総 説

粉末焼結の有限要素シミュレーション

森 謙一郎

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.

Finite Element Simulation of Powder Sintering

Ken-ichiro Mori

Dept. Production Systems Eng., Toyohashi University of Tech., 1-1 Hibarigaoka, Tempaku-cho, Toyohashi 441-8580, Japan.

Received June 30, 2009

SYNOPSIS

A viscoplastic finite element method for simulating powder sintering processes was presented. This method was formulated on the basis of the plasticity theory of a porous material to take the change in apparent volume during the sintering into consideration. To simulate non-uniform shrinkage in the sintering, the shrinkage strain-rate was included in the formulation. In addition, both microscopic and macroscopic shrinkages in the sintering were simulated by coupling the finite element method with the Monte Carlo method. The calculated results in sintering processes were shown.

KEY WORDS

sintering, powder forming, finite element method, compaction, Monte Carlo method

1 緒 言

粉末成形品は金属また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製品とするが、粉末粒子間にある隙間が小さくなって収縮し、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て製品欠陥になる。

有限要素法が塑性加工のような生産加工に応用されて、その有用性が認識されるようになってきた。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、実際的な境界条件およ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る。有限要素法の精度が向上したため、実験による試行錯誤に代ってシミュレーションが用いられるようになってきている。粉末成形にも有限要素法は応用されており、圧粉成形、焼結、焼結金属の加工などがシミュレーションされている¹⁻³⁾。

本解説では、圧粉体の焼結収縮における変形挙動をシミュレーションする有限要素法について説明する。

2 焼結収縮の有限要素法

圧粉体は焼結されるが、圧粉体の体積は焼結時に変化することが知られている。特にセラミックス材では、数10%収縮し、寸法精度が問題となっている。圧粉成形では、工具の形状および摩擦によって圧粉体に密度の分布を生じるが、圧粉体に密度分布があると焼結時に不均一に収縮する。また、自重、敷板との摩擦などによっても不均一収縮が起こる。密度分布を有する圧粉体は焼結中に不均一に収縮し、その不均一収縮によって素材に塑性変形が生じる。すなわち、密度分布のない圧粉体では均一に収縮して塑性変形はないが、密度分布を有する圧粉体では素材内部で体積収縮率が分布し体積収縮率の差によって素材内部に塑性変形が生じる。このため密度分布を有する圧粉体では、焼結後の形状は圧粉体の形状と相似形にはならない。

焼結中の圧粉体は多孔質体であるため、塑性変形においては次の多孔質体の降伏条件に従うものとする⁴⁾。

$$(\rho^n \bar{\sigma})^2 = \frac{1}{2} \left\{ (\sigma_x - \sigma_y)^2 + (\sigma_y - \sigma_z)^2 + (\sigma_z - \sigma_x)^2 + 6(\tau_{xy}^2 + \tau_{yz}^2 + \tau_{zx}^2) \right\} + \left(\frac{\sigma_m}{f} \right)^2 \quad (1)$$

$$f = 1/a(1-\rho)^m$$

ここで、 σ_m は静水圧応力、 ρ は相対密度(圧粉体の密度/粉末の密度)、 $\bar{\sigma}$ は相当応力、 n, a, m は材料定数である、素材の質量は変化しないため、密度変化として取り込んでいる。式(1)を塑性ポテンシャルとして法線則を適用すると、粘塑性多孔質材料に対する応力の各成分が得られる。

$$\{\sigma\} = [D]\{\dot{\epsilon}\} \quad (2)$$

$$[D] = \frac{\rho^{2n-1}\bar{\sigma}}{\dot{\epsilon}} \begin{bmatrix} b & c & c & 0 & 0 & 0 \\ c & b & c & 0 & 0 & 0 \\ c & c & b & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d \end{bmatrix}$$

$$b = f^2 + \frac{4}{9}, \quad c = f^2 - \frac{2}{9}, \quad d = \frac{1}{3}$$

この材料では、相当ひずみ速度 $\dot{\epsilon}$ は次式で表され、密度変化、すなわち体積変化を生じるために体積ひずみ速度の項を含んでいる。

$$\dot{\epsilon}^2 = \rho^{2n-2} \left\{ \frac{2}{9} (\dot{\epsilon}_x - \dot{\epsilon}_y)^2 + (\dot{\epsilon}_y - \dot{\epsilon}_z)^2 + (\dot{\epsilon}_z - \dot{\epsilon}_x)^2 + \frac{3}{2} (\dot{\gamma}_{xy}^2 + \dot{\gamma}_{yz}^2 + \dot{\gamma}_{zx}^2) \right\} + (f\dot{\epsilon}_v)^2 \quad (3)$$

多孔質材料では圧縮性を示すため、ひずみ速度から直接応力が計算できる。多孔質材料の密度は塑性変形によって変化し、その密度変化は各変形ステップの体積ひずみ増分 $\Delta\epsilon_v$ から計算できる。

$$\rho_1 = \rho_0 \exp(-\Delta\epsilon_v) \quad (4)$$

ここで、 ρ_0, ρ_1 は各変形ステップの最初および最後の相対密度である。

不均一収縮は焼結後の形状予測を困難にするため、焼結時の不均一収縮をシミュレーションする方法が提案されている⁵⁾。全ひずみ速度 $\dot{\epsilon}_{ij}^t$ は焼結収縮のひずみ速度 $\dot{\epsilon}_{ij}^s$ と塑性変形のひずみ速度 $\dot{\epsilon}_{ij}^p$ の和となる。

$$\dot{\epsilon}_{ij}^t = \dot{\epsilon}_{ij}^s + \dot{\epsilon}_{ij}^p \quad (5)$$

有限要素法では、各要素内のひずみ速度は節点速度の1次式で表される。

$$\{\dot{\epsilon}\} = [B]\{v\} \quad (6)$$

ここで、 $[B]$ は座標から得られるマトリックスである。式(5)と式(6)を式(2)に代入すると、応力は次式で表される。

$$\{\sigma\} = [D][B]\{v\} - [D]\{\dot{\epsilon}^s\} \quad (7)$$

大きな圧粉体の焼結では、自重の影響によっても素材は塑性変形し、有限要素法における節点力は自重の影響を取込んで次式で表される。

$$\{P\} = \int_V [B]^T \{\sigma\} dV + \int_V g\rho\gamma[N] dV \quad (8)$$

ここで、 g は重力加速度、 γ は密度、 $\{N\}$ は要素の形状関数である。式(8)の節点力に式(7)の応力を代入すると、節点力は次のよう表わされる。

$$\{P\} = \int_V [B]^T [D][B] dV \{v\} - \int_V [B]^T [D]\{\dot{\epsilon}^s\} dV + \int_V g\rho\gamma[N] dV \quad (9)$$

上式の右辺第1項は全ひずみ速度、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。式(9)の節点力を次のように節点ごと釣合わせ、得られた連立方程式を解くことによって解が求まる。

$$\sum_{\text{element}} P_i = \begin{cases} 0 & (\text{in material}) \\ F_i & (\text{on surface}) \end{cases} \quad (10)$$

ここで、 F_i は節点に働く摩擦である。式(9)で表わされる $\{\dot{\epsilon}^s\}$ は実験より求められる材料定数であり、本定式化は収縮ひずみ速度を材料定数として与える粘塑性有限要素法の定式化であり、焼結では温度上昇に伴って素材は収縮するが、それを体積ひずみ速度に置き換えている。焼結は高温で行われ、素材のひずみ速度依存性は大きくなり、粘塑性材料としてひずみ速度依存性を取り込んでいる。

3 焼結後の形状予測

セラミックス材は構造用材料としても多く用いられているため、製品の寸法精度が重要になる。セラミックス材では、焼結後素材形状を大きく変更するのは困難であるため、焼結後に製品形状に近い素材を得るためのネットシェイプ成形技術の確立が望まれている。セラミックス材は、粉末を圧粉成形した後焼結することによって製品になるが、セラミックス圧粉体は焼結中に大きく収縮し、焼結後の素材形状を予測することは一般に困難である。セラミックス製品の生産現場では、技術者の経験的知識によって加工条件が主に決定されているが、試行錯誤のための繰返しおよび材料歩留りが問題となっている。最近新しいセラミックス材料が相次いで開発されているが、これらの製品化に際しては、技術者の経験的知識だけでは対処できなくなっており、焼結後の形状を予測できる方法が実際の現場において望まれている。

粘塑性有限要素法によって、アルミナ粉末材の突起付きリングにおける焼結後の形状予測を試みる。計算は軸対称変形としている。Fig.1は突起付きリングの圧粉成形後における断面の相対密度分布である。粉末充填時は一様な密度分布であるが、一体のパンチで圧粉成形を行うと、突起が付いているため真の圧縮率が突起部とフランジ部で異なり、圧粉体は密度分布を有する。相対密度はフランジ部が高く、突起部で低くなっている。

Fig.1において求められた圧粉体の密度分布を元にして焼結収縮の計算を行った。圧粉体の不均一な密度分布によって、

Fig.1 Distribution of calculated relative density in compact of alumina powder formed by single-action press

Fig.2 Comparison between shapes of sintered product obtained from calculation and experiment.

焼結中に不均一に収縮する。突起付きリングの焼結後の形状をFig.2に示す。突起部の方が低い相対密度であるため、フランジ部より大きく収縮しており、焼結後の形状は圧粉体の形状と相似形にならないで不均一な収縮をしており、焼結体は曲がりを示しており、焼結後に大きな仕上げが必要になる。

4 焼結体のネットシェイプ成形

密度分布および自重などによって、焼結体は圧粉体と相似形状にはならない。基本的には均一な密度分布の圧粉体を成形すればよいが、複雑な形状の製品に対しては成形が困難になる。そこでシミュレーションにおいて、焼結後に所定の製品形状になるように圧粉体の形状を最適化する³⁾。圧粉体の形状は、圧粉金型の形状を変化させることによって達成できる。

まず、目標とする製品形状に対して圧粉体が均一に収縮するとして、圧粉金型の形状を設定する。この圧粉金型でFig.3に示すように圧粉および焼結の変形計算を粘塑性有限要素法によって行い、焼結後の形状を求める。目標形状と計算された形状の差を求め、その差を圧粉金型の形状から引くことによって新しい金型形状を求める。得られた圧粉金型で再び圧粉および焼結の計算を行い、形状の差を求めて金型形状を修正する。これを繰り返すことによって形状を収束させ、目標とする焼結体の形状を得るための圧粉金型の形状を求める。

アルミナ材の突起付き円板とリングにおいて、圧粉成形および焼結を粘塑性有限要素法によってシミュレーションし、圧粉金型形状の最適化を行う。突起部とフランジ部で真の圧縮率が異なって圧粉体に密度分布が生じ、3章で示したように焼結時に不均一に収縮する。圧粉金型の形状を最適化させた計算結果をFig.4に示す。フランジ部の方が突起部の方より

Fig.3 Net-shape approach using finite element simulation for optimisation of compacting dies.

密度が大きくなるため、1回目の計算では焼結体と目標形状とのずれが大きいが、7回目の計算で目標形状にほぼ近い結果が得られている。

シミュレーションで最適化された金型を用いて実験を行い、得られた焼結体形状と目標形状の比較をFig.5に示す。最適化された金型による実験結果は、Fig.4の1回目である最適化されていない金型と比較して、下面の曲りが修正されてほぼ水平となっており、目標形状に近づいている。本解析法は、粉末材のネットシェイプ化に対して有効な方法である。

5 焼結割れ発生の予測

セラミックス圧粉体は焼結中に大きく収縮するが、密度分布、自重、敷板との摩擦などによってその収縮は不均一になる。不均一収縮が大きいと割れが生じることがあり、セラミックス製品の生産において問題となっている。しかしながら、セラミックス圧粉体の焼結時に発生する割れを予測する試みはまだほとんど行われていない。

焼結過程において、不均一収縮するときと均一収縮するときの体積ひずみの差が正の場合には静水圧応力が引張りになり、反対に体積ひずみ差が負の場合は圧縮応力になる。静水圧応力が引張りの場合には割れが生じる可能性があるため、焼結後の製品において均一収縮するときの体積ひずみ差焼結割れ発生予測式が提案されている^{6,7)}。

$$W = \begin{cases} 0 & (R \leq 0) \\ R & (0 < R \leq 100) \\ 100 & (100 < R) \end{cases}, \quad (11)$$

$$R = \alpha(\rho_0) \Delta \epsilon_v + \beta(\rho_0)$$

ここで、 $W(\%)$ は割れ確率、 $\alpha(\rho_0)$ 、 $\beta(\rho_0)$ は圧粉体の初期相対密度の関数である。

Fig.4 Optimization of shape of compacting dies by net-shape approach.

アルミナの突起付き製品に対して、割れ発生予測式から求められた割れ発生率分布と実験結果の比較をFig.5に示す。割れる場合と割れない場合があるため、計算と同じ条件で10数回実験を行い、実験の割れ発生率を求めた。突起付きリングの実験ではクラックが直接観察されたが、突起付き円板では発生したクラックが焼結された痕が下面でほとんどの製品に残っていた。計算によって得られた割れ発生率および発生位置は実験結果とよく一致しており、本予測式が有効であることが分る。

6 マイクロ-マクロシミュレーション

有限要素法では、巨視的な情報は得られるが、焼結後の材質などの微視的情報は求まらない。そこで、Fig.6に示すように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

Fig.5 Comparison between distributions of fracture rates in sintering obtained by prediction and experiment.

Fig.6 Coupling of Monte Carlo and finite element methods for micro-macro simulation of sintering.

Fig.7 Microstructural change calculated by Monte Carlo method.

成させたマイクロマクロシミュレーションを行った⁸⁾。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。

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い、モンテカルロ法によって計算された微視的組織変化の結果をFig.7に示す。圧粉円板の直径は25.5 mm、板厚は5.6 mm、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℃で1時間保持している。上層は平均粒径3.4セル、下

層は平均粒径11.5セル粒子であり、上層と下層の厚さは等しい。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きているが気孔の収縮は大きくない。

7 結 言

有限要素法は、生産加工の分野においてはシミュレーションのツールとしての地位を築き上げつつある。このため、粉末焼結の製造プロセスにおいても有限要素法が同様な効果をもたらすことが期待されている。有限要素シミュレーションによって加工中の各種の情報が得られると、従来実験的に行われてきた試行錯誤の数を減らすことができ、加工の最適化が迅速に行えるようになる。

文 献

- 1) K. Mori, S. Shima, and K. Osakada: "Finite Element Method for the Analysis of Plastic Deformation of Porous Metals", Bull. JSME, 23(1980)516-522.
- 2) K. Mori and K. Osakada: "Analysis of the Forming Process of Sintered Powder Metals by Rigid-Plastic Finite-Element Method", Int. J. Mech. Sci., 29(1987)229-238.
- 3) K. Mori: "Finite Element Simulation of Powder Forming and Sintering", Computer Methods in Applied Mechanics and Eng., 195(2006)6737-6749.
- 4) S. Shima and M. Oyane: "Plasticity Theory for Porous Metals", Int. J. Mech. Sci., 18(1976)285-291.
- 5) K. Mori, K. Osakada, T. Yoneda, and T. Hirano: "Prediction of Shape of Sintered Ceramic Products by Finite Element Method", J. Japan Soc. Tech. Plasticity, 32(1991)136-1141.
- 6) K. Mori, K. Osakada, and M. Miyazaki: "Prediction of Fracture in Sintering of Ceramic Powder Compact", Int. J. Machine Tools Manufact., 37(1997)1327-36.
- 7) K. Mori and K. Osakada: "Net Shape Approach for Sintering Process of Graded Laminated Powder Materials Using Finite Element Simulation", Ann. CIRP, 48(1999)239-242.
- 8) K. Mori, H. Matsubara, and N. Noguchi: "Micro-Macro Simulation of Sintering Process by Coupling Monte Carlo and Finite Element Methods", Int. J. Mech. Sci., 46(2004)841-854.