セラミックス製品の焼結割れ事例へのシミュレーションモデルの適用†

宮田 昇・塩貝達也・山岸千丈・松尾陽太郎*

日本セメント(株)中央研究所, 135-8410 東京都江東区清澄 1-2-23

*東京工業大学工学部無機材料工学科, 152-8552 東京都目黒区大岡山 2-12-1

Application of Simulation Model to Phenomenon of Cracked Products during Sintering

Noboru MIYATA, Tatsuya SHIOGAI, Chitake YAMAGISHI and Yohtaro MATSUO*

Central Research Laboratory, Nihon Cement Co., Ltd., 1-2-23, Kiyosumi, Koto-ku, Tokyo 135-8410

*Tokyo Institute of Technology, 2-12-1, Ookayama, Meguro-ku, Tokyo 152-8552

A phenomenon that crack was formed in the manufacturing process of Al_2O_3 products was analyzed with a simulation model developed in previous papers. The position of stress concentration by finite element analysis was compared with the cracked position to examine the model for its validity. Analytical results for tensile stress concentration and deformation agreed well with the actual phenomenon. Furthermore, the value of maximum principal stress analytically decreased with increasing thickness of the part at which the crack generated, and this also agreed with the actual phenomenon. A new developed FEM model for simulating the sintering process of ceramics was considered to be effective in predicting crack generation in products and in taking steps to prevent cracking. [Received August 28, 1997; Accepted February 20, 1998]

Key-words : Sintering, Shrinkage, Finite element analysis, Simulation, Sintering rate, Crack, Manufacturing process, Product, Al_2O_3

1. 緒 言

セラミックス製品を製造する際に、特に焼結時に、何らかの原因により変形、又は、割れが発生することがある。セラミックス焼結時に発生する割れや変形は、焼結途中に発生する応力によると考えられる。

焼結途中に応力が発生する原因として、成形体中にできた密度分布により不均一な焼結収縮につながる場合¹⁾、焼結時に成形体中に生じる温度分布により瞬間的に収縮が不均一になる場合²⁾、異質相が混在して収縮率のミスマッチにつながる場合³⁾、等が考えられる。Raj と Bordia³⁾は、成形体中に収縮率や収縮速度の異なる相が混在する複合体について、収縮速度が速い相が内側にある場合には周方向に、逆に、遅い相が内側にある場合には径方向に亀裂が入ることを理論計算している。

しかし、焼結途中の成形体の物性値の評価や、発生している応力を実際に測定することが難しいために、Raj らの例を除くと、焼結途中に発生している応力について実際の現象と比較して検討された例はほとんどない。特に、実製品のような複雑な成形体を焼結する際に発生する割れを、焼結途中に製品内に生じる応力と関連付けて論じた報告はこれまでにない。

本報では、 Al_2O_3 の実製品を焼結した際に発生した割れ事例に対して、前報⁴⁾で作成した有限要素法 (FEM) による焼結過程のシミュレーションモデルを用いて、焼結時の不均一収縮が原因で発生する応力や変形を解析した。更に、成形体の形状を変更したときの応力の変化についても解析した。これらの結果を実際の割れ事例と比較することで、作成したシミュレーションモデルを用いて計算される応力と製品中の割れ発生位置との関係について検討した。

2. 製品事例

図 1 に、実製品の製造時に焼結の段階で割れが発生した製品

の写真を示す。

この製品は、原料粉末として Al_2O_3 (昭和電工製) を用いたもので、図 1 の写真は焼結後の状態である。形状の特徴として、成形体の段階で、厚さが 22 mm の内側の肉厚部 (A 部) と、同様に厚さが 22 mm の外側の肉厚部 (B 部) の間が、厚さ 1 mm の溝状部分 (C 部) で繋がっている。

この製品は、写真の形状で大きさが約 1.2 倍の成形体 (成形体の相対密度が約 58%) を、大気中で 100 K/h で 1873 K まで昇温し、3h 保持するという工程で製造された。製品を炉内から取り出したところ、図 1 中の C 部のコーナー部 3 箇所所に亀裂が発生しており、更に、外側の肉厚部 (B 部) がわずか (0.1 ~ 0.2 mm 程度) に上方向にそり上がっていた。

また、C 部の肉厚を 2 mm とすることで、割れを回避して焼き上げることができた。

Fig. 1. Photographs of crack in product after sintering.

† この報文を“有限要素法を用いたセラミックスの常圧焼結過程のシミュレーション (第 3 報)”とする。
“Simulation for Normal Sintering of Ceramics by Finite Element Analysis (Part 3)”

3. 解析方法

3.1 解析方法

C部に割れの発生した現象をシミュレーションするために、前報⁴⁾にて作成したシミュレーションモデルを用いて、焼結途中に製品各部に発生するひずみが原因となって発生する応力を解析した。

始めに熱伝導解析により成形体内の温度分布を計算した。昇温速度を100 K/hとして、段階的に昇温したときの、各時刻における温度分布を求めた。

熱伝導解析により求めた各部の温度分布と各部の密度分布をもとに、成形体各部の各時刻における収縮速度を求めた。原料粉末は、前々報⁵⁾で収縮速度式を求めたときに用いたもの(前々報⁵⁾の $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-B}$)と同じなので、そのときに求めた収縮速度式((1)式)を用いた。

$$\dot{\varepsilon}_t = \frac{3.2 \times 10^{19} \cdot (1-\rho)^{1.5} \cdot \rho^{-20} \cdot \exp(-Q/RT)}{T} \quad (1)$$

(1)式中の活性化エネルギー Q には、740 kJ/mol (177 kcal/mol)を用いた⁵⁾。

成形体の状態を表す変数として温度 $T(\text{K})$ と相対密度 $\rho(-)$ を用い、 k ステップ目の相対密度 ρ_k は、主ひずみ($\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3$)を用いて、(2)式より定義した。

$$\rho_k = \rho_{\text{ini}} + \sum_k \left(\sum_{j=1}^3 \varepsilon_{kj} \right) \quad (2)$$

ρ_{ini} は成形体の初期相対密度である。

焼結による収縮(ひずみ)は、(1)式で求めた収縮速度と保持時間の積により算出した。更に各瞬間で成形体内の各部の収縮差から生じるひずみと、それによって生じる応力を算出した。

3.2 用いた物性値

今回作成したシミュレーションモデルで焼結過程をシミュレーションするためには、物性値として、熱伝導率、比熱、ヤング率、ポアソン比が必要である。そのためには、焼結途中のセラミックスの各特性を把握する必要がある。

Al_2O_3 の熱伝導率、比熱は、前報⁴⁾の値を用いた。

セラミックスを焼結する際に、高温になると粘性が大きくなるために、焼結途中のセラミックスの弾性定数を正確に把握することは難しい。焼結過程の Al_2O_3 のヤング率は、焼結初期の段階では成形体のヤング率に等しく、その後、緻密化の進行に伴ってヤング率が大きくなることが予想される。図2に、今

回の原料粉末を用いて相対密度が73, 85, 99%の Al_2O_3 焼結体を作製し、室温から1773 Kの温度範囲で曲げ共振法によりヤング率を測定した結果を示す。各試料のヤング率は1373 Kまではほぼ一定値をとり密度に依存した値となっているが、それ以上の高温では、密度の低いものから順に急激な低下を示している。このような Al_2O_3 焼結体の高温ヤング率の密度依存性については、CobleとKingery⁶⁾も類似した結果を報告している。そして図2の結果からは、今回の粉末で焼結により密度変化が始まる1573 K以上ではヤング率が急激に低下しているために、ヤング率を温度や密度の関数として把握するのは難しい。そこで本報では、室温のヤング率を密度の関数 $E(\rho)$ で表した(3)式を焼結途中のヤング率として代用して応力計算に用いた。

$$E(\rho) = 864 \times (\rho - 0.53) \quad (3)$$

ポアソン比は、CobleとKingery⁶⁾が Al_2O_3 について測定した1273 K以上の高温域では0.4~0.5という結果を参考にして、0.4と仮定した。

4. 事例への適用

4.1 割れ事例の解析

図1に示した Al_2O_3 製品の割れ事例を、FEM計算した。解析に用いたハードウェア、及び、ソフトウェアは、前報⁴⁾と同様である。

今回の解析では、初期相対密度は0.58で一様とした。FEM解析の中では昇温は図3に示すパターンで段階的にを行い、図3中の昇温幅(ΔT)は50 Kとした。

外部から与えた温度を設定温度としたときに、図1(c)のC部の肉厚が1 mmの成形体について、設定温度が1673 K(図3中の(1))、1773 K(同(2))、1873 K(同(3))と1873 Kで3h保持後(同(4))のときの製品内の温度分布を図4に示す。各設定温度の場合とも、外側のB部、C部の温度が高く内側の肉厚部(A部)が低い、設定温度が高くなるにつれて温度差は小さくなり、1873 Kで3h保持後は温度差はなくなった。

各設定温度における製品各部の相対密度分布を、図5に示す。密度分布は温度分布と類似した分布を示しており、密度が最も高いのはC部で低いのはA部であった。設定温度が高くなるにつれて密度差は小さくなり、1873 Kで3h保持後の密度差は0.2%と非常に小さくなった。

これらの温度分布と密度分布の解析結果を用いて、各設定温

Fig. 2. Young's modulus of Al_2O_3 as a function of temperature at selected density.

Fig. 3. Sintering profile used FEM simulation.

Fig. 4

Fig. 5

Fig. 6

Fig. 7

Fig. 4. Temperature distribution in compact during sintering.

Fig. 5. Relative density distribution in compact during sintering.

Fig. 6. Maximum principal stress distribution in compact during sintering.

Fig. 7. Vertical displacement of compact during sintering.

度で製品内部に生じているひずみ、ならびに、応力を計算した。解析結果のうち最大主応力の分布図を図6に示す。各設定温度の場合とも、肉薄のC部に、最大引張り応力が発生した。解析により得られた最大引張り応力の発生位置は、製品中の割れの発生位置と良く一致していた。ヤング率に概略値を仮定しているので応力の絶対値に関する詳細な議論はできないが、各段階における応力値の変化を比較してみると、1873 Kまでは、焼結温度の上昇とともに応力値は増加したが、1873 K到達時から1873 Kで3h保持後の間での応力値の増加する割合は小さかった。このような挙動は、ヤング率に密度依存性のみを考慮した値を仮定したことが影響している。1873 Kまで応力値の増加する割合が大きいののは密度増加によるためで、1873 K到達時から1873 Kで3h保持後の間で応力値の増加する割合が小さいのは、その間での密度増加の割合が小さく、更に、各部の密度が均一化してひずみが小さくなったためである。

製品の焼結途中の変形のうち、 z 方向（鉛直方向）の各部の焼結前からの変位量と変形の様子を図7に示す。 z 方向に関しては収縮により下方向に縮んでいくので、通常は、マイナスの変位量となる。変位量がプラスの値になるのは、変位の方向が逆向きであることを表している。解析結果は、外側の肉厚部（B部）は、上方向にそり上がるような変形を示した。1873 Kで3h保持後の z 方向の変位量は0.16 mmであった。変形の方

Fig. 8

Fig. 9

Fig. 8. Maximum principal stress distribution in compact changed thickness of part-C.

Fig. 9. Vertical displacement of compact during sintering.

向とその変形量は、実際の製品の事例とよく一致していた。

図4、図5より、各設定温度における製品内の温度分布と密度分布はB部、C部が高く、A部が低くなっている。これは、

B 部, C 部は厚みが薄いので温度が上がりやすく, その結果として収縮速度も A 部より速くなるので密度も高くなるためである. B 部, C 部は速く中心に向かって収縮しようとしても A 部の収縮が遅れるために均一な収縮ができないが, B 部の上部は拘束がないために自由に収縮しようとすると考えられる. その結果, B 部の上部が中心に向かって収縮しようとするのに対して, B 部の底面部 (C 部との接統部) が同じような中心に向かっての収縮ができないために, B 部が上方向に向かってそり上がり, 厚みの薄い C 部で割れが発生したと考えられる.

4.2 形状変更の効果

次に焼結割れを回避するために, 割れ発生部の肉厚を厚くすることによる応力低減の効果をシミュレーション・モデルを用いて調べた.

C 部の肉厚を 2 倍, 及び, 3 倍に厚くして, 他の部分の形状は変更しないものについて, 同様の解析を行った. 最大引張り応力が発生した 1873 K で 3h 保持後における最大主応力の分布図を図 8 に示す. いずれの場合とも, 最終到達密度は約 96% と一定であった. C 部の肉厚を厚くしても最大引張り応力の発生位置は変化しないが, 発生する応力は, 肉厚が 2 倍, 及び, 3 倍の場合に, それぞれ, 62%, 51% に低減されるという解析結果になった.

図 9 に, 1873 K で 3h 保持後の各部の z 方向の変位量を示す. 肉厚が厚くなっても, 上方向への変形にはほとんど変化がなかった. 各肉厚における B 部先端のそり量は, 0.16 mm (肉厚 1 mm), 0.16 mm (2 mm), 0.17 mm (3 mm) であった.

実際の事例では, 肉厚を 2 倍 (2 mm) にすることで, やや上方向にそり上がった (0.1~0.2 mm 程度) ものの, 割れずに焼き上げることができていることから, C 部の肉厚を厚くすることにより応力を低減する効果があるというシミュレーションの結果は, 定性的ではあるが, 実際の事例と良く一致した.

このように, 今回作成したシミュレーション・モデルより得られた応力集中位置, 変形の方法, ならびに, 形状変更による

応力緩和効果に関する解析結果は, 実際の製品での割れ発生位置, そりの方向, ならびに, 肉厚を増すことによる割れ回避, といった事例と良く合っており, 本モデルは, 製品の割れ事例を解析し, 対策を講じるうえで有効なモデルと思われる.

今回の解析では, 発生する応力の位置と, 形状変更による応力低減効果の相対的な比較を主として行った. 今後, 発生する応力の大きさと実際の製品の強度との関係についても検討していくことで, 更に推定精度を向上することが可能と考えられる.

5. 結 言

前報で作成した有限要素法による焼結過程のシミュレーションモデルを, Al_2O_3 製品の焼結割れ事例に当てはめて, 作成したモデルの妥当性を評価した. 割れ事例をシミュレーションした結果, 解析で最大引張り応力の発生した位置と割れの発生した位置, ならびに, 解析による変形の方法とそりの方向は良く一致した. また, 形状変更による応力低減効果についても, 解析結果は実際の結果と良く一致した.

したがって, 本シミュレーション・モデルは, セラミックス製品の焼結時の応力の発生位置とその低減効果等を予測する上で有効な手段であることが明らかになった.

文 献

- 1) 森 謙一郎, 小坂田宏造, 米田辰雄, 平野俊明, 塑性と加工, 32, 1136-41 (1991).
- 2) B. Dorri, V. Kadambi, F. W. Staub and D. R. Lynch, *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 24, 47-57 (1987).
- 3) R. Raj and R. K. Bordia, *Acta Metall.*, 32, 1003-19 (1984).
- 4) 宮田 昇, 塩貝達也, 山岸千丈, 松尾陽太郎, *J. Ceram. Soc. Japan*, 106, 565-69 (1998).
- 5) 宮田 昇, 塩貝達也, 山岸千丈, 松尾陽太郎, *J. Ceram. Soc. Japan*, 106, 494-99 (1998).
- 6) R. L. Coble and W. D. Kingery, *J. Am. Ceram. Soc.*, 41, 377-85 (1956).