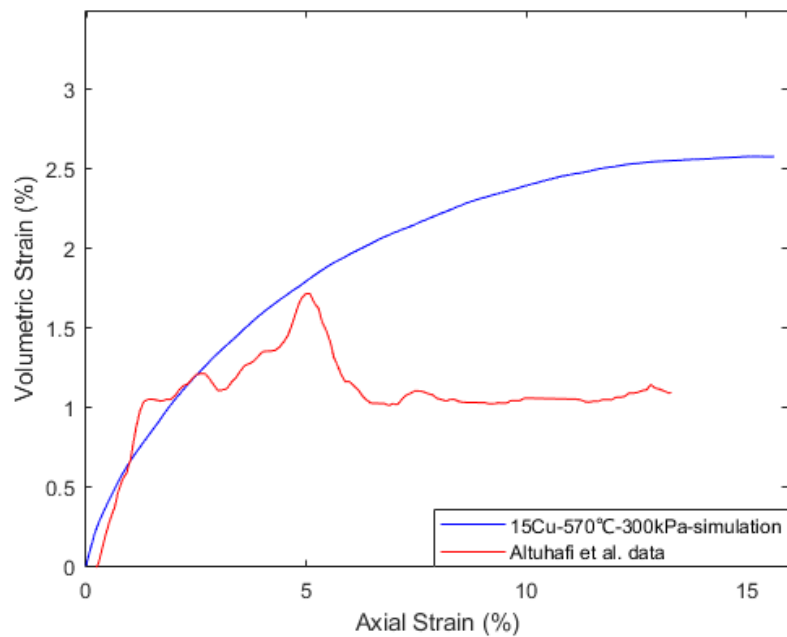
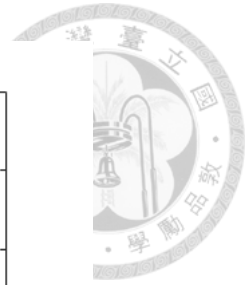


圖 4.2-11 300kPa-570°C 模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的體積應變曲線變化比較圖。

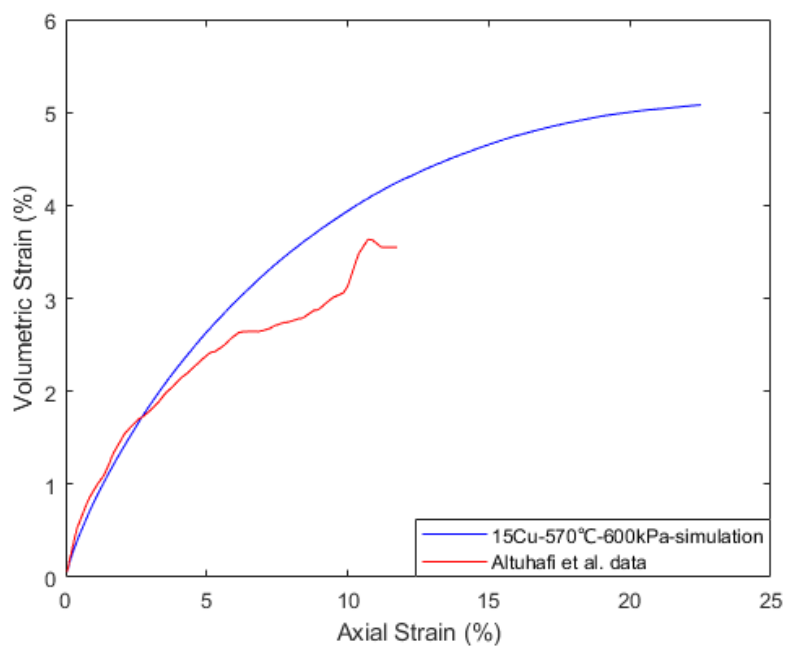


圖 4.2-12 600kPa-570°C 模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的體積應變曲線變化比較圖。

抗剪切角在顆粒系統中代表了顆粒系統受剪切力後抵抗剪切破壞的能力指標，這在 2.6.3 節中介紹莫爾破壞理論中有介紹過，其中其計算方法如下：



$$\sin \varphi = \frac{3 \left(\frac{q}{p} \right)}{6 + \left(\frac{q}{p} \right)}$$

其中 q 和 p 分別為偏應力和平均有效應力，圖 4.2-13 和圖 4.2-14 分別為 300kPa 和 600kPa 模型計算的抗剪角變化曲線，與先前偏應力曲線的趨勢很像，整體曲線變化皆小於實驗的結果，且進入臨界狀態後抗剪切角一樣不發生變化，且隨著圍壓越高抗剪切角曲線也越高。

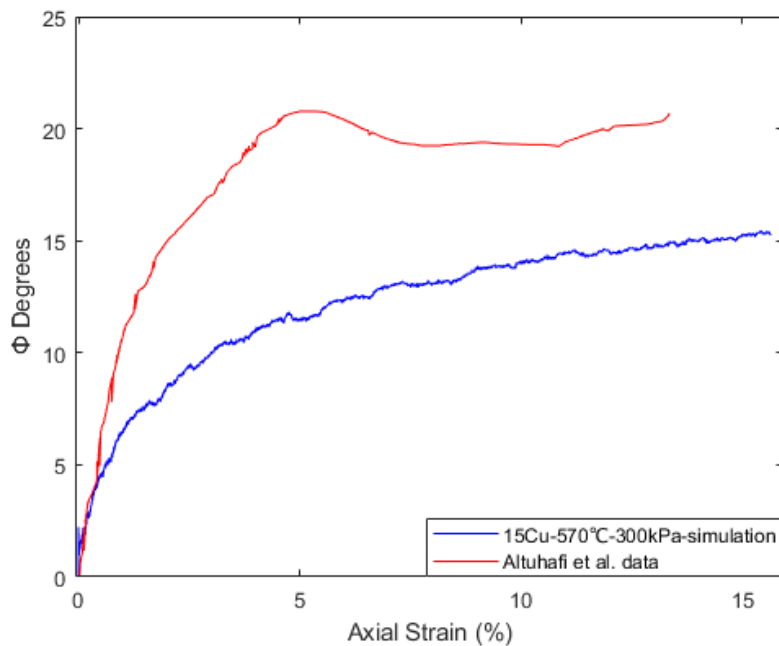


圖 4.2-13 300kPa-570°C 模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的抗剪角曲線變化比較圖。

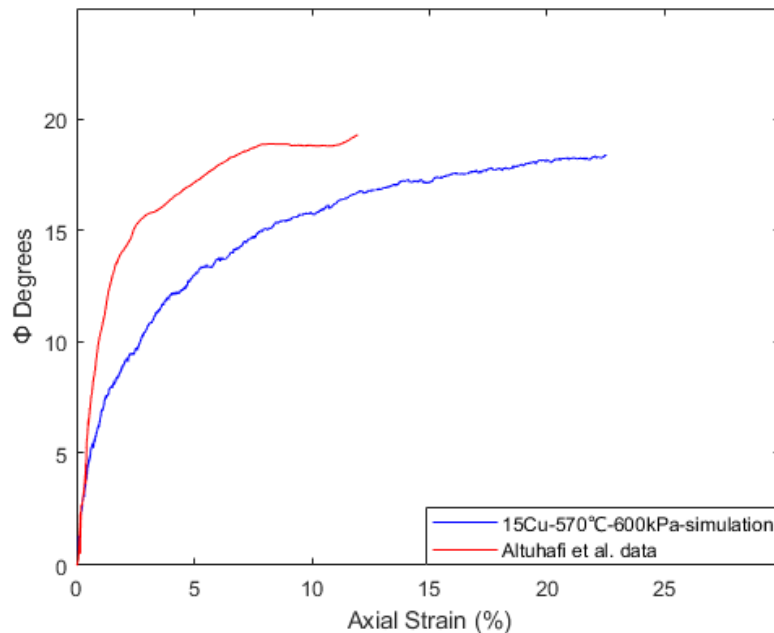


圖 4.2-14 600kPa-570°C 模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的抗剪角曲線變化比較圖。

在傳統的顆粒系統分析研究時，除了上述透過玫瑰圖和力的方向觀察外，根據 Gong & Zha 等人以及 Thornton 等人[160, 161]的論文提出了機械配位數(mechanical coordination number)也是常用於研究顆粒系統內部稠密程度以及應力鏈是否穩定的重要指標，其計算方法如下：

$$Z_m = \frac{2C - N_1}{N_t - N_0 - N_1} \quad \text{Eq. 4.2-2}$$

其中 C 為顆粒系統內的總接觸數目、 N_t 為總顆粒數、 N_1 為只有單接觸的顆粒數目而 N_0 則為沒有接觸的顆粒數目。圖 4.2-15 和圖 4.2-16 為 300kPa 和 600kPa 模型的機械配位數隨剪切應變的變化，可以觀察到配位數的變化在初期穩步成長直到進入臨界狀態後維持一穩定值，這裡可以對應到先前的體積應變曲線圖，同時也能看到圍壓的增加配位數變化曲線也越大。

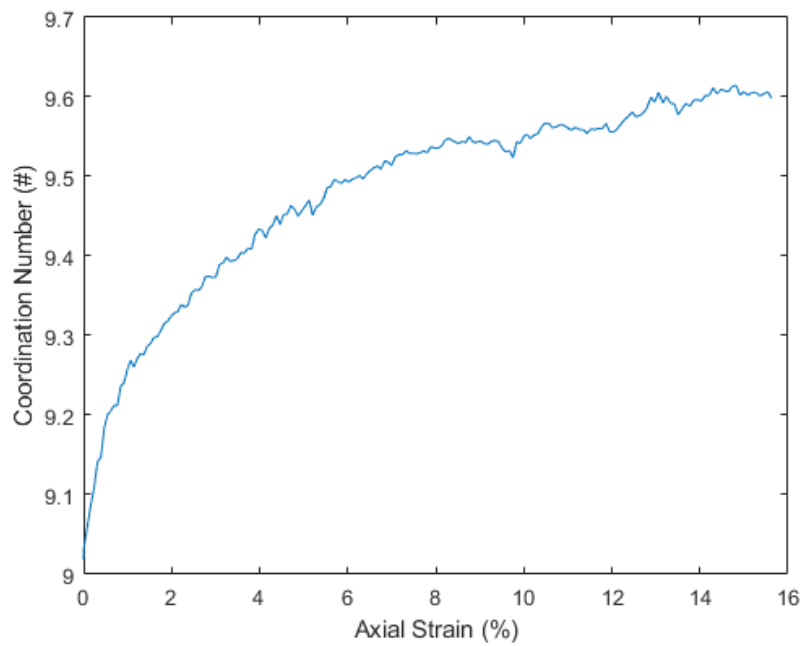
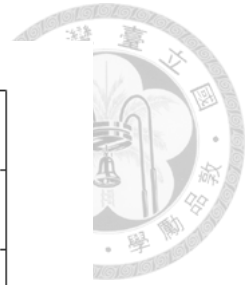


圖 4.2-15 300kPa-570°C 模型的機械配位數變化圖。

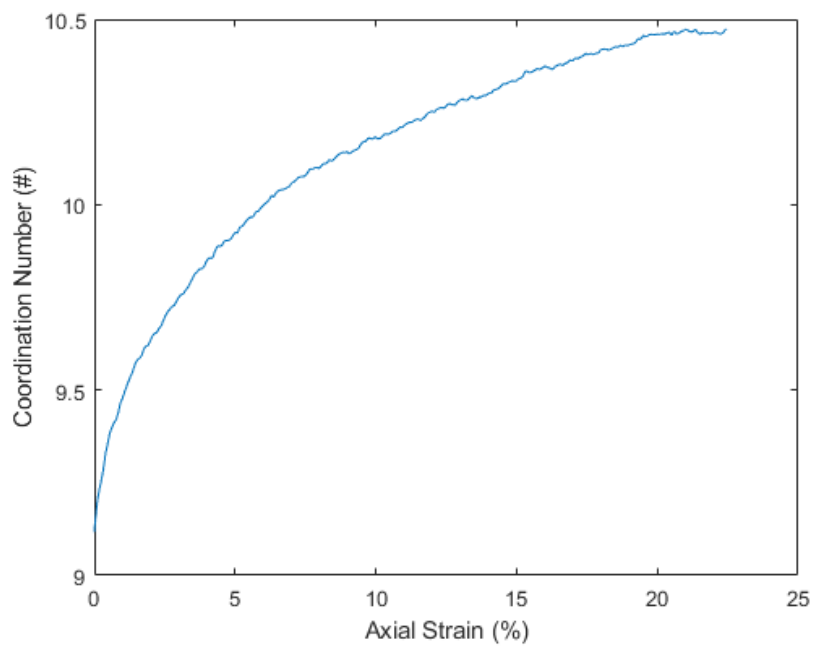


圖 4.2-16 600kPa-570°C 模型的機械配位數變化圖。



除此之外為了探討顆粒系統受到剪切後的結構各向異向性，這裡引入 Oda 等人[162] 提出的結構張量(fabric tensor)以揭示顆粒在空間中的排列方式，Yimsiri 等人[163]指出結構張量所顯示的特定結構取向會在剪切過程中出現較高的靜態強度。其計算方法如下：

$$\varphi_{ij} = \frac{1}{C} \sum_1^c n_i n_j \quad \text{Eq. 4.2-3}$$

其中 φ_{ij} 為結構張量、 n_i 和 n_j 分別為直於接觸面的單位法向量分量，最後 C 為總接觸數。圖 4.2-17 和圖 4.2-18 分別為 300kPa 和 600kPa 的模型其在 x、y 和 z 的 fabric tensor 隨剪切應變的曲線變化圖，從圖 4.2-17 可以看到由於壓頭從 z 軸方向上向下移動，因此可以看到 z 軸方向上的結構張量隨應變增加，但在 x 和 y 方向則因為維持固定圍壓，其結構張量隨應變下降，可對應到先前的二維碰撞分佈圖。這種現象在圖 4.2-18 的 600kPa 的模型中也能看到，不過有趣的是雖然圍壓增加了但是這兩者計算出來的結構張量曲線相似，並沒有因為圍壓的增加而使曲線增加的現象，同時也能發現到隨著顆粒系統進入臨界狀態後結構張量也會維持在一穩定值。

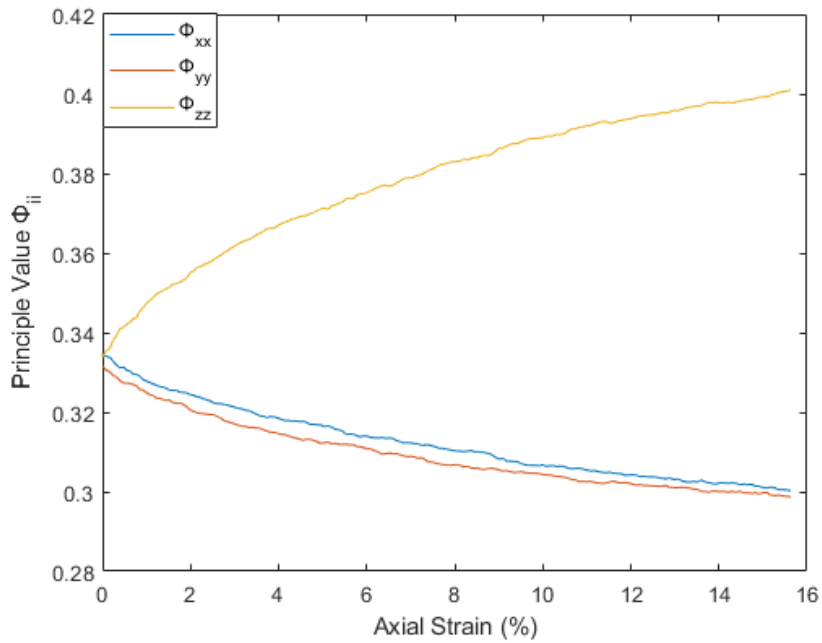
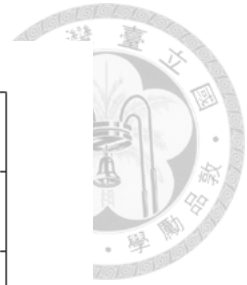


圖 4.2-17 300kPa-570°C 模型在 x、y 和 z 的 fabric tensor 曲線變化圖。

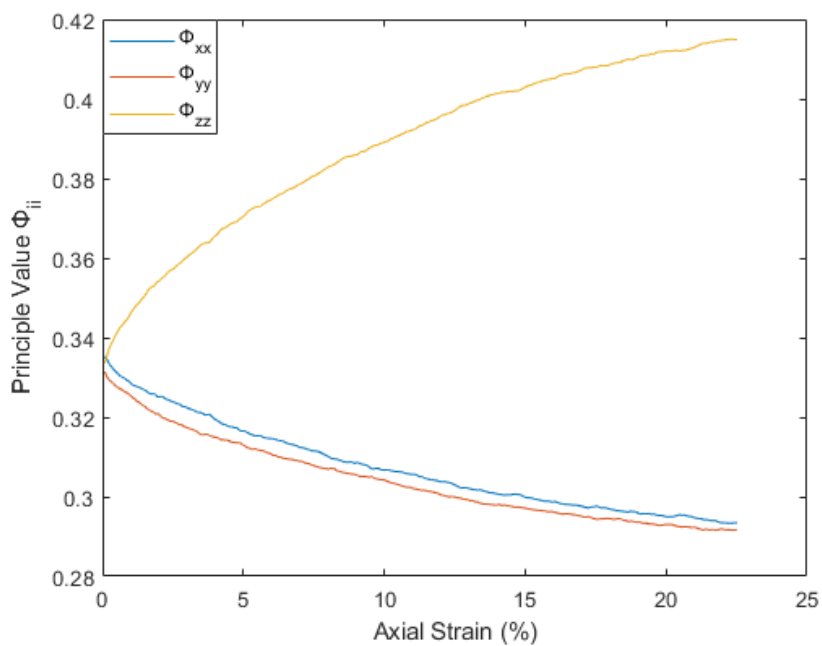


圖 4.2-18 600kPa-570°C 模型在 x、y 和 z 的結構張量曲線變化圖。



4.2.3 15Cu-550°C 三軸壓縮結果

這裡一樣我們會首先討論施加完圍壓後內部接觸與力在顆粒系統內部的分佈。圖 4.2-19 為 15Cu-550°C 高固相分率模型在施加完圍壓後的玫瑰圖和力方向圖，相較於 15Cu-570°C 低固相分率模型的圖 4.2-1，可以觀察到整體的碰撞分佈其實與 15Cu-570°C 模型的分佈差不多，但在力量上可以清楚看到整體分佈明顯較大。

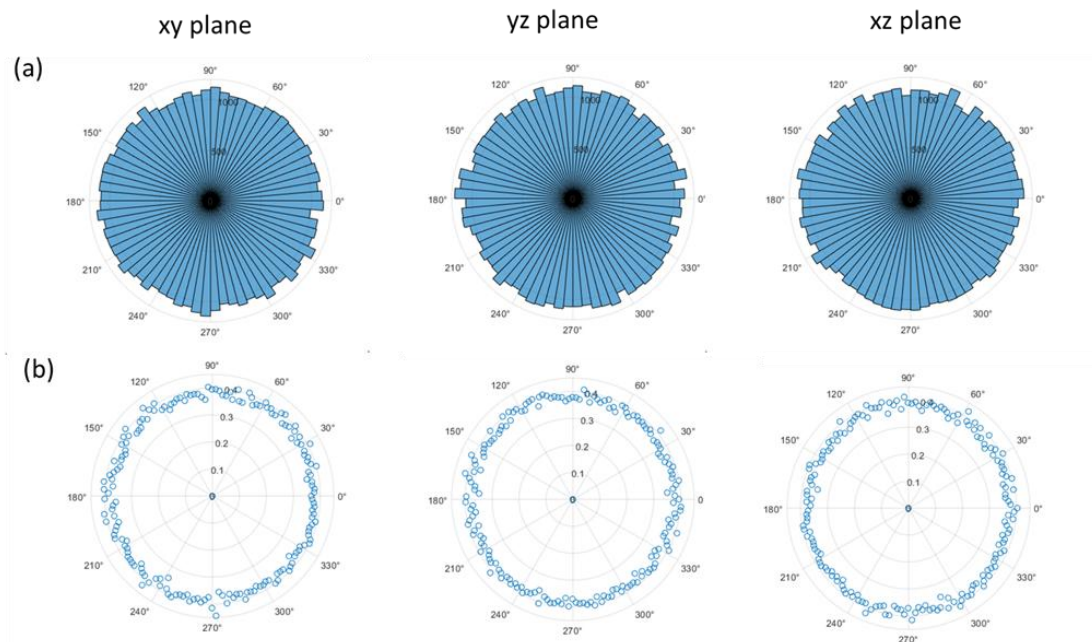


圖 4.2-19 300kPa-550°C 模型在完成施加圍壓後(a)顯示各方向上接觸分佈的玫瑰圖以及(b)顯示力量分佈的力方向。

隨後剪切階段的部分，圖 4.2-20 顯示了三維接觸與力量隨剪切應變的分佈變化，這裡一樣能看到隨著剪切應變其接觸分佈開始集中於 z 軸方向增加，整體的接觸分佈呈現橢圓形與先前 570°C 模型所觀察到的一樣。

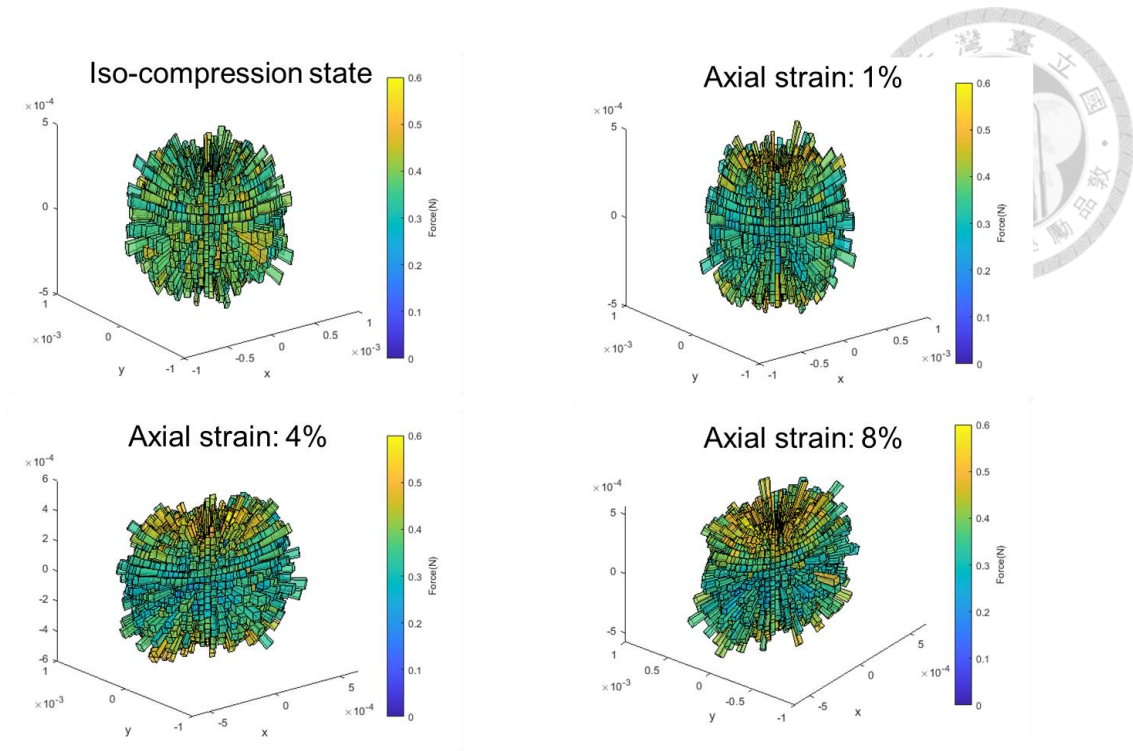


圖 4.2-20 300kPa-550°C 模型三維接觸方向與力量分布圖。

圖 4.2-21 和圖 4.2-22 分別為二維的玫瑰圖和力方向，與低固相分率模型的圖 4.2-5 和圖 4.2-7 相比在玫瑰圖中其接觸變化的取向性變得更加明顯，另外在力方向圖中與先前相同圍壓的 300kPa-570°C 模擬結果相比可以發現受到剪切後顆粒系統內的力量分佈變的更加極端，在 z 軸方向上所承受的力也更多。

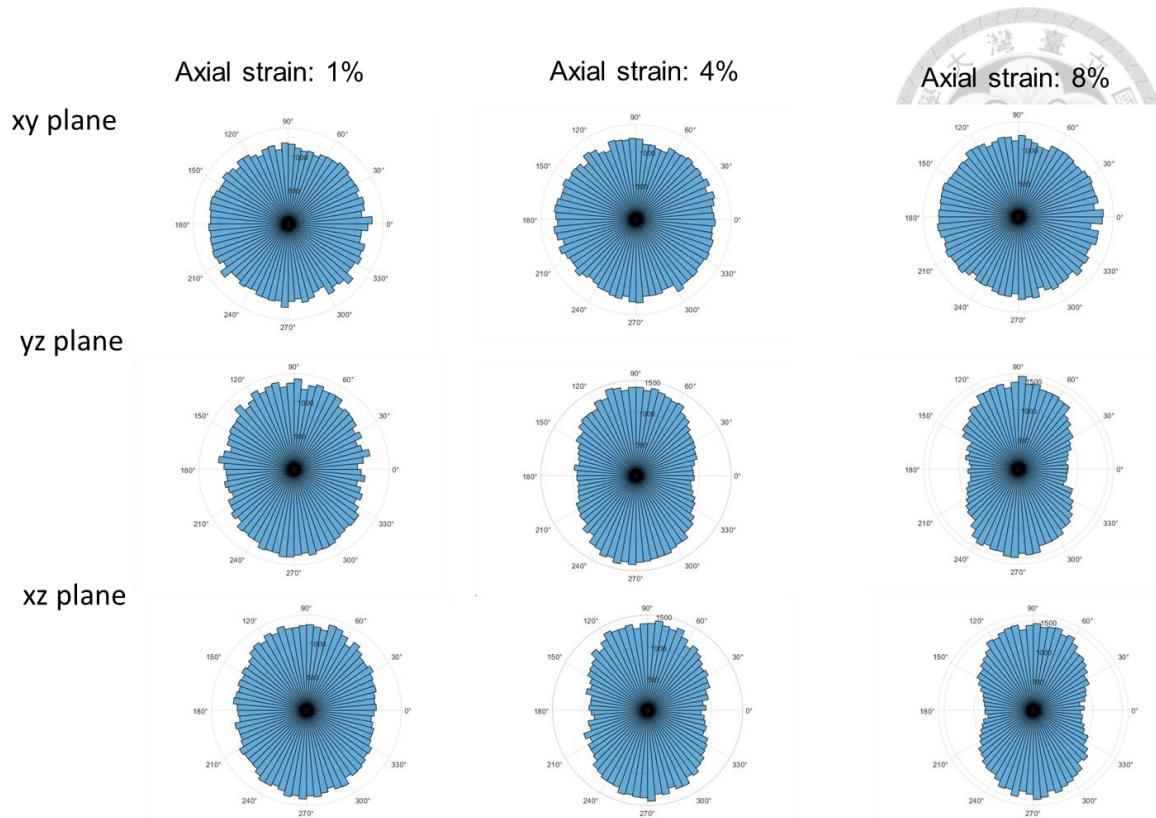


圖 4.2-21 300kPa-550°C模型的投影二維接觸分佈圖。

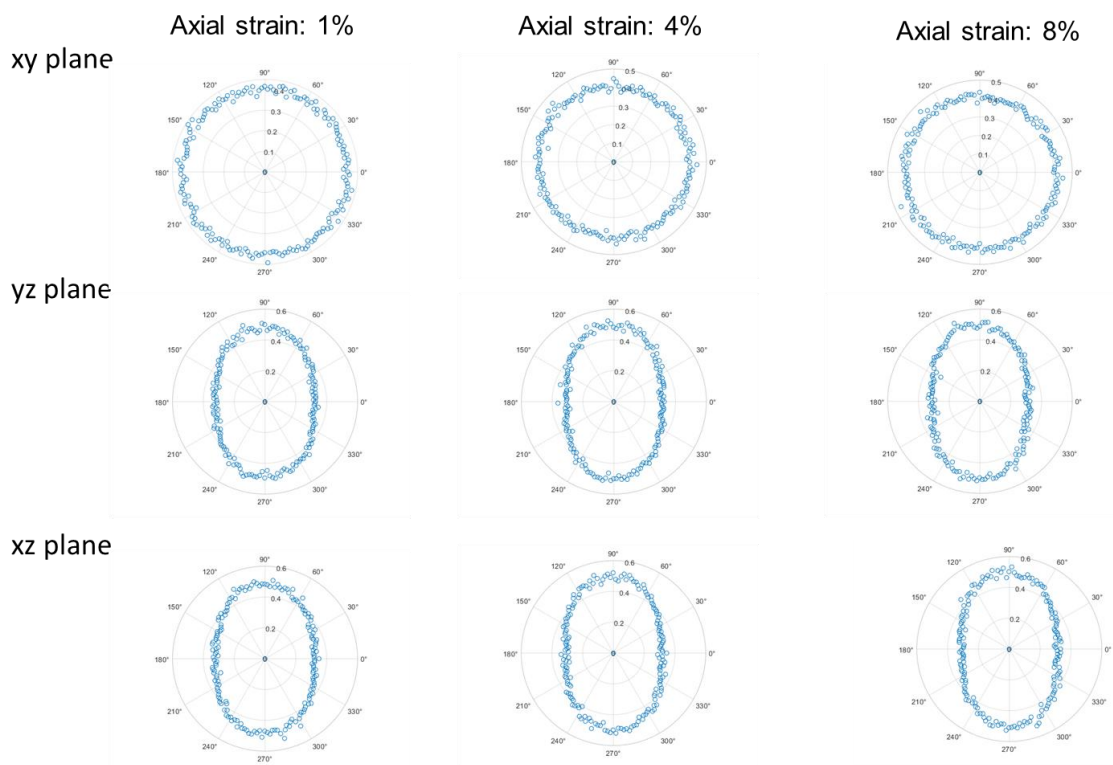


圖 4.2-22 300kPa-550°C模型的投影二維力量分佈圖。

接著我們一樣將計算出來的偏應力與 Altuhafi 等人[107]的實驗比較，圖 4.2-23 中可以看到在實驗初期會出現偏應力峰，隨後快速下降並維持在一穩定值其原因可看 2.5.3 節，然而在模擬的結果中曲線並沒有發現類似的現象，偏應力曲線反而更像先前 570°C 模型的結果。另外在圖 4.2-24 的體積應變曲線中可以看到模型在此次三軸壓縮的前期剪切階段中並沒有出現如 Altuhafi 等人[107]實驗中所出現的膨脹，因此我們也對體積應變曲線進行斜率分析，結果呈現在圖 4.2-25 中，從圖中能發現到斜率大約在應變接近 0.06 時就已降至 0，隨後整體的斜率就在 0 之間來回振盪，代表體積應變已趨近於一穩定值，顆粒系統似乎進入了臨界狀態，造成這種現象的推測原因可以詳見 3.4.3 節，因此我們將直接跳到下一節討論混合模型的計算結果。

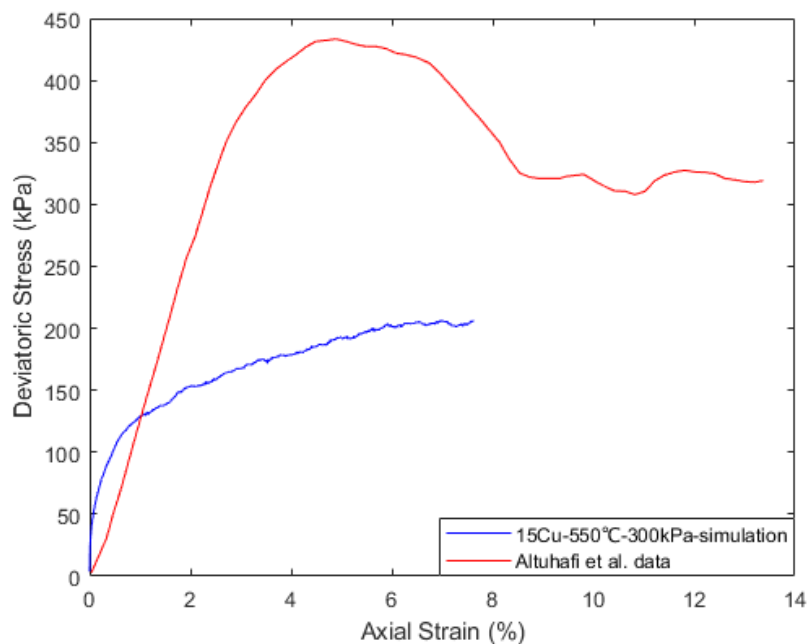


圖 4.2-23 300kPa-550°C 模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的偏應力曲線變化比較圖。

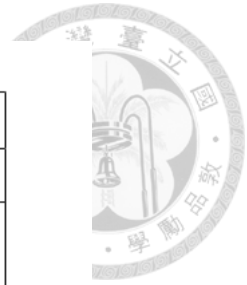


圖 4.2-24 300kPa-550°C 模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的體積應變曲線變化比較圖。

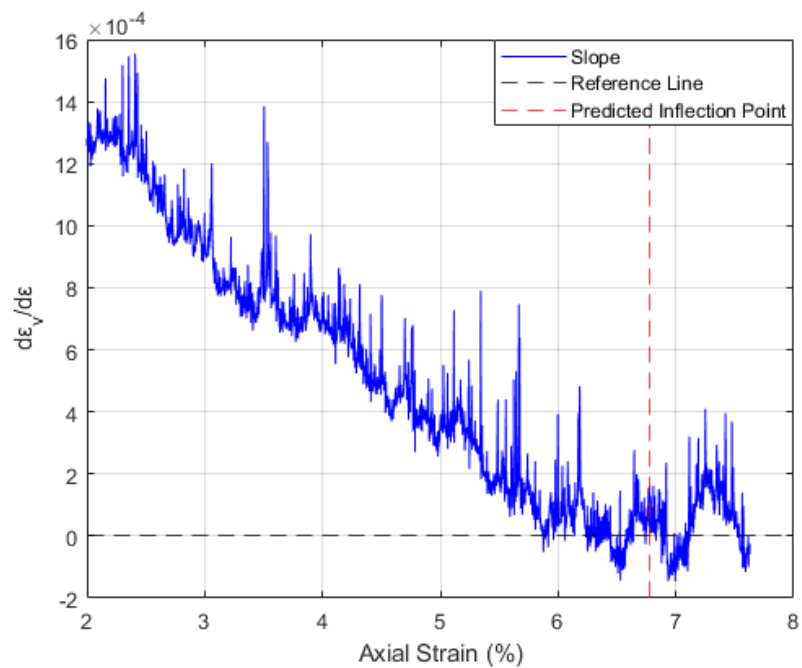


圖 4.2-25 300kPa-550°C 模型的體積應變與剪切應變斜率變化圖。



4.2.4 混合模型

承如上一節所說，由於在分析體積應變時並沒有發現到顆粒系統出現剪切誘發的現象，因此我們更改了碰撞模型的設置，全新的碰撞參數被列在表 4.2-2 中，並重新模擬了一次 550°C 模型的三軸壓縮測試。

表 4.2-2 550°C 混合碰撞模型所使用的碰撞參數表。

參數	值	單位
Hertz 模型蒲松比(ν)	0.384	-
Hertz 模型法向與切向臨界阻尼比(β)	0.2	-
Hertz 剪切模數(G)	1.71×10^9	Pa
Burgers 模型 Maxwell 部分法向接觸彈性係數 (k_1)	1.70×10^7	N/m
Burgers 模型 Maxwell 部分法向接觸阻尼係數 (η_1)	Eq. 2.7-66	N · s/m
Burgers 模型 Kelvin 部分法向接觸彈性係數 (k_2)	1.55×10^7	N/m
Burgers 模型 Kelvin 部分法向接觸阻尼係數 (η_2)	3.0×10^6	N · s/m
切向與法向比值	0.3	-
牆與顆粒間摩擦係數(μ_{S-W})	0.0	-
牆與顆粒間摩擦係數(μ_{S-S})	0.01	-

圖 4.2-26 顯示了混合模型在施加圍壓後的二維玫瑰圖和力方向。與之前的 550°C 傳統模型相比，顆粒系統內的接觸分佈差異不大但在應力分佈方面則略低於先前的傳統模型與 300kPa-570°C 模型的分佈類似。

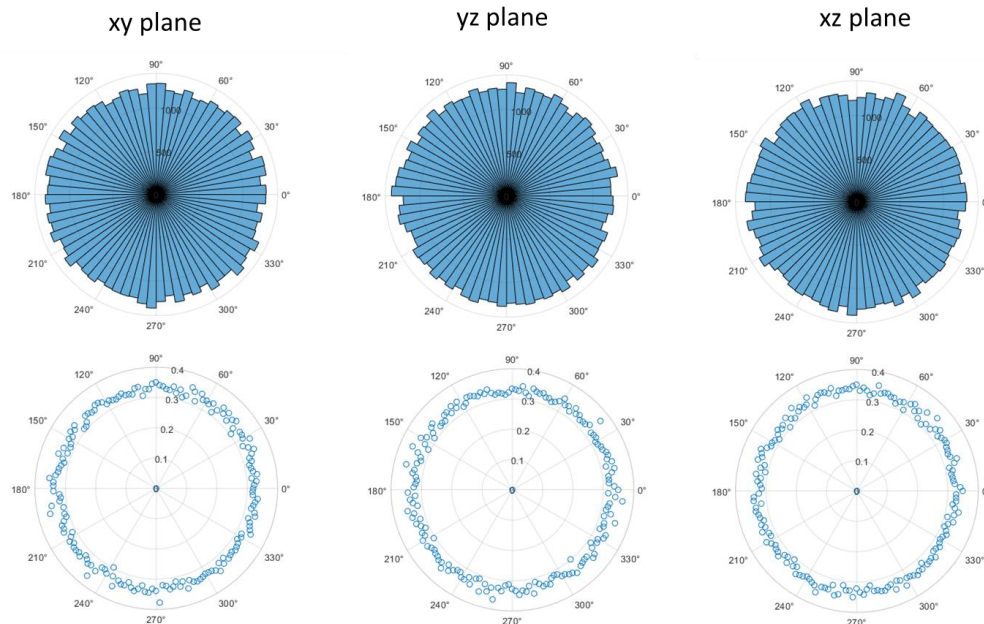


圖 4.2-26 300kPa-550°C 混合模型在完成施加圍壓後(a)顯示各方向上接觸分佈的玫瑰圖以及(b)顯示力量分佈的力方向。

圖 4.2-27 記錄了混合模型在剪切階段的三維接觸與力量變化，與之前傳統的模型相比從顏色判斷整體力學分佈似乎較小，不過接觸上的分佈則與之前相同隨著剪切應變增加整體分佈越趨近於橢圓形。

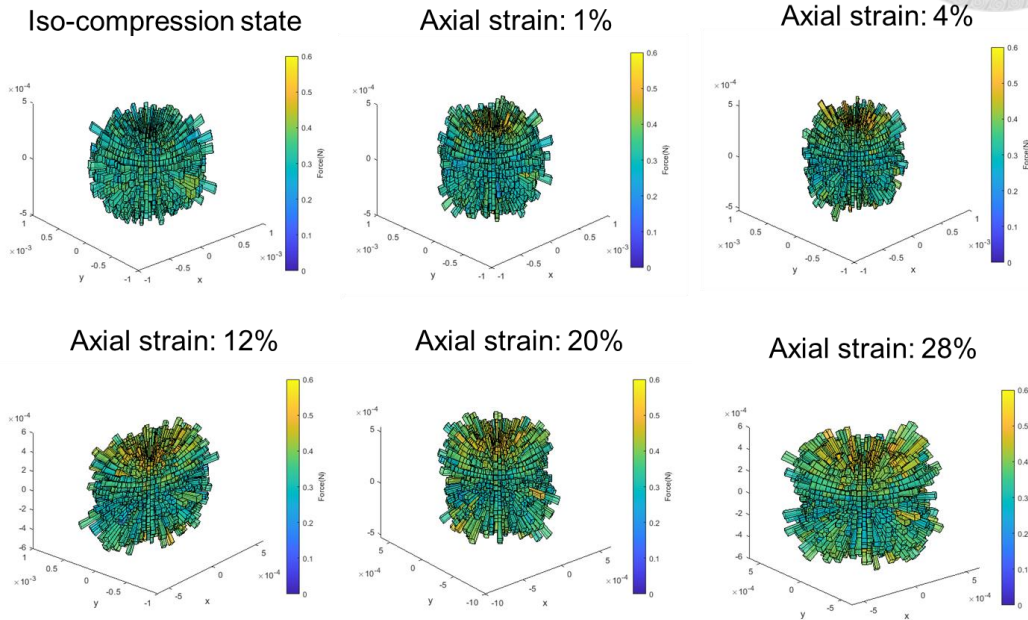


圖 4.2-27 300kPa-550°C 混合模型模型的三維接觸方向與力量分布圖。

而二維的接觸和力量分佈分別繪製於圖 4.2-28 和圖 4.2-29，在圖 4.2-28 中整體顆粒系統內接觸在各個方向上的分佈數目與 300kPa-550°C 傳統模型以及 300kPa-570°C 模型差不多。而在力方向圖中，混合模型的應力分佈低於 300kPa-550°C 傳統模型，不過與 570°C 模型所顯示的分佈差不多，目前我們認為是因為增加了 Hertz 模型的數目且 Hertz 模型的剪切模數下降造成這種差異，但仍需要在未來將 570°C 模型改為混合模型做更完整的比較。

Axial strain: 1% Axial strain: 4% Axial strain: 12% Axial strain: 20% Axial strain: 28%

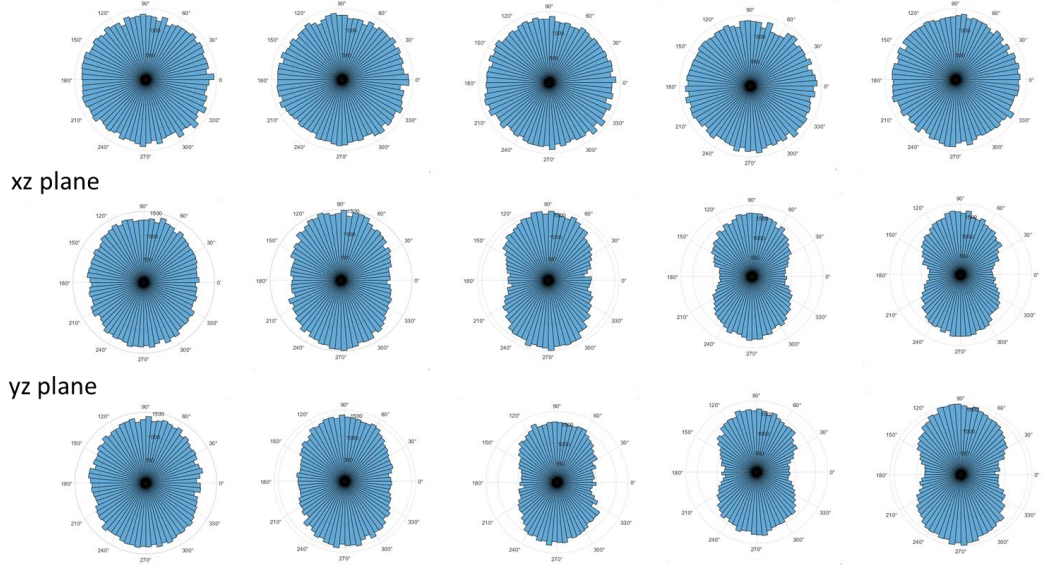


圖 4.2-28 300kPa-550°C 混合模型的投影二維接觸分佈圖。

Axial strain: 1% Axial strain: 4% Axial strain: 12% Axial strain: 20% Axial strain: 28%

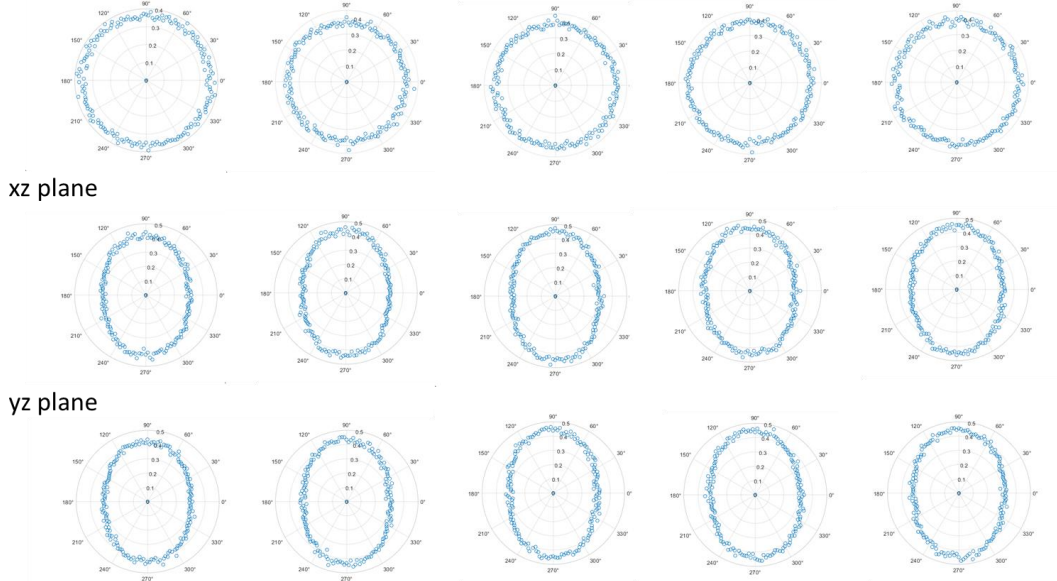


圖 4.2-29 300kPa-550°C 混合模型的投影二維力量分佈圖。



而混合模型的機械性質部分，圖 4.2-30 為偏應力曲線曲線在 Altuhafi 等人[107]的 550°C 實驗與此次混合模型的比較圖，可以看到在實驗中最顯著的偏應力峰即便換上了混合模型仍然沒有出現在此次模型中，且整體偏應力曲線低於實驗所做出來的結果。而圖 4.2-31 為體積應變曲線比較圖，此次模型的剪切應變初期體積有出現壓縮的現象，但在中後期體積便開始膨脹，這與實驗中所看到的結果不同，且模型的體積應變膨脹能力不如實驗中所觀察到的。另外結合先前模擬的結果我們發現到隨著圍壓施壓完成後的固相分率增加，臨界狀態在剪切階段中有延後的跡象。

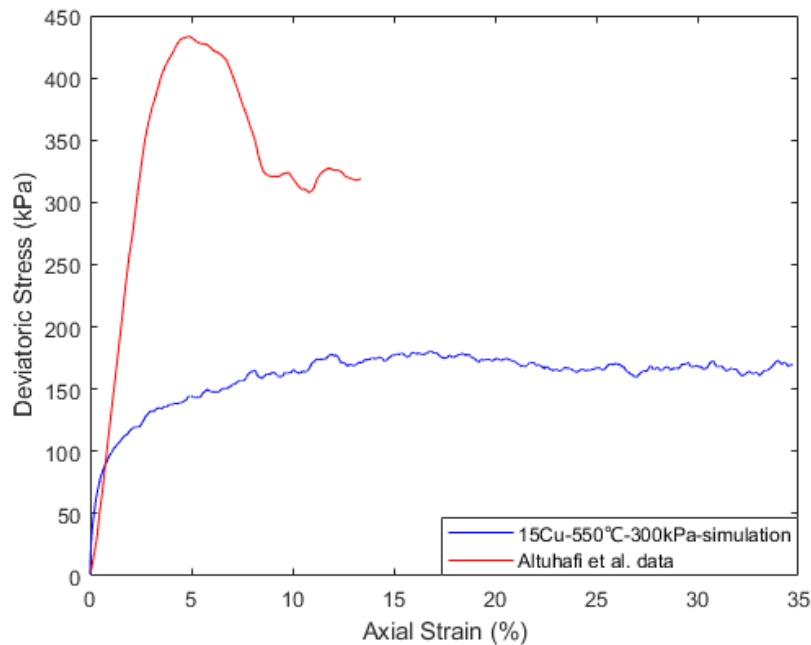


圖 4.2-30 300kPa-550°C 混合模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的偏應力曲線變化比較圖。

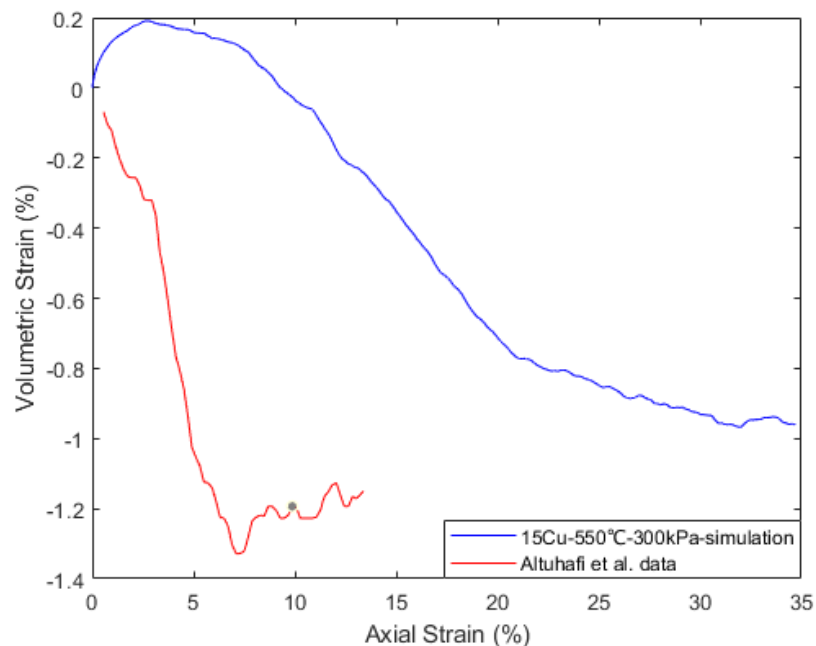
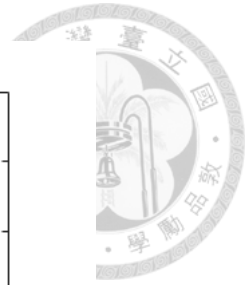


圖 4.2-31 300kPa-550°C 混合模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的體積應變曲線變化比較圖。

那為何模型在剪切階段中體積會出現先壓縮後膨脹的現象，我們認為是因為我們忽略了間隙液體的作用，在先前我們設定液體對顆粒的影響僅限於浮力，但在 2.6.1 節中我們介紹了當間隙液體參與了顆粒系統中時的力學計算方法，在顆粒受到壓縮後會受到最主要三種力的影響分別為擠壓力、剪切力以及顆粒滾動造成的滾動力分別列在 Eq. 2.6-4、Eq. 2.6-5 和 Eq. 2.6-6 中，其中當顆粒因壓縮使彼此很接近時，由於液體薄膜厚度薄因此擠壓力被視為主要的作用力。因此我們納入這一部分的觀點作出解釋，當無間隙液體的顆粒系統在三軸壓縮中受到壓縮時，會傾向於靠近彼此增加接觸，這有助於產生更多的應力接觸鏈以穩定顆粒系統，但當有間隙液體參與時，由於液體薄膜厚度變薄，擠壓力大幅增加導致顆粒最終無法再靠近彼此造成了在 Altuhafi 等人的實驗中其體積應變沒有出現先壓縮後膨脹的現象。

圖 4.2-32 為抗剪角度的比較圖，同樣在混合模型中並沒有模擬出實驗中看到的抗剪角峰出現，且抗剪角曲線小於實驗的結果，也略小於相同圍壓下 570°C 模型的結果。

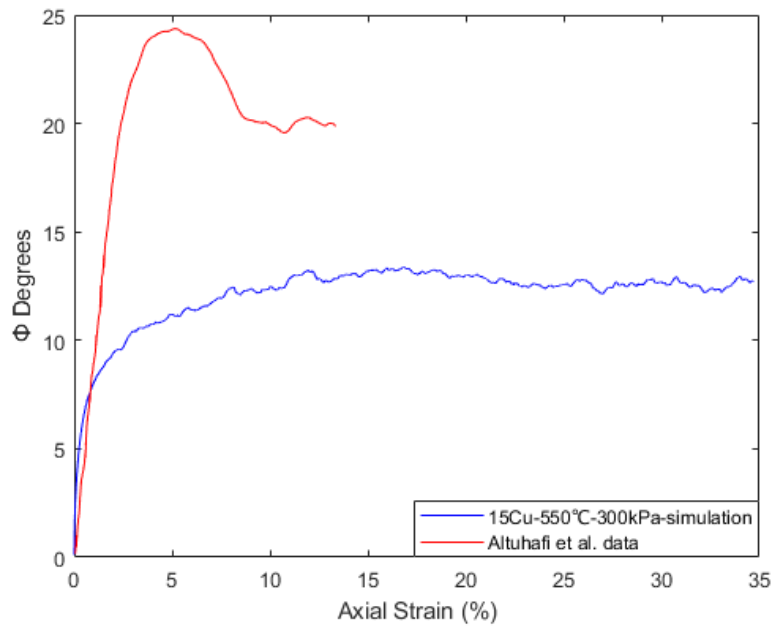


圖 4.2-32 300kPa-550°C 混合模型與 Altuhafi 等人[107]實驗的抗剪角曲線變化比較圖。

而機械配位數的部分，在圖 4.2-33 可以看到整體曲線的變化其實不大，並沒有像在 570°C 模型中看到的顆粒系統逐漸變得稠密的現象，整體顆粒系統的稠密度在剪切過程中始終保持穩定且高於同圍壓下的 570°C 模型。

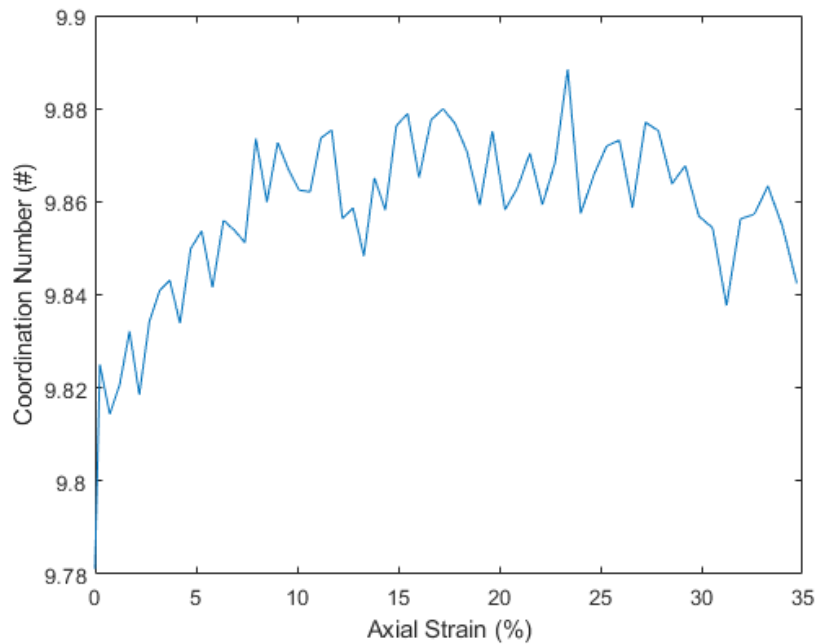


圖 4.2-33 300kPa-550°C 混合模型的機械配位數變化圖。

而在顆粒取向性的部分，圖 4.2-34 記錄了結構張量曲線的變化，與先前模型所出來的趨勢很像 z 方向上的結構張量隨應變逐漸增加，而 x 和 y 方向則逐漸減少，並在顆粒系統進入臨界狀態後趨於穩定。最後即使改變了碰撞模型和固相分率，結構張量的整體趨勢以及數值皆沒有太大的改變，根據 Zhu 等人[164]進行的真實三軸壓縮模擬測試，也發現到只有更改了三軸壓縮中的主應力分佈以及壓縮模式，fabric tenor 才會出現變化。

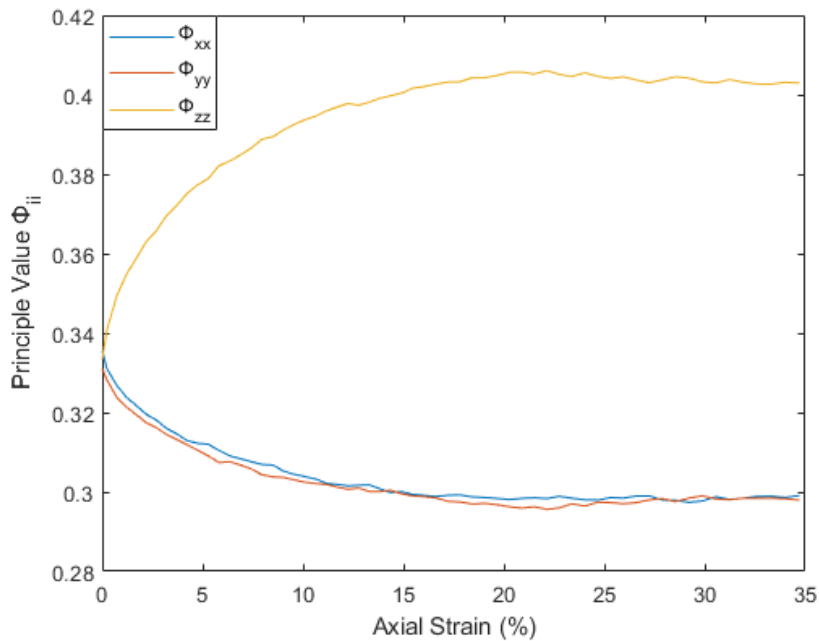


圖 4.2-34 300kPa-550°C 混合模型在 x、y 和 z 的 fabric tenor 曲線變化圖。



4.2.5 各三軸壓縮模擬最終臨界狀態

圖 4.2-35 和表 4.2-3 記錄了此次模擬在臨界狀態時的最終孔隙率與平均有效應力，但由於中途替換過混合模型，所以需要在未來補上 570°C 的模擬實驗來繪製以及預測更準確的臨界狀態線。綜合先前的模擬趨勢，我認為在 570°C 下的混和碰撞模型的模擬結果將與本次所採用的傳統模型呈現相似的趨勢。然而在 300 kPa 圍壓下的顆粒系統中，其接觸分佈與力量分佈略低於 550°C 模型中的觀察結果。在偏應力與抗剪角方面，無論是 300 kPa 或 600 kPa 模型皆因剪切模數下降了一個數量級，因此低於 Altuhafi 等人[107]的實驗結果。而配位數則與傳統模型一樣會隨著體積應變的增加而跟著增加，整體配位數差異不大且結構張量曲線則沒有出現太大的變化。

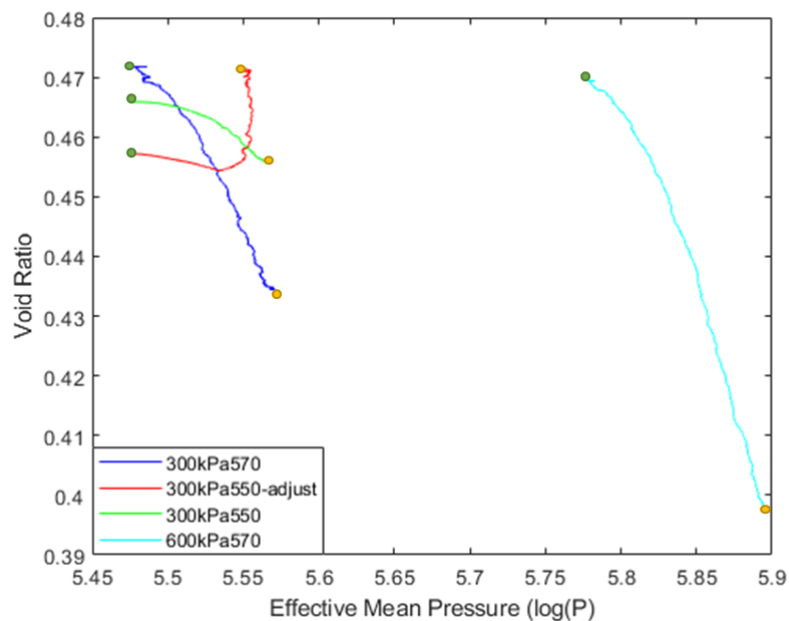


圖 4.2-35 本次模擬在臨界狀態的最終孔隙率對平均有效應力圖。



表 4.2-3 本次模擬以及 Altuhafi 等人[107]的實驗在臨界狀態的最終孔隙率以及平均有效應力。

Confining pressure	Isotropic state	Critical state	Effective mean pressure ($\log(p)$)
300kPa(570°C)	0.472	0.4344	5.5699
300kPa(550°C)	0.4684	0.4556	5.5671
300kPa(550°C)(adjust)	0.4572	0.4707	5.5535
600kPa(570°C)	0.4694	0.3975	5.8959
300kPa(Altuhafi)(T high)	0.47	0.46	-
300kPa(Altuhafi)(T low)	0.43	0.45	-
600kPa(Altuhafi)	0.4	0.35	-



Chapter 5 結論

1. 在本次微觀實驗中，發現到當調整顆粒大小後，若是套用相同的碰撞參數，小顆粒會出現硬化而大顆粒則出現了軟化的現象，此跡象在後期的流變應力中尤為明顯。
2. 透過多次的微觀模擬實驗發現到流變應力會與顆粒的放大係數呈現反比關係，透過 Eq. 2.7-66 中的 A_3 項調整 Burgers 碰撞模型中 Maxwell 部分的阻尼係數即可快速調整流變應力的大小，不過剩餘的碰撞參數仍需要大量的數據迭代來擬和。
3. 在本次的微觀模擬中，我透過增加顆粒密度發現到了當顆粒間持續接觸且由非慣性運動主導時，整體的應力應變曲線在前期有軟化的現象而在後期則沒有發生太大變化，但當增加了 Burgers 碰撞模型中彈性係數以及阻尼係數後能夠抑制顆粒質量增加對前期造成的軟化現象。另外我也發現到調整顆粒密度相較於調整剪切模數而言對時間步長更有主導性，適合應用於本研究中所處的靜壓縮模擬實驗。
4. 在本次的三軸壓縮模擬實驗中，我們發現到施加完圍壓後的較高圍壓的顆粒系統其接觸分佈與應力分佈皆大於圍壓較小的顆粒系統。
5. 而在後續的剪切過程中，較高圍壓的顆粒系統其接觸與應力分佈皆產生更強的取向性。而相同圍壓下，高固相分率模型的接觸與應力分佈的取向性略高於低固相分率模型的結果。
6. 在本次偏應力的結果中，能清楚看到高圍壓下的顆粒模型其偏應力高於低圍壓下的顆粒模型，這與 Altuhafi 等人的實驗結果趨勢相符。另一方面在 550°C 的高固相模型中其偏應力曲線不管是在傳統模型或是混合模型中皆沒有出現 Altuhafi 等人實驗中所看到的偏應力峰，這裡推測可能是因為沒有摩擦係數導

致沒有切向力導致的，也有可能是因為 timestep 過大導致。

7. 而體積應變的部分，從此次的模擬中可以清楚看到圍壓越高，剪切階段的體積應變也越高這與 Altuhafi 等人所做出來的曲線趨勢相同。另外在 550°C 的高固相傳統模型中由於 Burgers 碰撞模型延遲應力釋放的現象導致了顆粒間的滑動受到阻礙，致使在剪切階段時沒有發生體積膨脹的現象，在透過替換混合模型後便成功的模擬出剪切誘發膨脹的現象。
8. 而在抗剪角的分析中有觀察到抗剪角會隨著圍壓的增加而跟著增加，與 Altuhafi 等人的實驗趨勢相同。但在 550°C 的高固相傳統模型中不管是傳統模型或是混合模型皆沒有觀察到出現抗剪角峰的現象。
9. 在此次 570°C 的低固相模擬中有觀察到隨著圍壓的增加而增加，機械配位數也會跟著增加。但在 550°C 高固相模擬中整體的機械配位數呈現穩定波動，並沒有因為體積增加而出現配位數下滑的現象。
10. 在此次模擬的結構張量曲線中，所有模型計算出來的曲線趨勢接近，並沒有因為圍壓的不同、初始固相分率的不同以及碰撞模型的不同而導致曲線發生變化。



Chapter 6 未來工作

1. 從 15Cu-550°C 的模型當中我們可以得知間隙液體的壓力對於顆粒運動的影響巨大，但考慮到計算壓力以及顆粒所處的狀態，可嘗試單向耦合計算流體力學 (Computational fluid dynamics, CFD)，以更貼近實際實驗情況。
2. 此次採集的顆粒樣本數還是太少，尺寸和球形度的分佈仍不俱有統計學上的代表性，需要進行多次實驗或是提升儀器性能以獲取更多的顆粒樣本。
3. 嘗試利用 Neper 進行沃羅諾伊鑲嵌法 (Voronoi tessellation) 製造更高固相分率的試片，由於其可指定特定的尺寸以及球形度分佈，相較於在 PFC 中製造的顆粒模型，該方法更貼近現實中的晶粒。
4. 引入先前所描述的 GBM 模型，該模型的好處是能在一定程度上模擬顆粒的變形行為，能繞過耦合有限元素法 (FEM) 所造成的計算負擔，同時也能在一定程度上模擬聚結效應。
5. 在此次的模型中我們利用了混合碰撞模型成功的在 15Cu-550°C 的高固相分率模型中做出了類似剪切膨脹的效果，側面證實了晶粒之間的碰撞並不完全是黏彈性碰撞，但對於晶粒系統在受壓後哪些顆粒主要以滑動為主哪些顆粒以變形為主仍需要更多的實驗觀察和模擬擬和得知。
6. 將先前在 15Cu-570°C 時的碰撞模型改為混合碰撞模型計算並與 Altuhafi 等人 [107] 的實驗做更完整的比較。
7. 傳統之三軸壓縮所模擬的應力環境還是太簡單了，未來可搭配真實三軸壓縮測試模擬更真實的應力環境。
8. 另外在本次的實驗中，為了降低計算效率放大了顆粒質量以及將顆粒尺寸，可能導致了顆粒微結構並未正確的發生反應，日後可透過應力鏈、顆粒的滑移以

及顆粒的滾動進行分析。

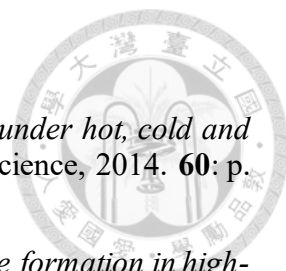
9. 另外在本實驗中由於模擬液體潤滑效應因此顆粒系統內摩擦係數為零，這麼做可能導致了偏應力峰並未出現，需做相關測試。
10. 另外本實驗中，可另外補充 Hertz 碰撞模型以及 Burgers 碰撞模型施加負重以及釋放負重後的能量變化，進一步佐證我們在混和碰撞模型的假設，並利用微觀模型觀察顆粒密度與 Burgers 碰撞模型中彈性係數和阻尼係數對應力應變曲線的影響。
11. 在 Su 等人[6]的研究中發現到在排水壓縮完成後晶粒出現類似連續動態再結晶的現象，可能是次晶界產生後初晶 αAl 於次晶界區域局部熔點降低，造成次晶界轉變成液膜，看起來像是初晶 αAl 被液膜切割，但在 Altuhafi 等人[153]的實驗中卻沒有發現到類似的現象，因此未來可嘗試利用同步輻射以及 PFC 模擬來分析受壓縮後晶粒內部的應力分佈情況。
12. 未來可透過基於 Da Cruz 等人[121]的成果，搭配三軸壓縮測試在準靜態所測得的穩定機械性質，利用機器學習或是大數據分析，計算鑄件模型內部各個部份的慣性數進而推導出相應的機械性質從而得知可能出現的缺陷。

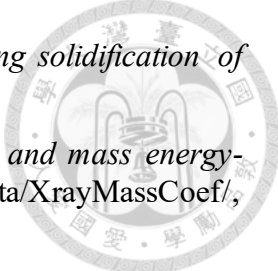





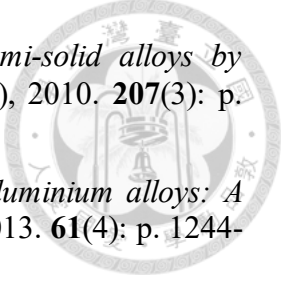
參考文獻


1. Bonollo, F., N. Gramegna, and G. Timelli, *High-pressure die-casting: Contradictions and challenges*. *Jom*, 2015. **67**: p. 901-908.
2. Su, T., et al., *Semi-solid deformation of Al-Cu alloys: A quantitative comparison between real-time imaging and coupled LBM-DEM simulations*. *Acta Materialia*, 2019. **163**: p. 208-225.
3. Gourlay, C. and A. Dahle, *Dilatant shear bands in solidifying metals*. *Nature*, 2007. **445**(7123): p. 70-73.
4. Kareh, K., et al., *Revealing the micromechanisms behind semi-solid metal deformation with time-resolved X-ray tomography*. *Nature communications*, 2014. **5**(1): p. 4464.
5. Yuan, L., C. O'Sullivan, and C. Gourlay, *Exploring dendrite coherency with the discrete element method*. *Acta materialia*, 2012. **60**(3): p. 1334-1345.
6. Su, T.-C., et al., *Quantitatively Comparing 3D Discrete Element Method Simulations With Drained Compression Experiments of the Semi-solid Deformation of Al-Cu Alloys*. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 2023. **54**(10): p. 3882-3896.
7. Dantzig, J.A. and M. Rappaz, *Solidification: -Revised & Expanded*. 2016: EPFL press.
8. Glicksman, M.E., *Principles of solidification: an introduction to modern casting and crystal growth concepts*. 2010: Springer Science & Business Media.
9. Holman, J., *Heat transfer, 10th editi. ed*. Mc-GrawHill Higher education, 2010.
10. Smith, W.F. and J. Hashemi, *Foundations of materials science and engineering*. 2006: Mcgraw-Hill Publishing.
11. Scheil, E., *Bemerkungen zur schichtkristallbildung*. *International Journal of Materials Research*, 1942. **34**(3): p. 70-72.
12. Campbell, J., *Complete casting handbook: metal casting processes, metallurgy, techniques and design*. 2015: Butterworth-Heinemann.
13. Huang, K. and R.E. Logé, *A review of dynamic recrystallization phenomena in metallic materials*. *Materials & Design*, 2016. **111**: p. 548-574.
14. Pierce, D.T., et al., *The influence of stacking fault energy on the microstructural and strain-hardening evolution of Fe-Mn-Al-Si steels during tensile deformation*.


- 
- Acta Materialia, 2015. **100**: p. 178-190.
15. Sakai, T., et al., *Dynamic and post-dynamic recrystallization under hot, cold and severe plastic deformation conditions*. Progress in materials science, 2014. **60**: p. 130-207.
 16. Sitdikov, O., et al., *Temperature effect on fine-grained structure formation in high-strength Al alloy 7475 during hot severe deformation*. Materials Science and Engineering: A, 2009. **516**(1-2): p. 180-188.
 17. Drury, M. and F. Humphreys, *The development of microstructure in Al-5% Mg during high temperature deformation*. Acta Metallurgica, 1986. **34**(11): p. 2259-2271.
 18. Zhang, J., et al., *Dynamic recrystallization mechanisms of 2195 aluminum alloy during medium/high temperature compression deformation*. Materials Science and Engineering: A, 2021. **804**: p. 140650.
 19. Lifshitz, I.M. and V.V. Slyozov, *The kinetics of precipitation from supersaturated solid solutions*. Journal of physics and chemistry of solids, 1961. **19**(1-2): p. 35-50.
 20. Wagner, C., *Theorie der alterung von niederschlägen durch umlösen (Ostwald-reifung)*. Zeitschrift für Elektrochemie, Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie, 1961. **65**(7-8): p. 581-591.
 21. Zhang, J., F. Huang, and Z. Lin, *Progress of nanocrystalline growth kinetics based on oriented attachment*. Nanoscale, 2010. **2**(1): p. 18-34.
 22. Herring, C., *Diffusional viscosity of a polycrystalline solid*. Journal of applied physics, 1950. **21**(5): p. 437-445.
 23. Rappaz, M., A. Jacot, and W.J. Boettinger, *Last-stage solidification of alloys: theoretical model of dendrite-arm and grain coalescence*. Metallurgical and Materials Transactions A, 2003. **34**: p. 467-479.
 24. Nagira, T., et al., *Direct observation of deformation in semi-solid carbon steel*. Scripta Materialia, 2011. **64**(12): p. 1129-1132.
 25. Gourlay, C., et al., *Synchrotron radiography studies of shear-induced dilation in semisolid Al alloys and steels*. Jom, 2014. **66**: p. 1415-1424.
 26. Gourlay, C., et al., *Granular deformation mechanisms in semi-solid alloys*. Acta Materialia, 2011. **59**(12): p. 4933-4943.
 27. Cai, B., et al., *In situ synchrotron tomographic quantification of granular and intragranular deformation during semi-solid compression of an equiaxed dendritic Al-Cu alloy*. Acta Materialia, 2014. **76**: p. 371-380.
 28. Terzi, S., et al., *In situ X-ray tomography observation of inhomogeneous deformation in semi-solid aluminium alloys*. Scripta Materialia, 2009. **61**(5): p. 449-452.

- 
29. Yasuda, H., et al., *Development of X-ray imaging for observing solidification of carbon steels*. ISIJ international, 2011. **51**(3): p. 402-408.
30. Hubbell, J.H., *Tables of x-ray mass attenuation coefficients and mass energy-absorption coefficients*. <http://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/>, 1996.
31. Ganesan, S. and D.R. Poirier, *Densities of aluminum-rich*. Metallurgical and Materials Transactions A, 1987. **18**: p. 721-723.
32. Jimbo, I. and A. Cramb, *The density of liquid iron-carbon alloys*. Metallurgical Transactions B, 1993. **24**: p. 5-10.
33. McLean, M., *The kinetics of spheroidization of lead inclusions in aluminium*. Philosophical Magazine, 1973. **27**(6): p. 1253-1266.
34. Boettinger, W., et al., *A study of the coarsening of liquid-solid mixtures using synchrotron radiation microradiography*. Metall. Trans., A;(United States), 1988. **18**(3).
35. Curreri, P.A. and W.F. Kaukler, *Real-time X-ray transmission microscopy of solidifying Al-In alloys*. Metallurgical and Materials Transactions A, 1996. **27**: p. 801-808.
36. Sen, S., et al., *Dynamics of solid/liquid interface shape evolution near an insoluble particle—An X-ray transmission microscopy investigation*. Metallurgical and Materials Transactions A, 1997. **28**: p. 2129-2135.
37. Kaukler, W.F., F. Rosenberger, and P.A. Curreri, *In situ studies of precipitate formation in Al-Pb monotectic solidification by X-ray transmission microscopy*. Metallurgical and Materials Transactions A, 1997. **28**: p. 1705-1710.
38. Kaukler, W.F. and F. Rosenberger, *X-ray microscopic observations of metal solidification dynamics*. Metallurgical and Materials Transactions A, 1994. **25**: p. 1775-1777.
39. Mathiesen, R.H., et al., *Time resolved x-ray imaging of dendritic growth in binary alloys*. Physical Review Letters, 1999. **83**(24): p. 5062.
40. Zeng, G., et al., *Solidification of Sn-0.7 Cu-0.15 Zn solder: in situ observation*. Metallurgical and Materials Transactions A, 2014. **45**: p. 918-926.
41. Gourlay, C., et al., *In situ investigation of unidirectional solidification in Sn-0.7 Cu and Sn-0.7 Cu-0.06 Ni*. Acta Materialia, 2011. **59**(10): p. 4043-4054.
42. Yasuda, H., et al., *Direct observation of stray crystal formation in unidirectional solidification of Sn-Bi alloy by X-ray imaging*. Journal of Crystal Growth, 2004. **262**(1-4): p. 645-652.
43. Li, B., H. Brody, and A. Kazimirov, *Real time synchrotron microradiography of dendrite coarsening in Sn-13 wt pct Bi alloy*. Metallurgical and Materials Transactions A, 2007. **38**: p. 599-605.

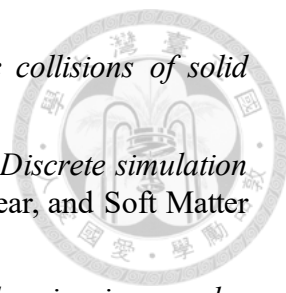
- 
44. Li, B., H. Brody, and A. Kazimirov, *Synchrotron microradiography of temperature gradient zone melting in directional solidification*. Metallurgical and Materials Transactions A, 2006. **37**: p. 1039-1044.
45. Yasuda, H., et al., *In situ observation of nucleation, fragmentation and microstructure evolution in Sn–Bi and Al–Cu alloys*. International Journal of Cast Metals Research, 2008. **21**(1-4): p. 125-128.
46. Li, B., et al., *Real time observation of dendritic solidification in alloys by synchrotron microradiography*. Journal of Physics D: Applied Physics, 2006. **39**(20): p. 4450.
47. Billia, B., et al., *In Situ synchrotron x-ray characterization of microstructure formation in solidification processing of Al-based metallic alloys*. ISIJ international, 2010. **50**(12): p. 1929-1935.
48. Arnberg, L. and R.H. Mathiesen, *The real-time, high-resolution x-ray video microscopy of solidification in aluminum alloys*. Jom, 2007. **59**: p. 20-26.
49. Sistaninia, M., et al., *3-D granular modeling and in situ X-ray tomographic imaging: A comparative study of hot tearing formation and semi-solid deformation in Al–Cu alloys*. Acta materialia, 2013. **61**(10): p. 3831-3841.
50. Limodin, N., et al., *In situ investigation by X-ray tomography of the overall and local microstructural changes occurring during partial remelting of an Al–15.8 wt.% Cu alloy*. Acta Materialia, 2007. **55**(9): p. 3177-3191.
51. Limodin, N., et al., *In situ and real-time 3-D microtomography investigation of dendritic solidification in an Al–10 wt.% Cu alloy*. Acta Materialia, 2009. **57**(7): p. 2300-2310.
52. Liu, D.R., et al., *Coupled cellular automaton (CA)–finite element (FE) modeling of directional solidification of Al-3.5 wt% Ni alloy: a comparison with X-ray synchrotron observations*. ISIJ international, 2014. **54**(2): p. 392-400.
53. Nagira, T., et al., *Characterization of shear deformation based on in-situ observation of deformation in semi-solid Al–cu alloys and water-particle mixture*. ISIJ international, 2013. **53**(7): p. 1195-1201.
54. Gourlay, C., et al. *Synchrotron radiography of direct-shear in semi-solid alloys. in IOP conference series: materials science and engineering*. 2012. IOP Publishing.
55. Nagira, T., et al., *In situ observation of shear deformation in semi-solid Al–Cu alloys*. Proceedings of visual-JW2012, Osaka, 2012: p. 215-216.
56. Gourlay, C.M., et al., *In situ study of the altering globule packing-density during semisolid alloy deformation*. Solid State Phenomena, 2013. **192**: p. 185-190.
57. Phillion, A., et al., *In situ X-ray observation of semi-solid deformation and failure in Al–Cu alloys*. Acta Materialia, 2011. **59**(4): p. 1436-1444.

- 
58. Zabler, S., et al., *Direct observation of particle flow in semi-solid alloys by synchrotron X-ray micro-radioscopy*. *physica status solidi (a)*, 2010. **207**(3): p. 718-723.
59. Zabler, S., et al., *Particle and liquid motion in semi-solid aluminium alloys: A quantitative in situ microradioscopy study*. *Acta Materialia*, 2013. **61**(4): p. 1244-1253.
60. Mao, F., et al., *Real time observation on the solidification of strontium-modified zinc–aluminum–silicon alloys by synchrotron microradiography*. *Journal of alloys and compounds*, 2014. **608**: p. 343-351.
61. Yasuda, H., et al., *In situ observation of solidification phenomena in Al–Cu and Fe–Si–Al alloys*. *International Journal of Cast Metals Research*, 2009. **22**(1-4): p. 15-21.
62. Henao, H.M., A. Sugiyama, and K. Nogita, *Comparison of solidification behavior between in situ observation and simulation of Fe–C–Si system*. *Journal of alloys and compounds*, 2014. **613**: p. 132-138.
63. Fonseca, J., et al., *In situ study of granular micromechanics in semi-solid carbon steels*. *Acta Materialia*, 2013. **61**(11): p. 4169-4179.
64. Nagira, T., et al., *In situ observation of deformation in semi-solid Fe-C alloys at high shear rate*. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 2014. **45**: p. 5613-5623.
65. Willmott, P., *An introduction to synchrotron radiation: techniques and applications*. 2019: John Wiley & Sons.
66. Wang, M., et al., *Dendritic morphology of α -Mg during the solidification of Mg-based alloys: 3D experimental characterization by X-ray synchrotron tomography and phase-field simulations*. *Scripta Materialia*, 2011. **65**(10): p. 855-858.
67. Wang, M., et al., *Growth orientations and morphologies of α -Mg dendrites in Mg–Zn alloys*. *Scripta Materialia*, 2012. **67**(7-8): p. 629-632.
68. Puncreobutr, C., et al., *Influence of Fe-rich intermetallics on solidification defects in Al–Si–Cu alloys*. *Acta Materialia*, 2014. **68**: p. 42-51.
69. Puncreobutr, C., et al., *Synchrotron tomographic characterization of damage evolution during aluminum alloy solidification*. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 2013. **44**: p. 5389-5395.
70. Puncreobutr, C., et al., *Coupling in situ synchrotron X-ray tomographic microscopy and numerical simulation to quantify the influence of intermetallic formation on permeability in aluminium–silicon–copper alloys*. *Acta Materialia*, 2014. **64**: p. 316-325.
71. De Groh, H., et al., *Calculation of dendrite settling velocities using a porous envelope*. *Metallurgical Transactions B*, 1993. **24**: p. 749-753.


- 
72. Felberbaum, M. and M. Rappaz, *Curvature of micropores in Al–Cu alloys: an X-ray tomography study*. Acta Materialia, 2011. **59**(18): p. 6849-6860.
73. Stock, S., *Recent advances in X-ray microtomography applied to materials*. International materials reviews, 2008. **53**(3): p. 129-181.
74. Bruyant, P.P., *Analytic and iterative reconstruction algorithms in SPECT*. Journal of Nuclear Medicine, 2002. **43**(10): p. 1343-1358.
75. Tiryakioğlu, M., M. Jolly, and G. Byczynski, *Shape Casting: 6th International Symposium 2016*. 2016: John Wiley & Sons.
76. Volmer, M. and A. Weber, *Zeitschr. f. phys. Chem*, 1926. **119**: p. 277.
77. Volmer, M., *Kinetics of Phase Formation: (Kinetik Der Phasenbildung)*. 1939: T. Steinkopff.
78. Becker, R. and W. Döring, *Kinetische behandlung der keimbildung in übersättigten dämpfen*. Annalen der physik, 1935. **416**(8): p. 719-752.
79. Fisher, J., J. Hollomon, and D. Turnbull, *Nucleation*. Journal of Applied Physics, 1948. **19**(8): p. 775-784.
80. Fisher, J.C., *The fracture of liquids*. Journal of applied Physics, 1948. **19**(11): p. 1062-1067.
81. Bankoff, S., *Ebullition from solid surfaces in the absence of a pre-existing gaseous phase*. Transactions of the American Society of Mechanical Engineers, 1957. **79**(4): p. 735-740.
82. Bernath, L., *Theory of Bubble Formation in Liquids*. Industrial & Engineering Chemistry, 1952. **44**(6): p. 1310-1313.
83. Brooks, H., *Impurities and imperfections*. Cleveland: American Society for Metals, 1955: p. 107-133.
84. Jackson, K., *The nucleation of dislocation loops from vacancies*. Philosophical Magazine, 1962. **7**(79): p. 1117-1127.
85. Yousefian, P. and M. Tiryakioğlu, *Pore formation during solidification of aluminum: reconciliation of experimental observations, modeling assumptions, and classical nucleation theory*. Metallurgical and Materials Transactions A, 2018. **49**: p. 563-575.
86. Fox, S. and J. Campbell, *Visualisation of oxide film defects during solidification of aluminium alloys*. Scripta materialia, 2000. **43**(10): p. 881-886.
87. Green, N.R. and J. Campbell, *Statistical distributions of fracture strengths of cast Al 7Si Mg alloy*. Materials Science and Engineering: A, 1993. **173**(1-2): p. 261-266.
88. Mackie, D., et al., *Characterisation and modelling of defect formation in direct-chill cast AZ80 alloy*. Materials Characterization, 2015. **104**: p. 116-123.

- 
89. Shafaei, A. and R. Raiszadeh, *Reduced pressure test verification of healing of double oxide film defects in Al-Mg alloys*. Metallurgical and Materials Transactions B, 2014. **45**: p. 2486-2494.
90. Tang, M. and P.C. Pistorius, *Oxides, porosity and fatigue performance of AlSi10Mg parts produced by selective laser melting*. International Journal of Fatigue, 2017. **94**: p. 192-201.
91. Campbell, J. and M. Tiryakioğlu, *Bifilm defects in Ni-based alloy castings*. Metallurgical and Materials Transactions B, 2012. **43**: p. 902-914.
92. Nadella, R., et al., *Macrosegregation in direct-chill casting of aluminium alloys*. Progress in Materials Science, 2008. **53**(3): p. 421-480.
93. Eskin, D., Q. Du, and L. Katgerman, *Relationship between shrinkage-induced macrosegregation and the sump profile upon direct-chill casting*. Scripta Materialia, 2006. **55**(8): p. 715-718.
94. Du, Q., D. Eskin, and L. Katgerman, *Modeling macrosegregation during direct-chill casting of multicomponent aluminum alloys*. Metallurgical and materials transactions A, 2007. **38**: p. 180-189.
95. Du, Q., D. Eskin, and L. Katgerman, *The effect of ramping casting speed and casting temperature on temperature distribution and melt flow patterns in the sump of a DC cast billet*. Materials Science and Engineering: A, 2005. **413**: p. 144-150.
96. Campbell, J., *Castings practice: the ten rules of castings*. 2004: Elsevier.
97. Ludwig, A., M. Wu, and A. Kharicha, *On macrosegregation*. Metallurgical and Materials Transactions A, 2015. **46**: p. 4854-4867.
98. Hales, T.C., *A proof of the Kepler conjecture*. Annals of mathematics, 2005: p. 1065-1185.
99. Kobayashi, R., *Modeling and numerical simulations of dendritic crystal growth*. Physica D: Nonlinear Phenomena, 1993. **63**(3-4): p. 410-423.
100. Dahle, A. and D. StJohn, *Rheological behaviour of the mushy zone and its effect on the formation of casting defects during solidification*. Acta materialia, 1998. **47**(1): p. 31-41.
101. Arnberg, L., L. Backerud, and G. Chai, *Solidification characteristics of aluminum alloys*. Dendrite coherency, 1996. **3**: p. 132-135.
102. Veldman, N.L., et al., *Dendrite coherency of Al-Si-Cu alloys*. Metallurgical and Materials Transactions A, 2001. **32**: p. 147-155.
103. Kapranos, P., D. Kirkwood, and C. Sellars. *Semisolid Processing of Alloys and Composites, 4th Int. in Conf., Sheffield, United Kingdom*. 1996.
104. Backerud, L. and B. Chalmers, *Some aspects of dendritic growth in binary alloys-*

- study of the aluminum-copper system*. Trans Met Soc AIME, 1969. **245**(2): p. 309-318.
105. Malekan, M. and S. Shabestari, *Effect of grain refinement on the dendrite coherency point during solidification of the A319 aluminum alloy*. Metallurgical and materials transactions A, 2009. **40**: p. 3196-3203.
106. Sumitomo, T., D. StJohn, and T. Steinberg, *The shear behaviour of partially solidified Al-Si-Cu alloys*. Materials Science and Engineering: A, 2000. **289**(1-2): p. 18-29.
107. Altuhafi, F.N., et al., *Triaxial compression on semi-solid alloys*. Metallurgical and Materials Transactions A, 2021. **52**: p. 2010-2023.
108. Belheine, N., et al., *Numerical simulation of drained triaxial test using 3D discrete element modeling*. Computers and geotechnics, 2009. **36**(1-2): p. 320-331.
109. Schofield, A.N. and P. Wroth, *Critical state soil mechanics*. Vol. 310. 1968: McGraw-hill London.
110. Ancey, C., P. Coussot, and P. Evesque, *A theoretical framework for granular suspensions in a steady simple shear flow*. Journal of Rheology, 1999. **43**(6): p. 1673-1699.
111. Lun, C. and A. Bent, *Numerical simulation of inelastic frictional spheres in simple shear flow*. Journal of Fluid Mechanics, 1994. **258**: p. 335-353.
112. Brady, J.F., et al., *Dynamic simulation of hydrodynamically interacting suspensions*. Journal of Fluid Mechanics, 1988. **195**: p. 257-280.
113. Babić, M., H.H. Shen, and H.T. Shen, *The stress tensor in granular shear flows of uniform, deformable disks at high solids concentrations*. Journal of Fluid Mechanics, 1990. **219**: p. 81-118.
114. Meakin, P. and A.T. Skjeltorp, *Application of experimental and numerical models to the physics of multiparticle systems*. Advances in physics, 1993. **42**(1): p. 1-127.
115. Smart, J.R. and D.T. Leighton Jr, *Measurement of the hydrodynamic surface roughness of noncolloidal spheres*. Physics of Fluids A: Fluid Dynamics, 1989. **1**(1): p. 52-60.
116. Foerster, S.F., et al., *Measurements of the collision properties of small spheres*. Physics of Fluids, 1994. **6**(3): p. 1108-1115.
117. Ancey, C., P. Evesque, and P. Coussot, *Motion of a single bead on a bead row: theoretical investigations*. Journal de Physique I, 1996. **6**(5): p. 725-751.
118. Cox, R., *The motion of suspended particles almost in contact*. International Journal of Multiphase Flow, 1974. **1**(2): p. 343-371.
119. Coimbra, C. and R. Rangel, *General solution of the particle momentum equation in unsteady Stokes flows*. Journal of Fluid Mechanics, 1998. **370**: p. 53-72.

- 
120. Lian, G., M. Adams, and C. Thornton, *Elastohydrodynamic collisions of solid spheres*. Journal of Fluid Mechanics, 1996. **311**: p. 141-152.
121. Da Cruz, F., et al., *Rheophysics of dense granular materials: Discrete simulation of plane shear flows*. Physical Review E—Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics, 2005. **72**(2): p. 021309.
122. Perez, J.L., et al., *Assessing the quasi-static conditions for shearing in granular media within the critical state soil mechanics framework*. Soils and Foundations, 2016. **56**(1): p. 152-159.
123. Dye, D. *MSE203 Mechanical Behaviour: Continuum Mechanics*. 2014 2013/12/23 [cited 2013 2025/3/14]; Available from: <https://dyedavid.com/mse203/>.
124. Hibbeler, R.C., *Statics and mechanics of materials*. (No Title), 2004.
125. Knappett, J., *Craig's soil mechanics*. Vol. 8. 2012: Spon Press London.
126. Meguid, M., R. Rowe, and K.Y. Lo, *EFFECTS OF BOUNDARY LOCATION ON THE FINITE ELEMENT PREDICTIONS FOR LARGE OPENINGS IN ROCK*. 2002.
127. Su, T.C., et al. *Exploring Semi-solid Deformation of Al–Cu Alloys by a Quantitative Comparison Between Drained Die Compression Experiments and 3D Discrete Element Method Simulations*. in *TMS Annual Meeting & Exhibition*. 2023. Springer.
128. Cundall, P.A., *The measurement and analysis of accelerations in rock slopes*. Ph. D Thesis, Imperial College, 1971.
129. Cundall, P.A. and R.D. Hart, *Numerical modelling of discontinua*. Engineering computations, 1992. **9**(2): p. 101-113.
130. Itasca, C., *UDEC (universal Distinct Element Code) version 5.0*. Mineapolis: ICG, 2011.
131. Chung, Y., *Granular stresses in granular flows subjected to different obstacles*. International Journal of Mechanical Sciences, 2023. **247**: p. 108190.
132. Kafui, K., C. Thornton, and M. Adams, *Discrete particle-continuum fluid modelling of gas–solid fluidised beds*. Chemical engineering science, 2002. **57**(13): p. 2395-2410.
133. Jing, L. and O. Stephansson, *Fundamentals of discrete element methods for rock engineering: theory and applications*. Vol. 85. 2007: Elsevier.
134. Buss, S.R., *Accurate and efficient simulation of rigid-body rotations*. Journal of Computational Physics, 2000. **164**(2): p. 377-406.
135. Johnson, S.M., J.R. Williams, and B.K. Cook, *Quaternion-based rigid body rotation integration algorithms for use in particle methods*. International journal

- for numerical methods in engineering, 2008. **74**(8): p. 1303-1313.
136. Salimi, M. and A. Lashkari, *Undrained true triaxial response of initially anisotropic particulate assemblies using CFM-DEM*. Computers and Geotechnics, 2020. **124**: p. 103509.
137. Irani, N., et al., *Deep learning-based analysis of true triaxial DEM simulations: Role of fabric and particle aspect ratio*. Computers and Geotechnics, 2024. **173**: p. 106529.
138. Gu, X., M. Huang, and J. Qian, *Discrete element modeling of shear band in granular materials*. Theoretical and Applied Fracture Mechanics, 2014. **72**: p. 37-49.
139. Zhang, J., et al., *DEM modeling of large-scale triaxial test of rock clasts considering realistic particle shapes and flexible membrane boundary*. Engineering Geology, 2020. **279**: p. 105871.
140. Gao, G. and M. Meguid, *Effect of particle shape on the response of geogrid-reinforced systems: Insights from 3D discrete element analysis*. Geotextiles and Geomembranes, 2018. **46**(6): p. 685-698.
141. Wang, Z., et al., *A 3D Voronoi clump based model for simulating failure behavior of brittle rock*. Engineering Fracture Mechanics, 2021. **248**: p. 107720.
142. Wu, M., F. Zhou, and J. Wang, *DEM modeling of mini-triaxial test on soil-rock mixture considering particle shape effect*. Computers and Geotechnics, 2023. **153**: p. 105110.
143. Dratt, M. and A. Katterfeld, *Coupling of FEM and DEM simulations to consider dynamic deformations under particle load*. Granular Matter, 2017. **19**(3): p. 49.
144. Du, B., et al., *FEM-DEM coupling analysis for solid granule medium forming new technology*. Journal of Materials Processing Technology, 2017. **249**: p. 108-117.
145. Wangyang, L., S. Chong, and Z. Cong, *Numerical study on the effect of grain size on rock dynamic tensile properties using PFC-GBM*. Computational Particle Mechanics, 2024. **11**(1): p. 481-489.
146. Zhang, T., et al., *Effect of the mineral spatial distribution heterogeneity on the tensile strength of granite: Insights from PFC3D-GBM numerical analysis*. Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering, 2023. **15**(5): p. 1144-1160.
147. Zhang, T., et al., *Influence of grain size and basic element size on rock mechanical characteristics: insights from grain-based numerical analysis*. Bulletin of Engineering Geology and the Environment, 2022. **81**(9): p. 347.
148. Braccini, M., et al., *Low shear rate behavior at high solid fractions of partially solidified Al-8 wt.% Cu alloys*. Materials Science and Engineering: A, 2002. **337**(1-2): p. 1-11.

- 
149. Itasca, C. *Sleeved Triaxial Test of a Bonded Material*. 2021 [cited 2021; Available from: <https://docs.itascacg.com/pfc600/pfc/wallsel/test3d/ExampleApplications/SleevedTriaxialTest/SleevedTriaxialTest.html?highlight=sleeve%20triaxial>].
150. Weisstein, E.W., *Spherical cap*. From *MathWorld—A Wolfram Web Resource*. URL <http://mathworld.wolfram.com/SphericalCap.html>, 2014.
151. Lommen, S., et al., *DEM particle upscaling for large-scale bulk handling equipment and material interaction*. Powder Technology, 2019. **352**: p. 273-282.
152. Ng, T.-T., *Input parameters of discrete element methods*. Journal of Engineering Mechanics, 2006. **132**(7): p. 723-729.
153. Ahlinhan, M.F., et al., *Experiments and 3D DEM of triaxial compression tests under special consideration of particle stiffness*. Geomaterials, 2018. **8**(04): p. 39.
154. Pohl, M., *Modellierung von granularen Böden und biegsamen Bauwerken mit Hilfe der DEM am Beispiel einer eingebetteten Spundwand*. 2005, Wuppertal.
155. Chareyre, B. and P. Villard, *Discrete element modeling of curved geosynthetic anchorages with known macro-properties*, in *Numerical modeling in micromechanics via particle methods*. 2017, Routledge. p. 197-203.
156. Salot, C., P. Gotteland, and P. Villard, *Influence of relative density on granular materials behavior: DEM simulations of triaxial tests*. Granular matter, 2009. **11**(4): p. 221-236.
157. Collop, A.C., G.R. McDowell, and Y.W. Lee, *Modelling dilation in an idealised asphalt mixture using discrete element modelling*. Granular Matter, 2006. **8**: p. 175-184.
158. Xia, C., Z. Liu, and C. Zhou, *Burger's bonded model for distinct element simulation of the multi-factor full creep process of soft rock*. Journal of Marine Science and Engineering, 2021. **9**(9): p. 945.
159. Gbadam, E. and S. Frimpong, *Micromechanical and microstructural DEM modeling of the viscoelastic behavior of oil sands*. Advanced Materials Science, 2017. **2**(1): p. 1-11.
160. Gong, G. and X. Zha, *DEM simulation of undrained behaviour with preshearing history for saturated granular media*. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 2013. **21**(2): p. 025001.
161. Thornton, C., *Numerical simulations of deviatoric shear deformation of granular media*. Géotechnique, 2000. **50**(1): p. 43-53.
162. Oda, M., J. Konishi, and S. Nemat-Nasser, *Experimental micromechanical evaluation of strength of granular materials: effects of particle rolling*. Mechanics of materials, 1982. **1**(4): p. 269-283.
163. Yimsiri, S. and K. Soga, *Effects of soil fabric on behaviors of granular soils:*

- Microscopic modeling*. Computers and Geotechnics, 2011. **38**(7): p. 861-874.
164. Zhu, M., et al., *DEM investigation of strength and critical state behaviours of granular materials under true triaxial loadings*. Particuology, 2024. **85**: p. 198-212.

