

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 10 日現在

機関番号：16201

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560869

研究課題名(和文) マイクロ構造体粉末プロセスのための焼結変形 - 組織形成ハイブリッド解析法の開発

研究課題名(英文) Development of hybrid method for analyzing deformation and microstructural evolution in sintering process of micro-scale powder compacts

研究代表者

品川 一成 (Shinagawa, Kazunari)

香川大学・工学部・教授

研究者番号：30215983

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円、(間接経費) 1,260,000円

研究成果の概要(和文)：近年、部品小型化のため、粒子サイズの数倍程度の大きさの焼結体が作製されるようになってきた。この場合、焼結体の寸法精度、焼結欠陥は個々の粉末粒子の変形と粒界移動に直接的な影響を受けるようになる。本研究ではマイクロ構造体における焼結変形と組織形成を予測するために、個別要素法とフェーズフィールド法との連成解析手法の開発を行った。また、実際の焼結における諸問題に適用することで、本手法の有効性を確認した。

研究成果の概要(英文)：Recently, sintered bodies that are only several times as large as powder particles have been produced due to downsizing of industrial components. In the case of micro-scale powder compacts, the dimension accuracy and the sintering defects of the sintered bodies may be directly affected by the deformation of each particle and the grain boundary migration. In this study, a combined phase-field/discrete-element method for predicting the deformation and microstructural evolution during sintering was developed. The proposed method was applied to some problems in actual sintering process, and its effectiveness was verified.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・材料加工・処理

キーワード：材料加工・処理 機械材料・材料力学 数値解析 焼結 粒成長 フェーズフィールド法 個別要素法

1. 研究開始当初の背景

焼結における収縮変形挙動の解析は、計算機の能力上の問題から、粒子レベルと連続体レベルに分けられ、階層的な構造を持って行われている。一般的には、2 球体やユニットセルモデルの解析を基に構成式を構築し、それを通して焼結体のゆがみや応力を有限要素法で解析する手法が用いられている。しかし、この方法では微細構造変化を直接考慮することは困難である。微細構造変化の解析のみであれば、フェーズフィールド法を用いることが可能であるが、焼結に適用する場合、粒子の剛体運動をいかに扱うかが問題となっている。

一方、粒子の剛体運動を扱える手法に個別要素法があり、焼結過程へも適用されている。ただし、個別要素法では有限要素法と同様、組織変化を計算することはできず、また、現在、取り扱える粒子数に限りがある点も問題である。

2. 研究の目的

近年の焼結部品の微細化によって、粒子と製品の寸法規模があまり変わらなくなり、粒子個々の焼結挙動および組織形成が直接的に焼結体の寸法精度に影響を与える例を見るようになってきた。このような微細構造を解析するには有限要素法よりも個別要素法の方が相応しく、対象粒子数が少ないので計算規模も妥当であると考えられる。従って、個別要素法で剛体運動を計算し、それをフェーズフィールド法に組み入れる技術を開発すれば、フェーズフィールド法の課題を解決するとともに焼結変形 - 組織形成ハイブリッド解析が可能となる。

本研究ではマイクロ構造体における焼結変形と組織形成を予測するために、個別要素法とフェーズフィールド法との連成解析手法を確立することを目的とした。

3. 研究の方法

(1) フェーズフィールド法

粒成長挙動を計算するための Allen-Cahn の式、固相/気相率を保つための Cahn-Hilliard 拡散方程式それぞれに剛体運動による移動速度を移流項として導入した。

$$\frac{\partial S_k}{\partial t} = -L \frac{\delta G}{\delta S_k} - \nabla \cdot \bar{J}_s \quad (1a)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \nabla \cdot \left(B \nabla \frac{\delta G}{\delta \rho} - \bar{J}_r \right) \quad (1b)$$

ここで、 S_k は方位場変数、 L は結晶粒界の易動度、 G は総自由エネルギー、 ρ は相対密度、 B は気孔表面の易動度、 \bar{J}_s 、 \bar{J}_r は移流フラックスである。

(2) 個別要素法

粒子間に作用している力、モーメントは、次のように与えられる。

$$\{f\} = [C]\{v\} + \{f_s\} \quad (2)$$

ここで、 $\{f\}$ は力、モーメント、 $\{v\}$ は速さ、回転速度の各成分からなるベクトル、 $[C]$ は粒子間距離、有効粒界拡散係数などからなるマトリックス、 $\{f_s\}$ は焼結力である。これより求めた粒子の速度はフェーズフィールド法の各格子点における移流フラックスに変換した。

(3) 焼結モデル

マトリックス $[C]$ 中のパラメータは、粒子境界拡散機構に基づく焼結モデルより求める。粒界拡散の駆動力となる粒子境界における応力 σ の分布は以下のように与えられる。

$$\sigma = \frac{3}{2} \left(\frac{x}{X} \right)^2 (\sigma_t - \bar{\sigma}) - \frac{1}{2} (\sigma_t - 3\bar{\sigma}) \quad (3)$$

ここで、 X は粒子接触面の半幅、 σ_t は $x = X$ での σ の値、 $\bar{\sigma}$ は σ の平均値である。これを基に、パラメータを導いた。

(4) 接触面および焼結力の見積もり

フェーズフィールド法においては、粒界にある格子点を判定し、この点の集合である面積から粒子接触面半幅を算出した。また、焼結力については、界面の曲率 κ をフェーズフィールド変数 ρ から次のように計算し、

$$\kappa = \nabla \cdot \frac{\nabla \rho}{|\nabla \rho|} \quad (4)$$

これに表面張力を掛け合わせて合力を算出することで、見積もった。

(5) 各素過程のモデル化

以上の基礎モデルとは別に、個々の素過程を扱う手法として、異常粒成長と液相焼結の過程についてそれぞれモデル化を行い、シミュレーション法を構築した。

(6) 焼結実験

モデル材料としてニッケル粉末を取り上げ、種々の条件（温度、時間）で焼結実験を行った。焼結後の試料断面を FE-SEM/EBSD 法により観察し、粒成長挙動を調査した。

4. 研究成果

(1) 基礎的なシミュレーション

2 球体モデル

開発した手法を、まずは 2 球体モデルに適用した。図 1 は、シミュレーション結果の例である。ネック径や接近速度を算出し、従来モデルとの比較をしたところ、よい一致が得られ、本手法の妥当性を確認できた。

クラスターモデル

また、本手法を多粒子からなるクラスターに適用した場合について、焼結力の導入方法を考案した。これにより、図 2 に示すような粒子クラスターの収縮変形を計算できるようにした。さらに、引張の外力を作用させた場合、粒子が分離する過程を計算可能であることを確認した。

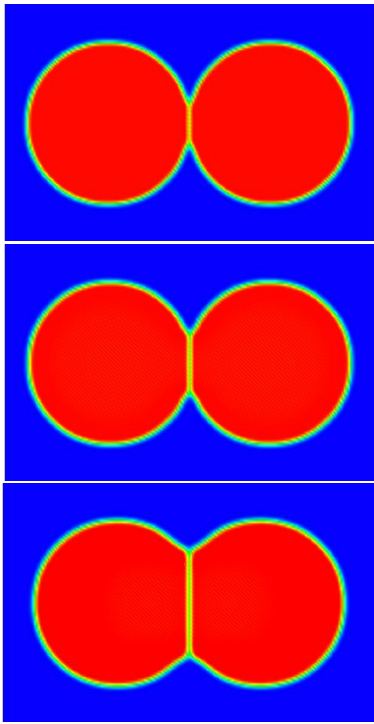


図1 2球体モデル

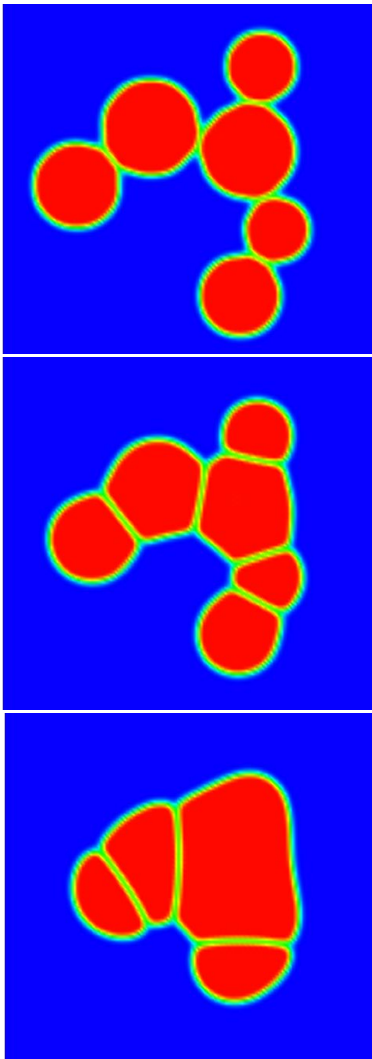


図2 クラスタモデル

$t=20$

$t=50$

$t=500$

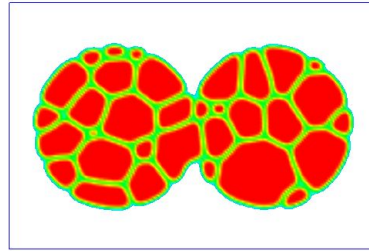
$t=20$

$t=500$

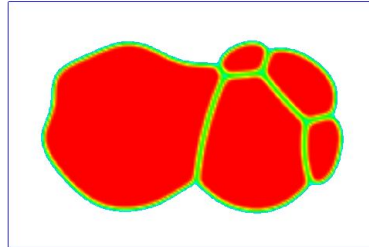
$t=3000$

多結晶粒子

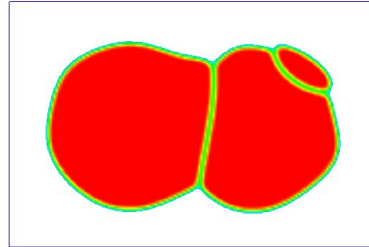
さらに、図3に示すように、多結晶からなる粉末について、粒成長のシミュレーションを行った。多結晶からなる粉末粒子においては、粉末粒子内部で結晶粒成長が進み、粉末粒子が単結晶化した。2つの粉末粒子が同じ大きさの単結晶粒子である場合、接合部の粒界の移動は起こらなかった。これらの基本的な過程をシミュレーションで再現できることを確認できた。実験においてもこれと矛盾ない結果は得られた。図4は、FE-SEM/EBSDによる微細構造観察の例である。



$t=30$



$t=500$



$t=2000$

図3 多結晶モデル

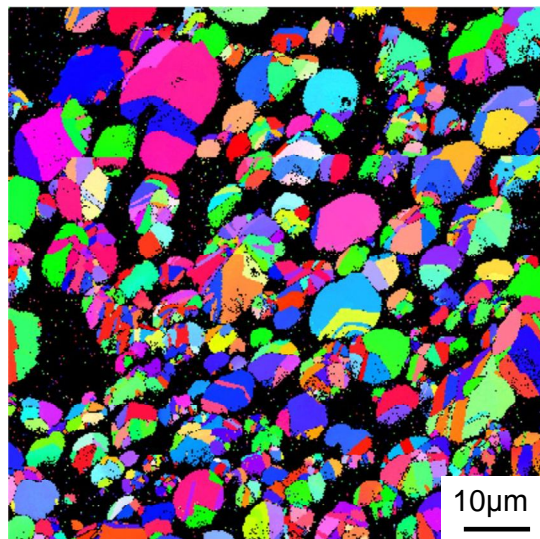


図4 600 で10分焼結したニッケル粉末

(2) 各種材料挙動のモデル化

異常粒成長

フェーズフィールド法において粒界エネルギーの方位依存性を考慮し、さらに、ファセット面における二次元核生成の理論を導入することで、異常粒成長をシミュレートできるようにした。図5は、板状粒子の発達を再現した例である。また、粒度分布が狭い場合、異常粒成長の発生が遅れることが確認でき、実験で観察される現象と一致する結果を得ることができた。

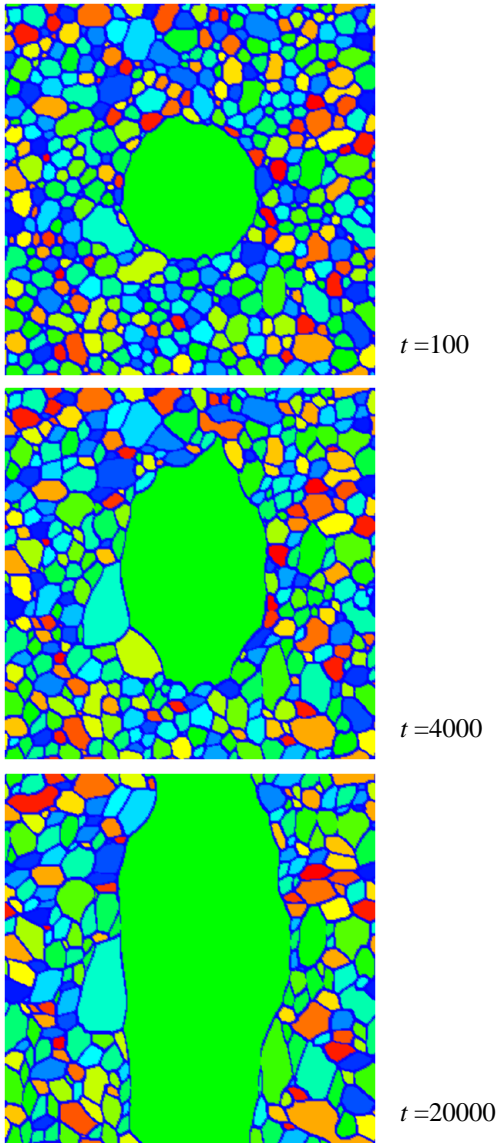
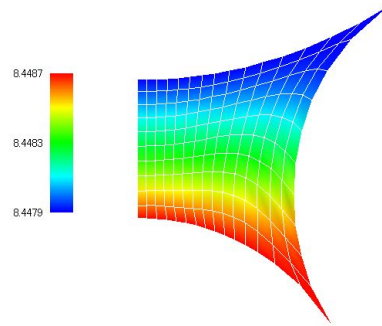


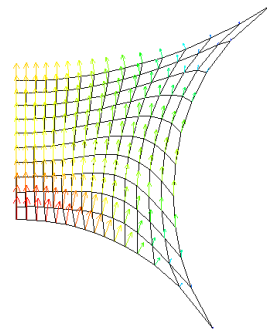
図5 異常粒成長のシミュレーション

液相焼結

有限要素法による粘性変形解析と拡散解析を連成させることで、2粒子間に生じた液相柱内での拡散と、溶解・析出を伴いながらの剛体運動を計算できるようにした。これにより、粒子表面の溶解析出による凹凸と柱の形状の変化を同時に計算することが可能となった。図6は計算例である。



(a) 濃度分布(Mg/m³)



(b) 拡散流束

図6 液架橋内の拡散挙動

(3) マイクロ構造体焼結解析への応用

平均粒径が同じで粒度分布幅が異なる2種類の粉末から作製した四角柱状粉末成形体を計算対象とした。これらの電子顕微鏡写真を基にして、成形体の計算モデルを作成し、焼結シミュレーションを行った。図7はモデルの例である。これにより、粒成長と共に緻密化の過程が計算できた。計算結果を基に、焼結収縮による寸法形状の変化を調べたところ、分布幅が小さいほうが焼結体の場所による収縮率の差が小さく、全体の寸法変動が少ないという傾向が得られた。これは実験で得られた結果、すなわち、粒度分布が狭い場合に寸法精度が向上する傾向と一致し、PFM/DEM 連成解析法が有効であることを裏付けることができた。

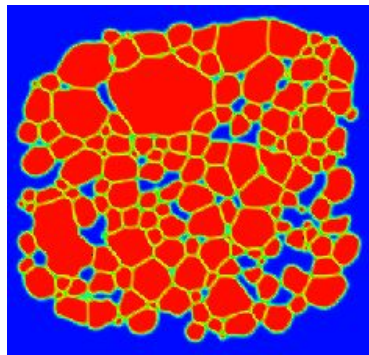


図7 マイクロ構造体モデル

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 4 件)

K. Shinagawa, S. Maki, K. Yokota: Phase-field simulation of platelike grain growth during sintering of alumina, J. Eur. Cer. Soc., 査読有, doi: 10.1016/j.jeurceramsoc.2014.04.039

品川一成: 焼結における粉末成形体の収縮変形と粒成長挙動のシミュレーション, セラミックス, 査読有, 49(2014), 87-90, https://member.ceramic.or.jp/journal/content/pdf/49_2_87.pdf

K. Shinagawa: Simulation of grain growth and sintering process by combined phase-field/discrete-element method, Acta Materialia, 査読有, 66(2014), 360-369, doi: 10.1016/j.actamat.2013.11.023

B. Randjelovic, K. Shinagawa and Z. S. Nikolic: A Mathematical Approach to Ostwald Ripening Due to Diffusion and Deformation in Liquid Bridge, Science of Sintering, 査読有, 45(2013), 261-271, doi: 10.2298/SOS1303261R

〔学会発表〕(計 8 件)

森岡篤志: Ni 粉末成形体の焼結初期における粒成長挙動, 粉体粉末冶金協会平成 25 年度秋季大会, 2013 年 11 月 27 日~2013 年 11 月 29 日, 名古屋市.

品川一成: PFM/DEM 連成法による焼結中の粒子分離のシミュレーション, 日本セラミックス協会 2013 年年会 2013 年 3 月 17 日~2013 年 3 月 19 日, 東京都.

Z.S. Nikolic: A Model for Computer Study of Grain Coarsening in Liquid Phase Sintering, Proc. 11th International Conference on Fundamental and Applied Aspects of Physical Chemistry, 2012 年 9 月 24 日~2012 年 9 月 28 日, Belgrade.

品川一成: 焼結過程の力学的モデリングとシミュレーションに関する研究, 粉体粉末冶金協会平成 24 年度秋季大会, 2012 年 11 月 29 日~2012 年 11 月 22 日, 草津市.

品川一成: 粉末成形マイクロ構造体の焼結における粒界移動と収縮変形の連成解析, 第 63 回塑性加工連合講演会, 2012 年 11 月 4 日~2012 年 11 月 6 日, 北九州市.

品川一成: 粉末粒子間の液架橋における拡散と形状変化の有限要素解析, 第 25 回日本セラミックス協会秋季シンポジウム, 2012 年 9 月 19 日~2012 年 9 月 21 日, 名古屋市.

品川一成: フェーズフィールド法/個別要素法連成による焼結過程のモデル化, 日本機械学会 2012 年度年次大会, 2012 年 9 月 9 日~2012 年 9 月 12 日, 金沢市.

品川一成: フェーズフィールド法による焼結中の異常粒成長のシミュレーション, 粉体粉末冶金協会平成 24 年度春季大会, 2012 年 5 月 27 日~2012 年 5 月 29 日, 東京都.

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

品川 一成 (SHINAGAWA Kazunari)

香川大学・工学部・教授

研究者番号: 30215983