モンテカルロ法と有限要素法の連成による焼結の ミクロ-マクロシミュレーション

森 謙一郎・松原秀彰*・野口寛洋**・清水正義***・野村 浩*

豊橋技術科学大学生産システム工学系, 441-8580 愛知県豊橋市天伯町雲雀ヶ丘 1-1

* (財) ファインセラミックスセンター, 456-8587 愛知県名古屋市中村区六野 2-4-1

** 豊橋技術科学大学大学院工学研究科生産システム工学専攻, 441-8580 愛知県豊橋市天伯町雲雀ヶ丘 1-1

*** (株) シーティーアイ科学技術部技術開発グループ, 450-0003 愛知県名古屋市中村区名駅南 1-27-2

Micro-Macro Simulation of Sintering Process by Combining Monte Carlo and Finite Element Methods

Ken-ichiro MORI, Hideaki MATSUBARA,* Nobuhiro NOGUCHI,**
Masayoshi SHIMIZU*** and Hiroshi NOMURA*

Department of Production Systems Engineering, Toyohashi University of Technology,

1-1, Hibiyaoka, Tempaku-cho, Toyohashi-shi, Aichi 441-8580

* Research and Development Laboratory, Japan Fine Ceramics Center, 2-4-1, Mutsuno, Atsuta-ku, Nagoya-shi, Aichi 456-8587

** Department of Production Systems Engineering, Faculty of Production Systems Engineering, Toyohashi University of Technology,
1-1, Hibiyaoka, Tempaku-cho, Toyohashi-shi, Aichi 441-8580

*** Research and Development Group, CTI Co., Ltd., 1-27-2, Meieki-Minami, Nakamura-ku, Nagoya-shi, Aichi 450-0003

A micro-macro method for simulating a sintering process of ceramic powder compacts based on the Monte Carlo and finite element methods is proposed. Macroscopic non-uniform shrinkage during the sintering is calculated by the viscoplastic finite element method. In the microscopic approach using the Monte Carlo method, powder particles and pores among the particles are divided into many cells, and the growth of grains in the particles and the disappearance of pores are simulated by means of the Potts model. The microscopic and macroscopic approaches are combined by exchanging microscopic and macroscopic information in each step. In the Monte Carlo method, the effect of macroscopic plastic deformation on the microstructural change is taken into consideration by including plastic strain-rate calculated by the finite element method in the disappearance frequency of pore cells. The shrinkage behavior in the sintering of circular two-layer compacts is simulated by the proposed micro-macro method.

[Received March 26, 2003; Accepted April 21, 2003]

Key-words : Ceramics, Sintering, FEM, Monte Carlo method, Micro-macro simulation, Combining method, Shrinkage

1. 緒 言

セラミックス製品はセラミックス粉末を圧粉成形した後、焼結によって製品になる。焼結では粉末粒子を拡散接合させているが、粉末粒子間にある気孔が小さくなって圧粉体は収縮し、圧粉体が不均一な密度分布を有していると焼結時に不均一に収縮する。また、大きな製品では自重によって不均一に収縮したり、焼結時の温度分布、底部の摩擦などによっても不均一収縮が現れる。不均一に収縮すると、所定の製品形状から外れたり、割れを生じる場合もある。

有限要素法は、素材を多数の要素に分割して計算する方法であり、実際の境界条件及び材料特性が考慮でき、しかも自由度が大きいため精度の高い計算結果が得られ、生産加工のシミュレーション法として広く使用されている。有限要素法は粉末成形にも応用されており、セラミックス材の圧粉成形、焼結などがシミュレーションされている^{1)~3)}。圧粉成形・焼結では、粉末粒子間の気孔の縮小によって見掛けの密度が変化するが、有限要素法は密度変化を巨視的な構成式で表している。有限要素法では密度変化だけを考慮しており、粉末粒子の形状、粒度分布などの微視的効果を取扱うことはできない。粉末冶金において、粉末粒子レベルで制御を行って製品の特性及び機能を向上させることが検討されているが、巨視的な構成式に基づいた従来の有限要素法ではこれらの要求には対処できない。また、有限要素シミュレーションでは収縮曲線のような材料特性を必要とするが、それらは一般に実験によって測定されてお

り、焼結中に収縮量の変化を測定することは容易ではない。

粉末成形における粒子レベルでの挙動を解析するために、個別要素法、粒状要素法などの粒子系解析法が提案されている。個別要素法では、個々の粉末粒子を要素と考え、要素同士の接触を考慮してニュートンの運動方程式を解くことによって要素の動きを計算しており、圧粉成形に応用されている⁴⁾。一方、粒状要素法では接触した粒子間の静的な力の釣り合い式を解いており、焼結のシミュレーションに拡張されている⁵⁾。これらの解析では、1粉末粒子を1要素と考えている。より微視的な解析法として、Matsubaraら^{6)~8)}は多結晶粒子と気孔を多数のセルに分割して計算するモンテカルロ法を提案しており、焼結における微視的な収縮及び粒成長を計算している。モンテカルロシミュレーションでは、焼結における気孔の拡散現象を取り扱って収縮挙動を計算しており、単なる収縮挙動だけでなく、気孔、結晶粒等の微視的組織変化も解析できる。著者ら⁹⁾は、モンテカルロシミュレーションから求めた収縮曲線を用いて焼結の有限要素シミュレーションを行い、実際の収縮曲線を測定しなくても巨視的焼結シミュレーションが可能であることを示している。しかしながら、焼結における微視的な組織変化は焼結体全体の巨視的な変形挙動によっても影響を受けて収縮曲線も変化するが、この効果は考慮されていない。

本研究では、セラミックス圧粉体の焼結において微視的なモンテカルロ法と、巨視的な粘塑性有限要素法を連成させたミクロ-マクロシミュレーション法を提案する。モンテカルロ法と

有限要素法で得られた計算結果をそれぞれの変形ステップで交換して、連成の効果を考慮する。連成された方法によって2層圧粉体の焼結をシミュレーションし、圧粉体の不均一収縮における曲がり変形及び微視的組織を計算する。

2. 焼結のマイクロ-マクロシミュレーション法

2.1 巨視的粘塑性有限要素法

焼結における巨視的収縮挙動をシミュレーションするために、粘塑性有限要素法^{1)~3)}を用いる。セラミックス圧粉体は焼結することによって収縮するが、圧粉体の密度分布、自重、異なった粉末などによって収縮が不均一になると、不均一収縮によって粘塑性変形が生じると考え、その粘塑性変形を本方法ではシミュレーションする。

粘塑性有限要素法では、焼結における全ひずみ速度 $\{\dot{\epsilon}^t\}$ を、均一収縮ひずみ速度 $\{\dot{\epsilon}^s\}$ と塑性ひずみ速度 $\{\dot{\epsilon}^p\}$ の和として表す。

$$\{\dot{\epsilon}^t\} = \{\dot{\epsilon}^s\} + \{\dot{\epsilon}^p\} \quad (1)$$

ここで、均一収縮ひずみ速度 $\{\dot{\epsilon}^s\}$ は焼結時に周囲から応力が作用しない状態で収縮する場合のひずみ速度であり、粘塑性有限要素法では材料特性となり、本方法ではモンテカルロ法から求める。圧粉体が不均一な密度分布及び異なった粉末を有していると均一収縮ひずみ速度が圧粉体内で均一でなくなり、それらによって塑性変形が生じるとして定式化している。(1)式を多孔質体の構成式¹⁰⁾に代入すると、(2)式の応力が求まる。

$$\{\sigma\} = [D][B]\{v_e\} - [D]\{\dot{\epsilon}^s\} \quad (2)$$

ここで、 $[D]$ は応力とひずみ速度の関係を表すマトリックスであり、 $[B]$ は全ひずみ速度と節点速度 $\{v_e\}$ の関係を表すマトリックスである。(2)式の応力を仮想仕事の原理に代入すると、節点力は次のように表される。

$$\{P\} = \left[\int_{V_e} [B]^T [D] [B] dV \right] \{v_e\} - \int_{V_e} [B]^T [D] \{\dot{\epsilon}^s\} dV + \int_{V_e} g \rho \gamma \{N\} dV \quad (3)$$

ここで、 g は重力加速度、 ρ は相対密度、 γ は密度、 $\{N\}$ は要素の形状関数である。(3)式の第2項は焼結収縮、第3項は自重の影響をそれぞれ表しており、第1項の全ひずみ速度の項からそれらを除いたものが塑性変形に対する節点力になる。(3)式を各節点ごとに釣合せて、その連立方程式を解くことによって解が求まる。

2.2 連成方法

焼結収縮における粘塑性有限要素法とモンテカルロ法を連成させたマイクロ-マクロシミュレーション法を提案する。焼結される圧粉体を多数の要素に分割して有限要素法によって巨視的変形を計算し、また各要素の中心において微視的な領域を考えて多数の粉末粒子を配置し、モンテカルロ法によって微視的収縮挙動を計算する。有限要素法とモンテカルロ法によって得られた情報を焼結中に交換することによって巨視的と微視的挙動の連成を図る。有限要素法からモンテカルロ法に巨視的なひずみ速度を渡し、逆にモンテカルロ法からは有限要素法の材料特性である均一収縮ひずみ速度を渡す。

連成シミュレーションの手順を図1に示す。まず、周囲から巨視的な応力が作用していない塑性ひずみ速度が0の条件で、すべての要素中心でモンテカルロシミュレーションを行い、微視的な粉末粒子の挙動を計算して、有限要素法の材料特性である(1)式の均一収縮ひずみ速度を求める。次に、計算された各

Fig. 1. Micro-macro simulation of sintering based on Monte Carlo and finite element methods.

要素の均一収縮ひずみ速度で有限要素シミュレーションを行い、各要素の巨視的な塑性ひずみ速度を計算する。巨視的な塑性ひずみ速度がモンテカルロシミュレーションにおいて周囲に作用しているとして微視的な粉末粒子の挙動を計算する。同時に、ひずみ速度が作用していない条件で均一収縮ひずみ速度を計算する。これを変形ステップごとに繰り返して、微視的な挙動と巨視的な挙動を計算する。モンテカルロ法では、有限要素法の材料特性である均一収縮ひずみ速度と微視的組織を計算するために、変形ステップごとに塑性ひずみ速度なしとありの2回の計算を行い、ひずみ速度ありの微視的な粉末粒子挙動だけを次のモンテカルロ法の微視的組織とする。

2.3 モンテカルロ法における巨視的変形の影響の考慮

粒成長を考慮した焼結のモンテカルロ法^{6)~8)}では、図2に示す2次元 Potts モデル¹¹⁾に基づいて粉末粒子と気孔を多数の6角形セルに分割してシミュレーションを行う。粉末の固相セルは64種類の異なる結晶方位を持っており、同じ結晶方位を有するセルの集合体は結晶粒となり、異なる結晶方位が接する粒界に粒界エネルギー、気孔と接する粒子表面に表面エネルギーをそれぞれ考える。乱数を用いてセルを選択し、そのセルが固相の場合には粒成長過程を、気孔の場合には消滅・拡散過程を試行させ、セル配置の変化に伴いエネルギー値が減少又は変化しない場合はその配置を採用し、増大する場合は試行前の配置に戻す。

焼結中に巨視的な応力及びひずみが作用すると、微視的組織の変化は影響を受け、収縮挙動も変わる。モンテカルロ法における気孔の消滅・拡散過程には、気孔が粒子内を体積拡散して粒界に達したときに消滅する機構と、気孔が粒子表面あるいは粒界を表面拡散する高速拡散機構があり、それぞれ収縮と気孔形状緩和に寄与している。本研究では、巨視的な変形が作用すると、気孔の消滅に影響を及ぼすと考え、気孔消滅機構に巨視的なひずみ速度を導入する。図3に示すように、粒界に達した気孔セル*i*に対して有限要素法で計算されたひずみ速度を6方向に割り振り、消滅頻度 Q_i は6方向の頻度の和として表される。

$$Q_i = c \sum_{j=1}^6 \frac{1}{6} \frac{\dot{\epsilon}_j^t}{\dot{\epsilon}_j^s} \quad (4)$$

ここで、 $\dot{\epsilon}_j^t$ は方向*j*の塑性ひずみ速度と均一収縮ひずみ速度の和として表される全ひずみ速度、 $\dot{\epsilon}_j^s$ は方向*j*の均一収縮ひずみ速度、 c は消滅頻度因子である。塑性ひずみ速度が0の場合は全ひずみ速度と均一収縮ひずみ速度が等しくなり、頻度は6

Fig. 2. Two-dimensional microscopic model in Monte Carlo method of sintering.

Fig. 3. Effect of macroscopic plastic strain-rate on disappearance of pore cell in Monte Carlo method.

Fig. 4. Calculation of shrinkage strain-rate in Monte Carlo method.

方向すべて等しく $1/6$ になる。一方、 $\dot{\epsilon}_i^p$ は収縮を表し負の値であるため、圧縮の塑性ひずみ速度の場合には消滅頻度は $1/6$ より大きくなって焼結が加速するが、反対に引張りの場合には焼結は減速する。気孔セルの消滅は、そのセルから最表面の固相セルまでをシフトさせることによって行う。

モンテカルロ法では2次元モデルを採用したため、平面ひずみ変形を仮定したが、実際の粉末は球体に近い形状をしており、有限要素法に渡すひずみ速度に対して2次元の情報を3次元に変換する必要がある。図4に示す正方形内において、計算された微視的組織の粉末割合から面積相対密度を計算し、それを $3/2$ 乗して相対密度を求め、相対密度の変化から均一収縮ひずみ速度を計算する。

3. 2層圧粉円板のシミュレーション

3.1 モンテカルロ法におけるセルサイズとステップ時間

モンテカルロ法では、セルサイズとステップ時間は物理的な

Fig. 5. Comparison between shrinkage volumetric strain obtained from Monte Carlo simulation and experiment.

意味を有していないため、実験を行って実際の焼結との対応を調べた。平均粒子径 $0.39\mu\text{m}$ と $1.38\mu\text{m}$ のアルミナ粉末をそれぞれ直径 25.5mm 、板厚 5.6mm の円板に圧粉成形し、それを 1400°C で焼結した。圧粉体は1層であり、密度分布はほぼ均一であり、焼結において均一に収縮した。

モンテカルロ法と実験より求められた均一収縮体積ひずみの変化を図5で比較する。モンテカルロ法では時間ステップが小さいため、有限要素法の1ステップをモンテカルロ法の5ステップに設定しており、 n は有限要素法のステップ数である。保持温度 1400°C に達するまでに少し焼結が進行するため、この部分を有限要素法の5ステップだけ追加している。モンテカルロ法における1ステップは保持時間約 0.12min 、1セルサイズは粒子径約 $0.12\mu\text{m}$ に対応している。

3.2 計算条件

提案された連成解析法によって、粒径の異なるアルミナ2層圧粉円板の焼結におけるマイクロ-マクロシミュレーションを行う。有限要素法では軸対称変形、モンテカルロ法で平面ひずみを仮定する。圧粉円板の直径は 25.5mm 、板厚 t_0 は 3.7mm 、 5.6mm 、 7.5mm 、相対密度は 0.5 であり、粒径だけが異なるため二つの粉末の変形抵抗は等しいとし、 1400°C で 1h 保持している。上層は平均粒径 $3.4\mu\text{m}$ セル、下層は平均粒径 $11.5\mu\text{m}$ セル粒子であり、上層と下層の厚さは等しい。モンテカルロシミュレーションでは、エネルギーを相対値として表し、アルミナの粒界エネルギーを 1 と基準にして表面エネルギーを 1.4 とし、(4)式の消滅頻度因子 c は 0.1 、粒成長と空隙高速拡散の頻度因子は 0.5 とした。

3.3 計算結果

圧粉円板の厚さ $t_0=5.6\text{mm}$ における有限要素法で計算された2層圧粉円板の巨視的変形を図6に示す。ここで、 n は有限要素法のステップ数である。上層の粒径が小さく収縮が大きいため、圧粉円板は焼結が進むにつれて上側に曲がる。32個の有限要素、 150×150 個のモンテカルロセルに対して、計算時間はパソコンで 90min 程度である。

$t_0=5.6\text{mm}$ においてモンテカルロ法によって計算された、図6に示す上層の要素17(3.4セル)と下層の要素9(11.5セル)における微視的組織変化を図7に示す。粒径の小さな上層では焼結が速く進み、焼結初期に緻密化が進んでいるが、下層では粒成長は起こっているが気孔の収縮は大きくない。

Fig. 6. Macroscopic shrinkage behavior calculated from finite element simulation of sintering of circular two-layer compacts having different amounts of shrinkage for $t_0 = 5.6$ mm.

3.4 連成効果

$t_0 = 5.6$ mm においてモンテカルロ法によって計算された気孔セルの半径方向消滅頻度の変化を図8に示す. 連成しない場合は気孔の消滅頻度は1/6で一定であるが, 曲がり変形によって上層は引張りを受けたため頻度が減少し, 反対に下層では頻度が大きく増加している.

$t_0 = 5.6$ mm における連成しない場合の微視的組織を図9に示す. 図7の $n = 105$ の連成した場合では, 上層は半径方向に引張りひずみを受けて収縮が抑制されるため, 連成しない場合よりも気孔量が多く, 相対密度が小さくなっている. 他方, 下層では圧縮ひずみを受け収縮が促進されるため, 連成する場合は反対に少し相対密度が大きくなっている.

連成する場合としない場合の焼結中の曲がり量 a/b の変化を図10に示す. 連成する場合は上層と下層の収縮差が小さくなって, 曲がり量は減少する. 連成することによって, 有限要素シミュレーションにおけるひずみがモンテカルロシミュレーションの焼結挙動に影響を及ぼし, 結果として有限要素シミュレーションにおける曲がり量が緩和されることを意味する重要な結果である.

$t_0 = 3.7$ mm における焼結された円板の断面形状の計算結果と実験を図11に示す. 焼結された円板の直径は実験結果とほぼ一致しているが, 計算された曲がり量は実験結果よりも大きくになっている.

焼結後の円板の曲がり量を図12に示す. 圧粉円板の厚さが増加するほど曲がり量は減少しており, 計算結果は実験結果と同じ傾向を示しており, 連成によって計算結果は実験結果に近づいている. 曲がり量は収縮量の差によって大きく影響を受けるため, 2次元モンテカルロ法では精度が十分でなく, 今後3次元モンテカルロ法の開発が必要である.

実験で観察された焼結体組織の走査型電子顕微鏡写真(SEM)を図13に示す. 写真の黒い部分は気孔である. 図7の $n = 105$ に示した計算された組織は, 実際の組織と同様な結果を示していることが分かる.

Fig. 7. Microstructural change calculated by Monte Carlo method for $t_0 = 5.6$ mm.

Fig. 8. Disappearance frequency in radial direction of pore cell for $t_0 = 5.6$ mm.

4. 結 言

モンテカルロ法と粘塑性有限要素法を連成させた焼結のミクロ-マクロシミュレーション法を提案した. 粘塑性有限要素法によって巨視的な塑性変形を, モンテカルロ法によって微視的組織変化を計算し, それぞれの情報を交換することに連成効果を考慮した. モンテカルロ法では, 巨視的な塑性変形の影響を

Fig. 9. Microstructures calculated by non-combined method for $t_0 = 5.6$ mm.

Fig. 10. Variation of bend with finite element step number.

Fig. 11. Comparison between cross-sectional shapes of sintered compact obtained from calculation and experiment for $t_0 = 3.7$ mm.

セルの消滅頻度の中に取り込んだ。2層圧粉体における焼結の不均一収縮を、マイクロ-マクロシミュレーション法によって計算し、2層の収縮ひずみの差によって曲がり変形及び微視的組織を求めた。有限要素法で材料特性になる均一収縮ひずみ速度は従来実験によって測定されていたが、本シミュレーションではモンテカルロ法からそれが求まり、均一収縮ひずみ速度履歴の測定実験が必要でなくなった。モンテカルロ法と有限要素法を連携させることにより、焼結体の曲がりは緩和されて、実験結果により近づくことが示された。しかしながら、モンテカルロ法に2次元モデルを使用したため、実験結果との定量的な一致は得られなく、今後は3次元モンテカルロ法を開発し、連成を行う予定である。

Fig. 12. Comparison between bends of sintered compact obtained from calculation and experiment.

Fig. 13. Microstructures in sintered compact observed from experiment.

(本研究の一部は、平成13, 14年度科学研究費基盤研究(C)によって行われた。)

References

- 1) Mori, K., "Numerical Methods in Industrial Forming Processes NUMIFORM'92," Ed. by Chenot, J.-L., Wood, R. D. and Zienkiewicz, O. C., Balkema (1992) pp. 69-78 (ISBN 90 5410 087 7).
- 2) Mori, K., Osakada, K. and Miyazaki, M., *Int. J. Mach. Tools Manufact.*, Vol. 37, pp. 1327-1336 (1997).
- 3) Umeda, M., Mori, K. and Murakami, M., *J. Ceram. Soc. Japan*, Vol. 110, pp. 844-851 (2002) [in Japanese].
- 4) Lian, J. and Shima, S., *Int. J. Numer. Meth. Eng.*, Vol. 37, pp. 763-775 (1994).
- 5) Mori, K., Ohashi, M. and Osakada, K., *Int. J. Mech. Sci.*, Vol. 40, pp. 989-999 (1998).
- 6) Matsubara, H., *Ceramics Japan*, Vol. 30, pp. 385-394 (1995) [in Japanese].
- 7) Matsubara, H. and Brook, R. J., *Ceramic Transactions*, Vol. 71, pp. 403-418 (1996).
- 8) Shimizu, M., Matsubara, H., Nomura, H. and Tomioka, H., *J. Ceram. Soc. Japan*, Vol. 111, pp. 205-211 (2003) [in Japanese].
- 9) Mori, K., Matsubara, H. and Umeda, M., "Simulation of Materials Processing: Theory, Methods and Applications," Ed. by Mori, K., Balkema (2001) pp. 239-244 (ISBN 90 2651 822 6).
- 10) Shima, S. and Oyane, M., *Int. J. Mech. Sci.*, Vol. 18, pp. 285-291 (1976).
- 11) Anderson, M. P., Srolovitz, D. J., Grest, G. S. and Sahni, P. S., *Acta Metall.*, Vol. 32, pp. 783-791 (1984).