

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 31 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25420706

研究課題名(和文) セラミックス積層材の焼結過程での発生応力評価モデルの構築

研究課題名(英文) Model development for estimating stress generation during sintering of ceramics laminates

研究代表者

安田 公一 (YASUDA, Kouichi)

東京工業大学・物質理工学院・准教授

研究者番号：20191306

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)： 各種のセラミックスの成形体から焼結体に至るまでの熱弾性的性質の変化から、異なるセラミックスで構成される積層材中に焼結過程で発生する応力を評価するためのモデルを構築することを目的とした。まず、弾性体、弾塑性体、粘弾性体およびこれらの組み合わせた一般的な積層材モデルについての理論解析を行い、積層材の熱応力評価に関する包括的なモデルを構築した。次に共同研究者の最近の研究成果から成形体の均質性自体が焼結過程での亀裂発生に大きな影響を与えることがわかったので、研究の方向を修正して研究期間の後半では、成形体の均質化過程について理論解析を行い、その妥当性を実験的に検証した。最後に、本研究を総括した。

研究成果の概要(英文)： Based on the changes in thermo-elastic properties of several ceramic materials from powder compact state to sintered body state, formulation was done on a generalized model for estimating stress generation during sintering of ceramics laminates, including several combinations of constitutive equations such as elastic, elasto-plastic, and visco-elastic materials. Form the collaborative researcher's latest output, the priority of this project moved to homogeneity of powder compact because it was also strongly related to the cracking during sintering. The stochastic model was developed to express granule collapse probability in a powder compact, and homogeneity improvement was discussed with the model. Finally, accomplishment of this project was summarized.

研究分野：固体力学，材料強度学，統計力学，複合材料

キーワード：セラミックス 積層材 焼結 成形体 均質性 欠陥 顆粒の崩壊 確率論

1. 研究開始当初の背景

従来は、単一の素材として製造されていたセラミックスも、最近では、各種センサー、多層積層コンデンサー、酸化物型燃料電池などのように、いくつかの材料を積層させた部品や中間製品として製造されるようになってきている。この場合、異なる材料を組み合わせるため、焼結中の熱応力、そして、それに伴う亀裂発生は重要な課題であるが、従来の考え方では、焼結後の冷却過程での熱応力だけで議論されてきた。しかし、研究代表者の予備的検討では、昇温中の焼結収縮の違いも応力発生や亀裂生成に影響を与えることがわかったので、本研究では、弾性体の場合だけでなく、弾塑性体、粘弾性体の場合も含む、一般的な積層材料の焼結過程の応力発生を評価できるモデルを構築することにした。

2. 研究の目的

積層材が、弾性体、弾塑性体、粘弾性体およびこれらの組み合わせで構成されている時の、昇温過程、保持過程、冷却過程のそれぞれにおける応力発生を定量的に予測できるモデルを構築することを第1の目的とした。その後、当初の計画では仮焼体の構成方程式の定式化を進める予定であったが、研究分担者の最近の成果から、成形体内の不均質性画焼結時の亀裂発生に大きく影響することがわかったので、成形体の均質性の評価に関する確率モデルを構築し、その妥当性を検証することに、後半の研究の主要な目的とすることにした。

3. 研究の方法

主に、研究代表者が理論解析を担当し、共同研究者がX線CTスキャン法、浸液透光法などの実験的手法を使って、成形体から焼結体に至るまでの均質性、あるいは欠陥生成過程を検討する形で、役割分担を行った。

4. 研究成果

各種のセラミックスの成形体から焼結体に至るまでの諸物性の変化から、異なるセラミックスで構成される積層材中に焼結過程で発生する応力を評価するためのモデルを構築することを目的とした。まず、弾性体、弾塑性体、粘弾性体およびこれらの組み合わせた一般的な積層材モデルについての理論解析を行い、積層材の熱応力評価に関する包括的なモデルを構築した。次に、共同研究者の最新の研究成果により、成形体の均質性自体が焼結過程での亀裂発生に大きな影響を与えることがわかったので、研究の方向を修正して成形体の均質化過程について顆粒の崩壊確率に関する理論解析を行い、その結果を実験的に検証して、本研究を総括した。

研究成果については、国内外の国際会議で発表を多数行って、いろいろな角度から専門家との意見交換を行っている。反響としては、国内の研究者よりも海外からの研

究者からの問い合わせや論文別刷りの送付依頼が多数あった。今後の課題としては、当初の目的に設定していた仮焼体の力学特性の評価とそのモデル化が挙げられ、これは、基礎と応用の両面から重要な課題であると考えられる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計9件)

1. Kouichi Yasuda, Satoshi Tanaka, Makio Naito, "Stochastic analysis on ceramic granule collapse in powder compact during cold isostatic pressing", *Advanced Powder Technology*, **27**, pp940-947 (2016). 査読有り

2. Tsuyoshi Hondo, Zenji Kato, Kouichi Yasuda, Fumihiko Wakai, Satoshi Tanaka, "Coarse pore evolution in dry-pressed alumina ceramics during sintering", *Advanced Powder Technology*, **27**, pp1006-1012 (2016). 査読有り

3. 安田公一, "セラミックス信頼性技術の最新動向(依頼総説)", *セラミックス*, **50** [6] pp485-488 (2015). 査読無し

4. 安田公一, "無機材料の複合強化(依頼総説)", *耐火物*, **67** [9] pp427-443 (2015). 査読無し

5. Kouichi Yasuda, Tadachika Nakayama, Satoshi Tanaka, "A Model for Estimating Internal Stress during Sintering of Ceramic Multiphase Laminates", *Key engineering Materials*, **616**, pp14-18 (2014). 査読有り

6. Kouichi Yasuda, "Challenges in Model Development for Estimating Internal Stress of Ceramic Laminates During Sintering(招待論文)", *Ceramic Engineering and Science Proceedings, "Developments in Strategic Materials and Computations Design V"*, **35**, pp349-357 (2014). 査読有り

7. Kouichi Yasuda, Tadachika Nakayama, Satoshi Tanaka, "Stress Estimation for Multiphase Ceramics Laminates during Sintering", *Ceramic Engineering and Science Proceedings, "Advanced Processing and Manufacturing Technologies for Nanostructured and Multifunctional Materials"*, **35**, pp101-106 (2014). 査読有り

8. 安田公一, "セラミックス多孔体の曲げ試験の健全性と曲げ強度分布の評価法(依頼解説)", *セラミックデータブック2014*, **42**, pp93-97, (2014). 査読無し

9. K.Yasuda, T.Nakayama, S.Tanaka, "Stress Estimation for Multiphase Ceramics Laminates during Sintering", *Key Engineering Materials*,

〔学会発表〕(計 56 件)

1. Tsuyoshi Hondo, Kouichi Yasuda, Fumihiko Wakai, Satoshi Tanaka, “Influence of Granule Characteristics on Structural Change during Sintering”, The 18th International Symposium on Eco-materials Processing and Design (国際会議), 2017年2月17日～2017年2月20日, 自治会館, 那覇市, 沖縄.
2. B.Jang, K.Yasuda, H.T.Kim, “Thermal and Mechanical Properties of ZrO_2 - Y_2O_3 Thermal Barrier Coatings for Long Term Use at High Temperature (招待講演)”, The 18th International Symposium on Eco-materials Processing and Design (国際会議), 2017年2月17日～2017年2月20日, 自治会館, 那覇市, 沖縄.
3. Kouichi YASUDA, “Data Scattering Simulation on 2-parameter Weibull Plot”, The 18th International Symposium on Eco-materials Processing and Design (国際会議), 2017年2月17日～2017年2月20日, 自治会館, 那覇市, 沖縄.
4. B.Jang, K.Yasuda, S.Kim, Y.Oh, H.Kim, “Thermal and Mechanical Properties of ZrO_2 - Y_2O_3 Thermal Barrier Coating by Thermal Exposure (招待講演)”, The 41st International Conference and Exposition on Advanced Ceramics and Composites (国際会議), 2017年1月22日～1月27日, Hilton Daytona Beach Resort and Ocean Center, Daytona Beach, FL USA.
5. Kouichi YASUDA, Satoshi TANAKA, and Makio NAITO, “Collapse Probability of Granules in Ceramic Powder Compact during Cold Isostatic Pressing (招待講演)”, The 41st International Conference and Exposition on Advanced Ceramics and Composites (国際会議), 2017年1月22日～1月27日, Hilton Daytona Beach Resort and Ocean Center, Daytona Beach, FL USA.
- 6 Kouichi YASUDA, “Numerical Simulation for Linearity in Weibull Plots of Porous Ceramics Strength Data”, 日本MRS学会年次大会, 2016年12月19日～2016年12月22日, 万国橋会館 (横浜市, 神奈川)
7. Kouichi YASUDA, Satoshi TANAKA, and Makio NAITO, “Stochastic Estimation on Granule Collapse in Powder Compact under Isostatic Pressure (招待講演)”, The 33th Korea-Japan Seminar on Ceramics (国際会議), 2016年11月16日～11月19日, Daejeon Convention Center, Daejeon, Korea.
8. 安田公一, 田中 諭, 内藤牧男, “CIP成形中の顆粒の崩壊確率の定式化”, 日本機械学会2016年度年次大会, 2016年9月11日～9月14日, 九州大伊都キャンパス (福岡市, 福岡)
9. 本堂 剛, 加藤 善二, 安田 公一, 若井 史博, 田中 諭, “焼結時の粗大欠陥発達に及ぼす顆粒の性質の影響”, 日本セラミックス協会第29回秋季シンポジウム, 2016年9月7日～9月9日, 広島大東広島キャンパス(東広島市, 広島)
10. Kouichi Yasuda, Satoshi Tanaka, Makio Naito, “Stochastic Model for Ceramic Granule Collapse during Cold Isostatic Pressing”, The 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (国際会議), 2016年8月1日～8月5日, 京都国際会館 (京都市, 京都).
11. Kouichi Yasuda, Satoshi Tanaka, Makio Naito, “A Stochastic Modeling for Ceramic Granule Collapse during Cold Isostatic Pressing” 9th International Conference on High Temperature Ceramic Matrix Composites and Global Forum on Advanced Materials and Technologies for Sustainable Development 2016 (国際会議), 2016年6月26日～2016年7月1日, トロントマリオットダウンタウンイートンホテル (トロント, カナダ).
12. Yasuda Kouichi, Kita Hideki, Takahashi Manabu, Takahashi Yosuke, Tanaka Satoshi, Honda Sawao, Mitsuoka Takeshi, Muto Hiroyuki, Yamamoto Shuichi, Yoshizawa Yu-ichi, “Application of 3-parameter Weibull Distribution to Porous Ceramics”, 9th International Conference on High Temperature Ceramic Matrix Composites and Global Forum on Advanced Materials and Technologies for Sustainable Development 2016 (国際会議), トロントマリオットダウンタウンイートンホテル (トロント, カナダ).
13. 安田公一, 田中 諭, 内藤牧男, “CIP 成形中の顆粒の崩壊確率に関する理論解析”, 粉体工学会春季研究発表会, 2016年05月17日～2016年05月18日, 京都リサーチパーク (京都市, 京都).
14. Kouichi Yasuda, Satoshi Tanaka, Makio Naito, “Collapse Probability of Granules under Isostatic Pressure (基調講演)”, EnCera2016 (国際会議), 2016年05月09日～2016年05月12日, 朱鷺メッセ (新潟市, 新潟).
15. Tsuyoshi Hondo, Zenji Kato, Satoshi Tanaka, Fumihiko Wakai, Kouichi Yasuda, “Pores formation in alumina ceramics prepared by dry-pressing method”, EnCera2016 (国際会議),

2016年05月09日～2016年05月12日, 朱鷺メッセ(新潟市, 新潟).

16. 本堂 剛, 加藤 善二, 田中 善二, 田中 諭, 若井史博, 安田公一, “顆粒プレス成形体の不均質な焼結進行と粗大欠陥の発生”, 2016年度日本セラミックス協会年会予稿集, 2016年3月14日～16日, 早稲田大(東京).

17. 澁谷竜明, 加藤 善二, 田中 諭, 安田公二, “直接観察による単分散顆粒の成形体における顆粒変形分布の評価”, 2016年度日本セラミックス協会年会予稿集, 2016年3月14日～16日, 早稲田大(東京).

18. S.Tanaka, T.Hondo, F.Wakai, K.Yasuda, “Observation of development of internal pores in dry-pressed alumina ceramics during sintering(招待講演)”, 40th International Conference and Exposition on Advanced Ceramics and Composites(国際会義), 2016年1月24日～29日 Hilton Daytona Beach Resort and Ocean Center, FL(USA).

19. Kouichi Yasuda, Satoshi Tanaka, Makio Naito, “The Change in Stress Filed in Ceramic Powder Compact during Cold Isostatic Pressing”, 40th International Conference and Exposition on Advanced Ceramics and Composites(国際会義), 2016年1月24日～29日 Hilton Daytona Beach Resort and Ocean Center, FL(USA).

20. Byung-Koog Jang, Kouichi Yasuda, H.T.Kim, “Thermal and Mechanical Properties of Y₂O₃ Stabilized ZrO₂ Thermal Barrier Coatings(招待講演)”, 日本MRS学会年次大会, 2015年12月8日～2015年12月9日, 横浜市開港記念会館他(横浜市, 神奈川).

21. Satoshi Tanaka, T.Hondo, Z.kato, Kouichi Yasuda, F.Wakai, “Development of Coarse Defects in Alumina Ceramics during Sintering(招待講演)”, 日本MRS学会年次大会, 2015年12月8日～2015年12月9日, 横浜市開港記念会館他(横浜市, 神奈川).

22. Kouichi Yasuda, Satoshi Tanaka, Makio Naito, “Numerical Simulation for Stress Distribution in Powder Compact during CIP”, 日本MRS学会年次大会, 2015年12月8日～2015年12月9日, 横浜市開港記念会館他(横浜市, 神奈川).

23. Byung-Koog Jang, Kouichi Yasuda, Seong-Won Kim, Yoon-Suk Oh, H.T.Kim, “Thermal-Mechanical Properties of ZrO₂-4mol% Y₂O₃ TBCs(招待講演)”, The 32nd International Japan-Korea Seminar on Ceramics(国際会義), 2015年11月18日～21日, ホテルニューオータニ長岡(長岡市, 新潟).

24. Kouichi Yasuda, Satoshi Tanaka, Makio

Naito, “The Effect of Elastic Inhomogeneity on Stress Distribution in Powder Compact during Cold Isostatic Pressing”, The 32nd International Japan-Korea Seminar on Ceramics(国際会義), 2015年11月18日～21日, ホテルニューオータニ長岡(長岡市, 新潟).

25. 安田公一, 田中諭, 内藤牧男, “IP成形体中のセラミックス顆粒の崩壊過程のモデリング”, 第23回日本機械学会機械材料・材料加工部門講演会論文集, 2015年11月14日～15日, 広島大(東広島市, 広島).

26. Kouichi Yasuda, Satoshi Tanaka, Makio Naito, “Continuum Model for Estimating Stress Distribution in Powder Compact during Cold Isostatic Pressing(国際会義)”, The 9th International Conference on the Science and Technology for Advanced Ceramics, 2015年10月19日～21日, つくば国際会場(つくば市, 茨城).

27. 安田公一, 田中諭, 内藤牧男, “冷間等方加圧成形時の成形体中の応力分布推定に関する連続体モデル”, 2015年度粉体工学会秋期研究発表会講演要旨集, 2015年10月13日～14日, 大阪南港 ATC(大阪).

28. 澁谷竜明, 加藤善二, 田中諭, 安田公二, “フリーズドライ顆粒を用いて作製したアルミナ成形体および焼結体の構造評価”, 日本セラミックス協会第28回秋季シンポジウム, 2015年9月16日～18日, 富山大(富山市, 富山).

29. Kouichi Yasuda, Motohisa Kitamori, Masahiro Ibukiyama, “Sintering of Hexagonal Boron Nitride with the Addition of Boron”, The 11th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies(国際会義), 2015年8月31日～9月4日, International Conference Center, Jeju(Korea).

30. Kouichi Yasuda, Satoshi Tanaka, Makio Naito, “Stochastic analysis on ceramic granule collapse in powder compact during cold isostatic pressing”, The 5th International Conference on the Characterization and Control of Interfaces for High Quality Advanced Materials and the 5th Summer Symposium on Powder technology(国際会議), 2015年7月7日～10日, 倉敷ロイヤルアートホテル(倉敷市, 岡山).

31. 張 炳國, 安田公一, “ガスタービン用耐熱・耐食性酸化コーティングについて(機械的特性を中心に)”, 第2回超インターセラミックス研究会, 2015年3月27日～28日, ホテルニューオータニ長岡(長岡市, 新潟).

32. Kouichi Yasuda, “A Mechanical Model to Predict Phase Stress for Ceramics Laminates

- during Sintering(招待講演)”, Energy Materials Nanotechnology Meeting on Ceramics (国際会義), 2015年1月25日～29日, Orlando, Florida, USA .
33. Kouichi Yasuda, Tadachika Nakayama, Satoshi Tanaka, “Laminated Structure is one of the most important Industry Root Technologies in Ceramics, 39th International Conference and Exposition on Advanced Ceramics and Composites (国際会義), 2015年1月25日～30日, Daytona Beach, Florida, USA .
34. Kouichi YASUDA, “Estimation of State transition Probability Matrix of Coordination Number Distribution of particles in Ceramic Powder Compact”, 39th International Conference and Exposition on Advanced Ceramics and Composites (国際会義), 2015年1月25日～30日, Daytona Beach, Florida, USA .
35. S.Tanaka, Kouichi Yasuda, H.Kita, M.Takahashi, Y.Takahashi, J.Tatami, S.Honda, H.Muto, S.Yamamoto, “3 Dimensional Observation of Porous Ceramics by X-ray Computer Tomography”, 39th International Conference and Exposition on Advanced Ceramics and Composites (国際会義), 2015年1月25日～30日, Daytona Beach, Florida, USA .
36. Satoshi Tanaka, Tsuyoshi Hondo, Kouichi Yasuda, “Evaluation of internal defects and their coarsening during sintering in alumina ceramics system (招待講演)”, The 31th International Korea-Japan seminar on Ceramics (国際会義), 2014年11月26日～29日, チャンワン(韓国).
37. Kouichi Yasuda, Satoshi Tanaka, Makio Naito, “Stochastic model on granule collapse during cold isostatic pressing (招待講演)”, The 31th International Korea-Japan seminar on Ceramics (国際会義), 2014年11月26日～29日, チャンワン(韓国).
38. Kouichi Yasuda, Tadachika Nakayama, Satoshi Tanaka, “Internal Stress Prediction of laminated Structure in Hybrid Material (招待講演)”, The 3rd International symposium on Hybrid Materials and Processing (国際会義), 2014年11月10日, Busan, Korea .
39. 安田公一, 中山忠親, 田中諭, “粘性体に基づくセラミックス積層材の焼結過程での応力評価モデル”, 第5回セラミックスエンジニアリングワークショップ, 2014年11月7日～8日, ハイパーヴィラ塩江(香川).
40. 安田公一, 田中諭, 内藤牧男, “静水圧成形体中の顆粒崩壊の確率論”, 粉体工学会第50回夏期シンポジウム, 2014年8月6日～7日, 大阪アカデミア(大阪).
41. 安田公一, “バルクセラミックスの基礎と応用(招待講演)”, 日本技術士会近畿支部機械システム部会第47回講演会, 2014年7月19日, 弥生会館(大阪府).
42. 安田公一, “高信頼性セラミックスのためのCIP成形体の均質化に関する連続体力学アプローチ(招待講演)”, 粉体工学会粉体材料設計研究会2014年第1回研究会, 2014年7月4日, 東京工業大学(目黒区, 東京).
43. Kouichi Yasuda, and Yonghui Zhou, “Crack Formation during Sintering of Alumina Ceramic Laminates”, Proceedings of the JSME ASME 2014 International Conference on Materials and Processing(国際会義), 2014年6月9日～13日, デトロイト, ミシガン, USA.
44. 安田公一, 田中諭, 内藤牧男, “CIP成形体中の顆粒崩壊の確率論”, 粉体粉末冶金協会平成26年度春季大会, 2014年6月4日, 早稲田大,(東京).
45. Kouichi Yasuda, Keizo Hiraishi, Kiyoteru Ishiko, Takumi Takahashi, Junichi Tatami, “Thermal analysis of silicon nitride ceramics up to 1700°C”, The 4th International Symposium on SiAlONs and Non-Oxides(国際会義), 2014年5月25日～29日, 長浜ロイヤルホテル, 長浜市(滋賀)
46. Kouichi YASUDA, “Internal Stress Estimation of Ceramic Laminates during Sintering - Towards better understanding of durability for thermal Barrier Coating (招待講演)”, 物質・材料研究機構セミナー, 2014年4月17日, 物質・材料研究機構(つくば市, 茨城).
47. K.Yasuda, T.Nakayama, S.Tanaka, “Stress Estimation for Multiphase Ceramics Laminates during Sintering”, 38th International Conference and Exposition on Advanced Ceramics and Composites(国際会義), 2014年1月27日～31日, Daytona Beach, FL, USA .
48. K.Yasuda, T.Nakayama, S.Tanaka, “Crack-free Design Basis for Coating and Laminates in Eco Systems(招待講演)”, 15th International Symposium on Eco-materials Processing and Design(国際会義), 2014年1月12日～15日, ハノイ大学 ハノイ(ベトナム) .
49. K.Yasuda, T.Nakayama, S.Tanaka, “A Model for Estimating Internal Stress during Sintering of Ceramic Multiphase Laminates (招待講演)”, 5th International Symposium on Advanced Ceramics (国際会義), 2013年12月9日～12日, 武漢大学, 武漢(中国).
50. 安田公一, 呂ハイリン, “緻密質アルミナ/多孔質アルミナ積層材料の焼結中の亀裂発

生”，日本機械学会第21回機械材料・材料加工技術講演会，2013年11月8日，都立大（東京）。

51. Kouichi Yasuda, Tadachika Nakayama, and Satoshi Tanaka, ” The Theory for Estimating Stress during Sintering of Multiphase Laminates”, The 30th Japan-Korea International Ceramic Seminar(国際会義) 2013年10月20日～22日，小倉市，福岡。

52. Kouichi Yasuda, Tadachika Nakayama, and Satoshi Tanaka, “ Generalized Model For Estimating Stress Change During Sintering Of Ceramic Laminates ”, The 5th Asia-Oceania Ceramic Federation Conference(国際会義) 2013年10月17日～18日，Jeju, Korea.

53. 安田公一，呂ハイリン，“セラミックス積層材料の焼結中の内部応力の評価”，日本機械学会2013年度年次大会，2013年9月8日～11日，岡山大（岡山）。

54. 田中諭、本堂剛、加藤善二、植松敬三、安田公一，“アルミナセラミックスの製造時における粗大欠陥形成原因”，本セラミックス協会第26回秋季シンポジウム講演予稿集，2013年9月4日～6日，信州大，長野市（長野）。

55. 安田公一，中山忠親，田中諭，“セラミックス積層材における焼結中の応力評価モデルの一般化”，日本セラミックス協会第26回秋季シンポジウム講演予稿集，2013年9月4日～6日，信州大，長野市（長野）。

56. Kouichi Yasuda and Tadachika Nakayama, “The First Approach to Estimate Internal Stress in New Ceramic Composites Made by Nano-second Pulsed Discharge Technology(招待講演)”，The 2nd International GIGAKU Conference In Nagaoka(国際会義)，2013年6月21日～23日，長岡技科大，長岡市（新潟）。

〔その他〕

東京工業大学 物質理工学院 材料系 安田研究室
ホームページ

<http://www.cmc.ceram.titech.ac.jp/studies.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

安田公一（YASUDA, Kouichi）
東京工業大学・物質理工学院・准教授
研究者番号：20191306

(2)研究分担者

田中 諭（TANAKA, Satoshi）
長岡技術科学大学・工学研究科・准教授
研究者番号：20324006