2層タイルの圧粉成形及び焼結における材料特性の測定と有限要素シミュレーション

梅田 学・森 謙一郎*・村上守人**

(株)INAX 基礎研究所, 479-8588 愛知県常滑市港町 3-77

*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

**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

Determination of Material Properties and FEM Simulation in Powder Compaction and Sintering of Tiles Having Two Layers of Powders

Manabu UMEDA, Ken-ichiro MORI* and Morito MURAKAMI**

Basic Research Center, INAX Corporation, Minato-cho, Tokoname-shi, Aichi 479-8588

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

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

The densification behaviors in compaction and sintering processes of tiles having two layers of powders were simulated by the viscoplastic finite element method. The shrinkage strain-rate and the flow stress of the powders during the sintering required as material constants for the simulation were measured from a simple compression test with constant load. The occurrence of sintering fracture was predicted from the difference of volumetric strain calculated by the finite element simulation. The critical difference of volumetric strain for predicting the occurrence of sintering fracture was obtained from a three-points bending test during the sintering. The accuracy of the simulation was improved by using the flow stress with strain-rate and temperature sensitivities and the shrinkage strain-rate history.

[Received March 18, 2002; Accepted June 18, 2002]

Key-word : Ceramics, Sintering, Powder, Flow stress, Fracture, Tile, Finite element method

1. 緒 言

建材用床タイルは一般にセラミック粉末を金型で乾式圧粉成形し、その後焼結することによって製品となる。製品であるタイルの表面には溝が付けられているため、金型成形された圧粉体は不均一な密度分布を有しており、焼結中に不均一に収縮して割れ及び曲がりが生じる場合がある。また、タイルの上層は加飾されているが、下層は安価な粉末が使われており、上層と下層の収縮率が異なり、不均一収縮の原因になる。最近意匠面からタイル表面の溝の深さが大きくなり、焼結中に割れが発生しやすくなっている。タイルの製造プロセスは経験によって設計されているが、焼結の不均一収縮挙動を予測することができれば、製造プロセスの設計が容易になる。

塑性加工分野では、有限要素シミュレーションを用いた加工プロセスのシミュレーションが盛んになりつつあり、得られた情報を元にして加工プロセスの設計が行われており、セラミックスの焼結においても同様なシミュレーションが望まれている。Mori ら¹⁾は多孔質体の塑性構成式に収縮ひずみ速度を導入することによって、セラミックス圧粉体の焼結の不均一収縮挙動をシミュレーションする粘塑性有限要素法を提案している。本方法では、密度分布・自重・摩擦の影響が考慮でき、ネットシェイプ成形²⁾、割れ発生予測³⁾、傾斜積層粉末材⁴⁾などに応用されている。一方、Riedel ら⁵⁾は粘弾性体構成式に、Shinagawa ら⁶⁾は多孔質体塑性構成式にそれぞれ焼結応力を導入して、焼結の有限要素法の定式化を行っている。一方、Miyata⁷⁾らは粘弾性有限要素法を焼結に応用しているが、焼結における変形を弾性変形として取扱うのは誤差が大きい。

焼結の有限要素シミュレーションでは、変形抵抗、収縮曲線などの材料特性が必要となるが、焼結は高温であるため測定は

一般に容易ではない。Mori ら²⁾は圧粉体の焼結曲げ試験を行い、測定結果と有限要素シミュレーションの結果と一致させることによって変形抵抗を求めている。また、異なった粉末の変形抵抗比を円筒圧粉体に円柱圧粉体を挿入して焼結することによって求めている⁴⁾。一方、Shinagawa ら⁶⁾は変形抵抗を粘性係数で表し、粘性係数を温度、結晶粒径、相対密度の関数としてその定数をクリープ試験から決定している。これらの変形抵抗の決定では、変形抵抗はひずみ速度に比例するとしてニュートン流体を仮定しているが、セラミックス圧粉体は焼結中固体を保っており、ひずみ速度依存性指数は1よりも小さいと推察される。また、高温下で直接変形抵抗とひずみ速度の関係を測定した試験は行われていない。

本研究では、焼結において定荷重単純圧縮試験を行い、焼結中の温度とひずみ速度依存性を考慮した変形抵抗式を求める。また、焼結において3点曲げ試験を行い、割れが発生する限界ひずみを測定する。測定された材料特性を用いて、2層タイルの圧粉成形及び焼結の有限要素シミュレーションを行い、焼結割れの予測を行う。

2. 焼結の粘塑性有限要素法

2層タイルの焼結における不均一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²⁾を用いる。焼結においてセラミックス圧粉体は収縮するが、密度の分布、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。

全ひずみ速度 $\{\dot{\epsilon}\}$ は焼結収縮ひずみ速度 $\{\dot{\epsilon}^s\}$ と塑性変形ひずみ速度 $\{\dot{\epsilon}^p\}$ の和となる。

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

有限要素法では、ひずみ速度 $\{\dot{\epsilon}\}$ は節点速度 $\{v_e\}$ に比例する。

$$\{\dot{\epsilon}\} = [B]\{v_e\} \quad (2)$$

ここで、 $[B]$ はひずみ速度と節点速度の関係を表すマトリックスである。塑性変形は多孔質体の構成式⁹⁾に従うとして、(3)式が得られる。

$$\{\sigma\} = [D]\{\dot{\epsilon}^p\} \quad (3)$$

ここで、 $[D]$ は応力と塑性ひずみ速度の関係を表すマトリックスである。(1)式と(2)式を(3)式に代入すると、応力は次式で表わされる。

$$\{\sigma\} = [D][B]\{v_e\} - [D]\{\dot{\epsilon}^s\} \quad (4)$$

仮想仕事の原理から、節点力 $\{P\}$ は次式で求まる。

$$\{P\} = \int_{V_e} [B]^T \{\sigma\} dV + \int_{V_e} g\rho\gamma\{N\} dV \quad (5)$$

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。(4)式を(5)式に代入すると、節点力は次のように表わされる。

$$\{P\} = \left[\int_{V_e} [B]^T [D] [B] dV \right] \{V_e\} - \int_{V_e} [B]^T [D] \{\dot{\epsilon}^s\} dV + \int_{V_e} g\rho\gamma\{N\} dV \quad (6)$$

(6)式の右辺第1項は塑性変形、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いる。(6)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。

$$\sum_{\text{element}} P_i = \begin{cases} 0 (\text{材料内部}) \\ F_i (\text{表面}) \end{cases} \quad (7)$$

ここで、 F_i は敷き板との摩擦などの外力である。(6)式で表わされる $\{\dot{\epsilon}^s\}$ は実験より求められる焼結収縮ひずみ速度であり、圧粉体の密度分布が不均一であると焼結収縮ひずみ速度が分布してそれによる塑性変形を本解析法では計算している。

3. 焼結における材料特性の測定

3.1 変形抵抗の決定方法

焼結の有限要素シミュレーションを行うために、材料特性として焼結時の変形抵抗が必要である。図1に示す熱機械分析装置(理学電機製、TMA8310)を用いて、焼結中の定荷重単純圧縮試験を行い、変形抵抗を測定する。熱機械分析装置は、圧粉体試験片に重りによって一定荷重を作用させながら室温から1500°Cまでの温度範囲で変位を測定できるものであり、焼結における温度履歴で定荷重単純圧縮を行うことができる。荷重を加えない場合では単なる焼結収縮であるが、荷重を作用させることによって圧粉体を塑性変形させて変形抵抗を測定できる。測定された変位から荷重を加えない変位を引いたものが、塑性変形による変位であり、塑性変形におけるひずみを求めることができる。測定においては、変位を検出するための棒が熱膨張するため、もう一つの検出棒にアルミナ標準試験片を置いて棒の熱膨張を打ち消している。荷重の増加とともに応力が大きくなり、塑性変形ひずみ速度も大きくなって、焼結における物質移動の促進効果が考慮される。

単純圧縮において、多孔質体の降伏条件式⁹⁾より、塑性変形における変形抵抗 $\bar{\sigma}$ は次式のように求まる。

Fig. 1. Simple compression test with constant load for measurement of histories of shrinkage and flow stress in sintering.

$$\bar{\sigma} = 1/\rho^k \{ \sigma_z^2 + (\sigma_z^2/9f^2) \}^{0.5} \quad (8)$$

$$f = 1/2.5(1-\rho)^{0.5}$$

ここで、 ρ は相対密度であり、材料定数 k は圧粉成形において決定された値を用いた。単純圧縮における相当ひずみ速度 $\dot{\epsilon}$ は次のように表される。

$$\dot{\epsilon} = \rho^{k-1} [4/9(\dot{\epsilon}_x - \dot{\epsilon}_z)^2 + \{f(2\dot{\epsilon}_x + \dot{\epsilon}_z)\}^2]^{0.5} \quad (9)$$

(8)式と(9)式より変形抵抗と相当ひずみ速度を求め、変形抵抗式を決定する。

3.2 圧縮試験条件

実験に用いたセラミックス粉末は長石、粘土、陶石の混合粉であり、加飾された上層とされていない下層の2種類の粉末を用い、大気中で焼結を行った。圧粉体試験片は断面の1辺が5 mm、高さが20 mmの直方体であり、圧粉体の相対密度 ρ_0 は0.66, 0.7, 0.73, 0.75, 0.78, 0.80である。定荷重単純圧縮試験において、振動などによる変位の外乱を除くために0.98 mNの微小な荷重を作用させ、それを焼結収縮のみの変位として、焼結収縮特性とした。試験荷重 P は49, 98, 196, 294 mNであり、荷重を増加させることにより試験片の塑性ひずみ速度を変化させた。荷重を294 mNより大きくすると、試験片は座屈を起こして正確な測定が不可能となる。熱機械分析装置では、軸方向の変位だけが測定され、直交方向の変位を測定することは困難であるため、焼結前後の寸法より得られる軸方向と直交方向ひずみの比を用いて、焼結中の直交方向ひずみは軸方向ひずみに比例するとして求めた。

3.3 収縮履歴

$P=0.98$ mNである焼結収縮のみの圧粉体の変位と焼結温度履歴を図2に示す。圧粉体は焼結初期に粘土の脱水によって少し膨張し、800°C付近から長石の溶融によるガラス化で収縮が始まり、収縮は900°Cから1200°Cの間で大きくなり、最高温度の1250°Cで収縮がほぼ停止し、その後素地中に閉じ込められたガスの内圧上昇とガラスの粘性低下により少し膨張する。相対密度が小さいほど収縮量は大きくなり、下層の収縮は上層のものよりも少し大きい。

(a) Upper layer

(b) Lower layer

Fig. 2. Histories of displacement in sintering measured by simple compression test for $P=0.98$ mN.

塑性変形による軸方向ひずみ速度履歴を図3に示す。荷重を作用させた変位から0.98 mNの微小な荷重を作用させた場合の変位を引いて、塑性変形による軸方向ひずみ増分を求め、これを時間で除して求めた。塑性変形による軸方向ひずみ速度は800°C付近から大きくなり、最高温度を少し過ぎた温度以降でひずみの増加は小さくなる。上層のほうがひずみ速度が大きい。焼結による収縮は800°C以上で起こっているため、この領域で変形抵抗曲線を求める。

3.4 変形抵抗曲線

焼結中の変形抵抗 $\bar{\sigma}$ は温度 T とひずみ速度 $\dot{\epsilon}$ の関数として(10)式で近似した。

$$\bar{\sigma} = F \exp(C/T) \dot{\epsilon}^m \quad (10)$$

ここで、 F , C , m は材料定数であり、 m はひずみ速度依存性指数を表し、 T は絶対温度である。

重回帰分析を用いて実験結果を(10)式に近似し、得られた材料定数を表1に、近似曲線を図4にそれぞれ示す。昇温と降温では別の曲線として近似し、 F , C の値は昇温と降温でかなり異なっているが、 F , C の値は(10)式中で掛け合わされており、昇温と降温における変形抵抗は大きな差ではない。近似曲線は実験結果をほぼ近似している。ひずみ速度依存性指数 m の値は1より小さく、 m の値が1である粘性係数を適用すると誤差が大きくなることが分る。

4. 圧粉成形と焼結のシミュレーション

4.1 圧粉成形

溝を持つ円柱状2層タイルの圧粉成形と焼結の有限要素シ

(a) Upper layer

(b) Lower layer

Fig. 3. Histories of axial strain-rate in sintering measured by simple compression test for $\rho_0=0.75$.

Table 1. Material Constants Determined in Eq. (10) of Flow Stress in Sintering

Layer	Constants	Heating	Cooling
Upper	F /MPa	0.0013	28.847
	C /K	10678	1044
	m	0.459	0.667
Lower	F /MPa	0.000047	33.182
	C /K	18490	243
	m	0.655	0.606

ミュレーションを行う。図5に示すように金型に粉末を充填し、シミュレーションを行う。円形溝では、深さ h を変化させて圧粉体の密度分布を変え、焼結割れの発生時期に及ぼす影響を調べる。また、リング溝では計算された圧粉体の密度分布を実験結果と比較する。圧粉成形における材料定数は密閉型単純圧粉試験から求めた。計算は軸対称変形とし、圧粉時の金型は剛体として取り扱い、金型の摩擦係数は0.15である。粉末充填時の相対密度は上層が0.50、下層が0.41であり、高さが10 mm になるまで上ボンチによって圧粉成形した。上層と下層の滑りはないと仮定した。

Fig. 4. Measured flow stress in sintering and approximate curve expressed by function of equivalent strain-rate and temperature.

円形溝の圧粉体において溝深さ $h=2.5$ mm における圧粉成形時の断面の要素形状を図6に示す。金型角部で要素がくい込むことを防ぐため、各変形ステップごとに要素の再分割を行って角部に節点を置いている。

円形溝の圧粉体において、計算により求められた圧粉体の相対密度分布を図7に示す。溝部分で実質の圧下率が大きくなるため、この部分で相対密度が大きくなり、溝深さが深いほど相対密度は大きくなっている。

密度分布の計算精度を検証するため、リング溝圧粉体においてマイクロフォーカスX線透過CTを用いて密度分布を測定した¹⁰⁾。X線CTにおけるX線透過率と圧粉体の相対密度の関係を図8に示す。

計算から得られた相対密度分布を、図8の関係をjyいて測定された相対密度分布と図9において比較する。X線CTにおける測定では表面付近の急激な密度変化は測定しにくいが、両者の結果は溝部分で相対密度が高くなっており、ほぼ一致している。

4.2 焼 結

圧粉成形のシミュレーションにより得られた図7の相対密度分布を基にして焼結のシミュレーションを行う。シミュレーションは図3の破線間で示した昇温の800°Cから降温の800°Cまでを取り扱い、1ステップを60 sとして、84ステップのシミュレーションを行った。

溝深さ $h=2.5$ mm における焼結時の要素変形を図10に示す。焼結体の高さが直径に対し比較的大きいため、反りは小さ

Fig. 5. Compaction of circular tiles having two powder layers.

い。

計算によって得られた焼結後の相対密度分布を図11に示す。焼結収縮により相対密度分布は上昇しており、 $h=2.5$ mmの方が不均一な密度分布になっている。

5. 焼結割れの予測

5.1 予測方法

タイルには溝が付いているため、圧粉体は不均一な密度分布を有することになり、焼結時の割れ発生の原因になる。焼結割れを予測するために、Mori³⁾らは体積ひずみ差を用いた圧粉体の焼結割れの条件式を提案している。均一に収縮する場合との体積ひずみ差 $\Delta \epsilon_v$ は焼結時の平均的な静水圧応力を示しており、この値が正のときは引張りの静水圧応力となって割れが発生すると考え、焼結割れの条件式では体積ひずみ差 $\Delta \epsilon_v$ が一定値に達すると割れが発生するとしている。

$$\Delta \epsilon_v = a \quad (11)$$

ここで、 a は実験から測定される限界値である。論文³⁾の条件式では割れ発生を確率で表していたが、本研究では一定値以上で全て割れるとしている。体積ひずみ差を用いた割れ発生条件式を用いて溝付きタイルの焼結割れの発生を予測する。

有限要素シミュレーションによって焼結割れの予測を行うた

Fig. 6. Element mesh in compaction of circular tile with circular groove for $h=2.5$ mm.
 -----Interface between upper and lower layers.

Fig. 7. Distributions of calculated relative density in compact of circular tile with circular groove.
 -----Interface between upper and lower layers.

Fig. 8. Relationship between ratio of X-ray transparency and relative density in X-ray computed tomography.

Fig. 9. Comparison between calculated and experimental density distributions in compact of circular tile with ringed groove.
 -----Interface between upper and lower layers.

めには、(11)式の限界値 a を測定しなければならない。焼結のような高温下で引張試験を行うことは困難であるため、図12に示すような圧粉体の焼結3点曲げ試験を提案する。焼結曲げ試験において、荷重を変化させて割れが発生する時期を調べ、その際のひずみを測定することによって限界値 a 値を求めた。圧粉体試験片は変形抵抗を測定したのと同じものであり、それを横にして荷重を作用させた。圧粉体は室温で荷重を作用させると割れるため、900°Cで荷重を作用させて、荷重 P は784~980 mNの範囲であり、割れの有無は目視で判定した。

Fig. 10. Distortions of element mesh in sintering of circular tile with circular groove for $h=2.5$ mm.
Interface between upper and lower layers.

Fig. 11. Distributions of calculated relative density in circular tile with circular groove after sintering.
Interface between upper and lower layers.

焼結割れが生じる上層粉末の圧粉体を用いた焼結3点曲げ試験から求められた焼結割れ発生時の体積ひずみ差を図13に示す。破線は各相対密度における割れありとなしの境界値を示し

Fig. 12. Three-points bending test in sintering for obtaining critical volumetric strain difference of fracture.

Fig. 13. Relationship between maximum difference of volumetric strain and load.

ている。相対密度が大きくなるほど、小さい体積ひずみ差で割れが生じている。有限要素シミュレーションでは、体積ひずみ差の限界値を相対密度に関して線形補間して用いる。

5.2 割れ発生の予測

図5(a)に示した円形溝の圧粉体において、溝深さを変化させてシミュレーションを行い、割れの予測を行う。計算では、要素ごとに体積ひずみ差を計算し、限界値と比較することによって焼結割れを予測する。

溝深さ $h=1.6, 2.5$ mm において、正の体積ひずみ差から焼結割れの限界値を差し引いた分布を図14に示す。正の領域で割れが発生したと予測される。 $h=1.6$ mm では限界値よりも大きな体積ひずみ差は計算されず割れは発生しないと予測されるが、 $h=2.5$ mm の場合では焼結割れは溝底角部と上面付近で発生すると予測される。

計算により得られた最大体積ひずみ差と溝深さの関係を図15に示す。溝深さが大きくなるほど最大体積ひずみ差は増加し、溝深さが2.5 mm 以上においては割れが発生すると計算で予測され、計算結果は実験結果と一致している。

$h=2.5$ mm における実験から得られたセラミック焼結体を

(a) $h=1.6\text{ mm}$ (b) $h=2.5\text{ mm}$

Fig. 14. Calculated distributions of volumetric strain difference beyond critical of fracture of circular tile with circular groove after sintering.

-----Interface between upper and lower layers.

Fig. 15. Relationship between maximum difference of volumetric strain and depth of groove of circular tile with circular groove.

図16に示す。焼結割れは溝底角部と上面で発生しており、図14の計算結果と一致している。

本方法では、変形抵抗の温度とひずみ速度依存性及び収縮ひずみ速度履歴を考慮してシミュレーションを行ったが、それらによって計算精度がどの程度向上したかを調べた。割れが発生する $h=2.5\text{ mm}$ の圧粉体上面の要素において、本方法と履歴

Fig. 16. Cracks in sintered circular tile with circular groove for $h=2.5\text{ mm}$.

Fig. 17. Histories of difference of volumetric strain with material constants.

を考慮しない従来法によって計算された体積ひずみ差の比較を図17に示す。上面の要素では $\rho_0=0.78$ になり、割れの限界値は図13における $\rho_0=0.78$ のものである。本方法では限界値を超えて割れが発生しているが、従来法では割れが発生しない結果になっており、本方法の精度が向上していることが分かる。収縮は900°Cから1200°Cで大きい、従来法ではそれを平均化し、ひずみ速度依存性指数も1としたため、従来法の結果は大きな誤差になったものと思われる。

6. 結 言

定荷重単純圧縮試験により高温下で変形抵抗を測定する方法を提案し、焼結中の温度とひずみ速度依存性を考慮した変形抵抗式を決定することができた。本方法は比較的簡単な実験で、セラミックス焼結体の変形抵抗、収縮曲線を求めることができる。測定された材料定数を用いて有限要素シミュレーションを

行うことにより、溝付きタイルの焼結における不均一収縮挙動をシミュレーションすることができた。また、不均一収縮による焼結割れの発生を予測するために、焼結3点曲げ試験を行い、限界体積ひずみ差を測定した。3点曲げ試験において作用させる荷重を制御することによって割れが発生する限界値を求めることができた。本方法では、変形抵抗の温度とひずみ速度依存性及び収縮ひずみ速度履歴を考慮してシミュレーションを行ったため、計算精度を向上させることができた。

(2002年3月日本セラミックス協会年会発表)

謝 辞 最後に、マイクロフォーカスX線透過CTを用いた密度分布の測定においてご協力をいただきました(財)ファインセラミックスセンターの水田安俊氏に感謝致します。なお、本研究の一部は、平成13年度科学研究費基盤研究(C)(2)13650085によって行われた。

文 献

1) Mori, K., Osakada, K., Yoneda, T. and Hirano, T., *Trans.*

- JSME*, **32**, 1136-41 (1991) [in Japanese].
- 2) Mori, K., "Numerical Methods in Industrial Forming Processes NUMFORM'92," Ed. by Chenot, J.-L., Wood, R. D. and Zienkiewicz, O. C., Balkema (1992) pp. 69-78.
- 3) Mori, K., Osakada, K. and Miyazaki, M., *Int. J. Mach. Tools Manufact.*, **37**, 1327-36 (1997).
- 4) Mori, K., Wada, T. and Osakada, K., *Trans. JSME*, **65**, 779-85 (1999) [in Japanese].
- 5) Riedel, H. and Sun, D.-Z., "Numerical Methods in Industrial Forming Processes NUMFORM'92," Ed. by Chenot, J.-L., Wood, R. D. and Zienkiewicz, O. C., Balkema (1992) pp. 883-86.
- 6) Shinagawa, K., *Trans. JSME*, **62**, 246-52 (1996) [in Japanese].
- 7) Miyata, N., Shiogai, T., Yamagishi, C. and Matsuo, Y., *J. Ceram. Soc. Japan*, **106**, 665-68 (1998) [in Japanese].
- 8) Shinagawa K. and Hirashima, Y., *Trans. JSME*, **64**, 155-61 (1998) [in Japanese].
- 9) Shima, S. and Oyane, M., *Int. J. Mech. Sci.*, **18**, 285-91 (1976).
- 10) Ikeda, Y., Mizuta, Y., Tobita, H. and Usami, H., "Proc. of 95-YOKOHAMA-IGTC," III (1995) pp. 29-36.