

УДК 539.3;519.6

ЧИСЛЕННЫЙ ПОДХОД К МОДЕЛИРОВАНИЮ ИЗМЕНЕНИЯ ГЕОМЕТРИИ ПРИ СПЕКАНИИ КЕРАМИКИ С ПРИМЕНЕНИЕМ МЕТОДА КОНЕЧНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

© 2023 О. А. Солнышкина^{1,2a}, Н. Б. Фаткуллина^{1,2b}, А. З. Булатова^{1,2c},
В. Н. Киреев^{1,2d}, А. Р. Билялов^{1e}, И. Ш. Ахатов^{1f}, В. Н. Павлов^{1g}

¹Башкирский государственный медицинский университет,
ул. Ленина, 3, г. Уфа 450008, Россия,

²Центр микро- и наномасштабной динамики дисперсных систем,
Уфимский университет науки и технологий,
ул. Заки Валиди, 32, г. Уфа 450076, Россия

E-mails: ^aolgasolnyshkina@gmail.com, ^bnazgulbay@mail.ru, ^cbulatova29@yandex.ru,
^dkireev@anrb.ru, ^eazat.bilyalov@gmail.com, ^fiskander.akhatov@gmail.com,
^grectorat@bashgmu.ru

Поступила в редакцию 04.08.2022 г.; после доработки 04.08.2022 г.;
принята к публикации 29.09.2022 г.

В рамках данной работы изучение процесса свободного спекания керамического изделия проводится с применением реологической теории спекания. Численное решение задачи в трёхмерном случае выполнено методом конечных элементов с помощью свободно распространяемого программного обеспечения FreeFem++. Для тестирования модели были реализованы эксперименты по спеканию образцов из керамической пасты на основе порошка оксида алюминия при различных температурных режимах. Валидация модели проведена путём сопоставления численных и экспериментальных данных по изменению пористости.

Ключевые слова: реологическая модель спекания, 3D-печать, керамический порошок, оксид алюминия, численное моделирование, метод конечных элементов.

DOI: 10.33048/SIBJIM.2023.26.116

ВВЕДЕНИЕ

Технологии и подходы аддитивного производства находят широкое применение в различных областях науки и промышленности, особенно в случаях, когда критически важным является изготовление сложных конструкций, мелкосерийное или индивидуальное производство [1]. В последние годы технологии 3D-печати применяются при изготовлении керамических имплантов в медицине [2], поскольку они обладают хорошей биосовместимостью. Процесс изготовления керамических имплантов с использованием технологии 3D-печати можно разделить на несколько стадий: проектирование трёхмерной компьютерной модели в САД системах, непосредственно печать изделия, окончательный этап обработки, включающий в себя многостадийное спекание при различных условиях. Основной принцип процесса спекания заключается в консолидации рыхлых или слабосвязанных порошков при повышенных температурах, близких к температуре плавления, с и без применения внешних полей (электромагнитного, давления).

Работа выполнена в рамках гранта Республики Башкортостан для государственной поддержки научных исследований, проводимых под руководством ведущих учёных.

Процесс спекания обычно описывают в три стадии [3] (см. рис. 1). На ранней или начальной стадии между отдельными частицами образуются так называемые шейки (зона межзёренного контакта, обозначена на рис. 1), а уплотнение регулируется ростом шейки [4]. Частицы могут скользить и вращаться, образуя границы раздела с более низкой энергией, которые способствуют росту зёрен. По мере увеличения ширины шейки и усиления коалесценции частиц размеры пор уменьшаются. Миграция материала на свободные поверхности и обратно останавливается. Уплотнение в значительной степени ограничивается границами зёрен и диффузией. Эта фаза с ограниченной диффузией характерна для стадии промежуточного спекания, на которой поры остаются взаимосвязанными. На заключительном этапе спекания каналы между зёрнами закрываются и образуются изолированные поры. Кинетические явления на конечной стадии обычно моделируются как явления в объёмном материале. На всех трёх стадиях происходит уплотнение материала и, как следствие, существенное изменение объёма и формы образца, пористость которого уменьшается в среднем на 30–35%. И в этой связи особенно актуальной является задача более точного прогнозирования формы конечного керамического изделия.

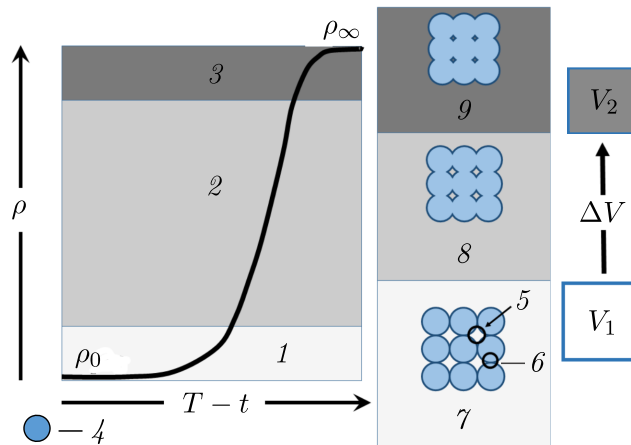


Рис. 1. Этапы спекания керамического порошка:
 начальная стадия (1), промежуточная стадия (2), финальная стадия (3),
 частицы керамического порошка (4), пора (5), «шея» (6), формирование зоны «шей» (7),
 изолированные поры (8), связанные поры (9)

В зависимости от масштаба рассматриваемой среды подходы к моделированию спекания можно разделить на атомарные, микроструктурные и континуальные. Основным инструментом для получения фундаментальных характеристик процесса на нано- и микроуровне являются методы молекулярной динамики [5, 6]. Молекулярное динамическое моделирование успешно используется для исследования механизмов спекания и эволюции микроструктуры наноразмерных порошков [7], для расчёта коэффициента диффузии металлов и диффузии ионов в керамике. Тем не менее, моделирование на уровне частиц и тем более прогнозирование формы конечного изделия на макроуровне чаще всего осуществляется с помощью микромеханического и континуального подходов. Для моделирования кинетики роста зерна и изменения микроструктуры образца применяются методы дискретного элемента [8], кинетические методы Монте-Карло [9], метод фазовых полей [10], метод граничных элементов [1].

В большинстве моделей спекание рассматривалось как коллективный результат термически активируемых адгезионных процессов, приводящих к росту контактов между частицами и их коалесценции. Разработанные подходы в основном были направлены на изучение механизмов межчастичного взаимодействия, т. е. на исследование локальной кинетики процесса. Однако кинетика спекания реальных пористых тел определяется не только свойствами частиц порошка и характером их взаимодействия, но и макроскопическими факторами. К ним

относятся кинематические ограничения (например, сцепление торца пористого образца с поверхностью печи), внешние приложенные силы, а также неоднородность свойств в исследуемом объёме. Указанные проблемы могут быть решены только в рамках макроскопического описания, которое должно основываться на понятиях, принципиально отличных от представлений локального анализа.

Перспективный подход для решения указанной проблемы связан с использованием идей из механики сплошных сред, успешно применяемых для описания уплотнения пористых тел и основанных на теориях пластической деформации пористых тел. Одно из наиболее характерных внешних проявлений процесса спекания пористого тела — изменение его линейных размеров (уменьшение). Это даёт возможность рассматривать спекание как некоторый макроскопический процесс деформации объёма и формы пористого тела, осуществляющейся путём течения вещества в твёрдой фазе. Поскольку внутренняя структура пористого пространства неоднородна, скорости течения вещества в микрообъёмах также неоднородны, причём локальные значения являются случайными величинами. В то же время поле макроскопически усреднённых скоростей течения во многих случаях может быть близким к однородному, например при спекании пористых тел с однородной макроскопической плотностью. В этом смысле спекание можно рассматривать как предмет реологического исследования [12]. Оптимизация процессов спекания реальных деталей на сегодняшний день возможна только с использованием макроскопического подхода, основанного на механике сплошных сред. Кроме того, континуальная теория спекания допускает обобщения, включая воздействие различных полей [4,13].

Одной из ключевых задач в развитии индустрии 3Д-печати из керамики является подбор корректной модели для прогнозирования поведения конкретного материала в процессе изготовления изделия. Целью данной работы является разработка математического подхода к трёхмерному моделированию изменения объёма и формы керамического изделия при спекании. Поскольку свойства и параметры каждого конкретного керамического порошка существенно влияют на кинетику процесса спекания и, как следствие, на изменение макроскопических параметров изделия, валидация модели производилась с использованием экспериментальных данных.

1. МАТЕМАТИЧЕСКАЯ ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Представления макрореологии используются при формулировании закона поведения пористого тела под действием внешних сил, а также с учётом действием движущих сил спекания. Движущие силы спекания в реологической теории спекания связаны с действием давления Лапласа (потенциал спекания или напряжение спекания). Предполагается, что внешние взаимодействия и движущие силы вносят аддитивный вклад в поведение пористого тела, изменения формы и объёма необратимы.

Подробнее опишем основные уравнения подхода. Континуальная теория определяет поведение сжимаемой сплошной среды при спекании по аналогии с теорией упругости следующим уравнением, связывающим тензор напряжений σ_{ij} и тензор скоростей деформации ε_{ij} , которое в декартовой системе координат имеет вид [14, 15]

$$\sigma_{ij} = \frac{\sigma(W)}{W} \left[\varphi \varepsilon_{ij} + \left(\psi - \frac{1}{3} \varphi \right) \dot{\varepsilon} \delta_{ij} \right] + P_L \delta_{ij}, \quad i, j = 1, 2, 3, \quad (1)$$

где W и $\sigma(W)$ — эквивалентные скорость деформации и напряжение, соответствующие поведению плотной фазы, φ и ψ — сдвиговый и объёмный модули вязкости, δ_{ij} — символ Кронекера, $\dot{\varepsilon}$ — первый инвариант тензора скоростей деформации, т. е. сумма диагональных компонентов $\dot{\varepsilon} = \varepsilon_{11} + \varepsilon_{22} + \varepsilon_{33}$ (для трёхмерного случая). Физически $\dot{\varepsilon}$ отражает изменение объёма пористого тела.

Эффективный эквивалент скоростей деформации зависит от инвариантов тензора скоростей деформации следующим образом: $W = \frac{1}{\sqrt{1-\theta}} \sqrt{\varphi \dot{\gamma}^2 + \psi \dot{\varepsilon}^2}$, где $\dot{\gamma}$ — второй инвариант тензора скоростей деформаций, физический смысл которого заключается в скорости изменения формы пористого тела.

В данной работе рассматривается модель для описания изменения пористости керамических изделий при изготовлении с помощью 3Д-печати методом лазерной стереолитографии (SLA). В таком случае в технологическом плане процесс спекания происходит без приложения внешних полей и внешнего давления, так называемое свободное спекание. При спекании без давления возникают низкие напряжения и предполагается, что доминирующими механизмами переноса вещества являются диффузионные или вязкие механизмы. Эти механизмы линейны, и выполняется линейное соотношение [3]

$$\sigma(W) = 2\eta W, \quad (2)$$

где η — сдвиговая вязкость материала. Тогда с учётом (2) уравнение (1) можно переписать в виде

$$\sigma_{ij} = 2\eta \left[\varphi \varepsilon_{ij} + \left(\psi - \frac{1}{3} \varphi \right) \dot{\varepsilon} \delta_{ij} \right] + P_L \delta_{ij}. \quad (3)$$

Правая часть уравнения содержит слагаемое P_L , выражающее эффективное напряжение спекания, возникающее за счёт капиллярных сил, и рассчитывается по теоретической формуле, представленной в [12]:

$$P_L = \frac{3\gamma}{r} (1 - \theta)^2, \quad (4)$$

где γ — коэффициент поверхностной энергии, r — средний радиус частиц керамического порошка. В некоторых модификациях к P_L также может быть добавлен член, учитывающий давление газа в порах [16] или влияние внешних полей.

В простейшем случае в соотношении (3) три основных параметра P_L , φ и ψ являются функциями пористости θ и в соответствии с реологической моделью [12, 14] могут быть вычислены по следующим формулам:

$$\varphi = (1 - \theta)^2, \quad \psi = \frac{2}{3} \frac{(1 - \theta)^3}{\theta}. \quad (5)$$

Кроме того, в рамках модели для учёта изменения вязкости материала при изменении температуры используется соотношение типа Аррениуса [17, 18]:

$$\eta(T) = AT^n \exp(B/T), \quad (6)$$

где A , B и n — материальные константы, которые могут быть подобраны путём оптимизации модели с использованием экспериментальных данных для каждого конкретного материала.

Для расчёта изменения во времени пористости (относительной плотности) используется следующее уравнение сохранения массы:

$$\frac{\dot{\theta}}{1 - \theta} = \dot{\varepsilon} = \varepsilon_{11} + \varepsilon_{22} + \varepsilon_{33}. \quad (7)$$

В рамках данной работы решение уравнений (3)–(7) реализовано с использованием метода конечных элементов в случае свободного спекания без приложения внешних сил со следующими граничными и начальными условиями на поверхности S моделируемого параллелепипеда S : $\sigma \cdot \mathbf{n} = 0$; $S_1: \mathbf{u} = 0$; $t = 0: \mathbf{u} = 0$, где S_1 — нижняя грань параллелепипеда. Выражение (3)

представляет собой открытую структуру модели процесса спекания на макроуровне, позволяющую расширить базовую модель спекания для различных более сложных случаев [15], в том числе за счёт различных подходов учёта анизотропии.

Одним из основных практически значимых направлений развития континуальных моделей спекания является корректный учёт анизотропии при изменении формы изделия. В ряде экспериментальных работ наблюдалась анизотропия при спекании [19], и авторы связывают усадку с пространственным распределением удлинённых зёрен или пор во время начальных стадий обработки. В ряде работ предложены различные подходы к решению указанной проблемы. В [20] представлена микромеханическая модель, описывающая эволюцию микроструктуры при спекании порошкового компакта, состоящего из равномерно упакованных, ориентированных, вытянутых частиц с эллиптическими порами. Авторы вывели определяющие уравнения, описывающие усадку, используя тензор напряжений при спекании и тензор вязкости материала с учётом изменения формы пор вследствие диффузии по границам зёрен в двумерном случае. Тем не менее, при моделировании изменения формы реальных объектов достаточно проблематично учитывать микроструктуру образцов, в которых поры и зёрна по форме далеки от модельных приближений.

Ещё одна идеология учёта анизотропии при спекании представлена в [16]. В случае линейного уравнения спекания анизотропия может быть введена в соотношение для вязкости материала. Для трёхмерного осесимметричного случая в цилиндрической системе координат формулы имеют вид

$$2\eta(T)_r = \eta_{0r}T \exp(Q/RT), \quad 2\eta(T)_z = \eta_{0z}T \exp(Q/RT), \quad (8)$$

где $Q = 300.3$ кДж/моль — энергия активации процесса, $R = 8.314$ Дж/мольК — универсальная газовая постоянная, сдвиговая вязкость полностью плотного материала в различных направлениях; $\eta_{0z} = 3 \cdot 10^{-3}$ Па·с и η_{0r} определяется из соотношений, описанных ниже. Необходимые параметры для настройки модели можно найти из экспериментальных данных дилатометрических тестов образцов конкретных материалов.

Один из подходов учитывает давление газа в закрытых порах на заключительном этапе [16]. В правой части уравнения (3) P_L заменяется на $P_L - P_S$ для учёта внутривещного давления газа P_S :

$$\frac{P_S}{\gamma} = \frac{\eta_0}{\gamma} \exp(Q/RT) \frac{T\psi\theta}{(1-\theta)} + \frac{3(1-\theta)^2}{r}.$$

Модель учёта давления газа дополняется соотношением для сдвиговой вязкости

$$\eta_{0r} = \eta_{0z} + 0.001\theta^{2.5}.$$

Другой подход к моделированию заключается в использовании порогового закона для объяснения замедления спекания на конечной стадии при достижении критического значения пористости $\theta_c = 0.068$ вместо учёта давления захваченного газа в порах

$$\eta_{0r} = \eta_{0z} + 0.0021(\theta - \theta_c)^{2.7}.$$

В работе [16] моделирование спекания керамики на основе описанных вариантов модели проводилось с использованием метода конечных элементов в программном обеспечении COMSOL Multiphysics. Было показано хорошее совпадение результатов моделирования с экспериментальными данными.

2. РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

Описанная модель вязкого спекания была решена численно в трёхмерном случае методом конечных элементов с помощью свободно распространяемого программного обеспечения FreeFem++. Для наиболее оптимальных результатов прогнозирования поведения материала при спекании корректировку параметров модели необходимо проводить на основе экспериментальных данных.

2.1. Экспериментальные данные

Образцы спечённых керамических изделий для экспериментального подтверждения результатов, полученных в процессе численных расчётов, были изготовлены с применением аддитивной технологической процедуры. Изготовление образцов проводилось из керамической пасты КП-А12О3/01 (производство ООО «ВундерТех», г. Москва, Россия) на основе порошка оксида алюминия α -фазы, средний размер частиц порошка $r = 0.496 \cdot 10^{-6}$ м. Паста применялась в качестве исходного материала для 3D-печати 40 образцов в форме параллелепипедов, размером $45 \times 4 \times 3$ мм, в соответствии с ASTM C1161 [21]. Печать образцов выполнялась на керамическом 3D-принтере Ceramaker 900 (производство 3DCeram, Maison Rouge, France). После 3D-печати образцы очищались от неполимеризованной пасты и подвергались первичному отжигу органического связующего в печи Kottec CLL15 (производитель Kottec, Rosenheim, Germany). Отжиг проводился до полного удаления связующего при температурах ниже 800°C . На финальной стадии отжига образцы нагревались до температуры 1000°C и выдерживались в течение одного часа, что соответствует требованиям рекомендованной производителем процедуры термообработки. По окончании процедуры отжига образцы охлаждались в печи естественным образом. Геометрическая форма и размеры образцов после отжига соответствовали исходному зелёному телу. Отожжённые образцы разделялись на восемь групп, по пять образцов в группе. Семь групп образцов подвергались высокотемпературному спеканию при температурах 1100, 1200, 1300, 1400, 1500, 1600 и 1700°C . Спекание проводилось в печи Kottec CLL15 для температур 1100–1300 $^\circ\text{C}$ ввиду ограничения на максимальную температуру данной печи. Спекание при температурах 1400–1700 $^\circ\text{C}$ проводилось в печи ThermConcept HTL 20/17 (производство ThermConcept, Bremen, Germany). Восьмая группа образцов спеканию не подвергалась. У всех сорока образцов до и после термообработки штангенциркулем измерялись геометрические размеры (длина, ширина, высота) и с помощью лабораторных весов измерялась масса. Рассчитывалась эффективная плотность образцов и с использованием известного значения идеальной плотности оксида алюминия α -фазы, равной 3.99 г/см^3 , рассчитывалась остаточная пористость материала θ_{exp} . Результаты рассчитанных для каждой группы средних значений пористости и среднеквадратичного отклонения s представлены в таблице.

Экспериментальные результаты

$T, ^\circ\text{C}$	1100	1200	1300	1400	1500	1600	1700
$\theta_{\text{exp}}, \%$	44.91417	44.05613	44.55397	43.35036	40.22472	28.68234	5.4884
$s, \%$	0.4027	0.1658	0.2739	0.1616	0.7341	0.8808	0.9323

2.2. Численные результаты

Результаты численных исследований приведены на рис. 2–4.

Поскольку в рассмотренном экспериментальном случае изменения по всем осям происходят приблизительно одинаково, то в данной работе основное внимание уделено сопоставлению изменения пористости материала. Были проведены расчёты для образцов в форме параллелепипеда, исходные параметры соответствовали выбранным в экспериментах. В рамках работы рассматривалось два соотношения для изменения сдвиговой вязкости материала. Соотношение (6) со следующими значениями констант, подобранными для конкретного материала:

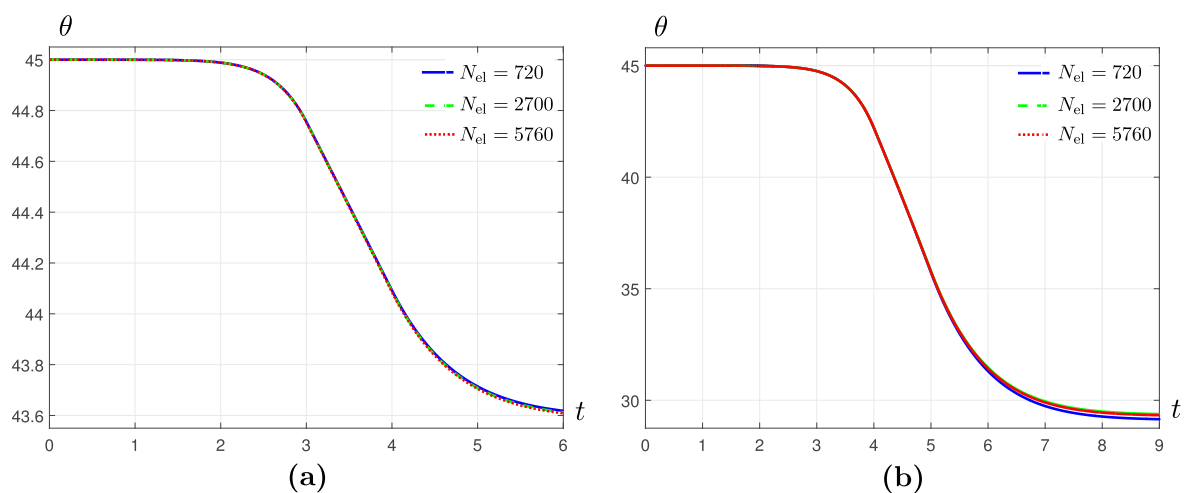


Рис. 2. Изменение пористости образца при спекании, полученное на разных расчётных сетках при $T = 1400^{\circ}\text{C}$ (a) и $T = 1600^{\circ}\text{C}$ (b)

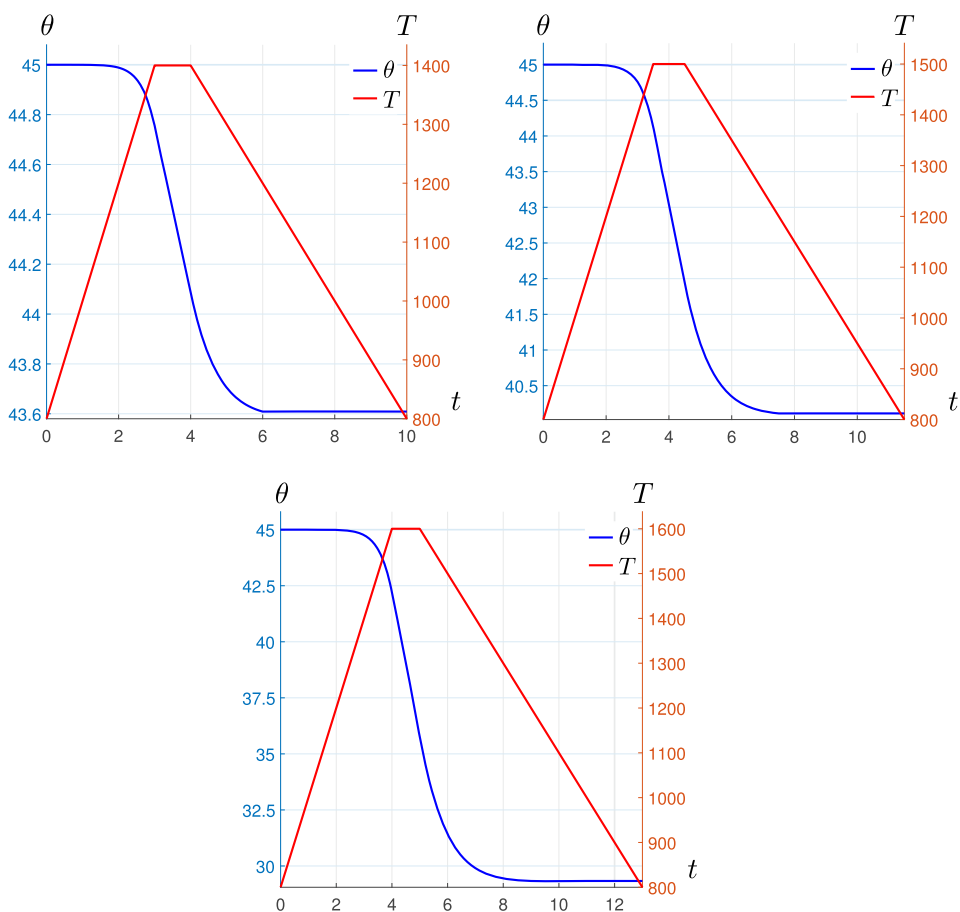


Рис. 3. Результаты расчёта изменения пористости образца в процессе спекания

$A = 1.5 \cdot 10^{-2}$, $B = 33300$ и $n = 1$ и соотношение (8) при $\eta_{0z} = \eta_{0r}$. При расчёте напряжения спекания (4) использовались значение коэффициента поверхностной энергии для Al_2O_3 , $\gamma = 0.9$ [22] и средний размер частиц порошка $r = 0.496 \cdot 10^{-6}$ м. Расчёты проводились для трёх стадий нагрева: нагрев со скоростью 200°C в час от начальной температуры 800°C до 1200°C ,

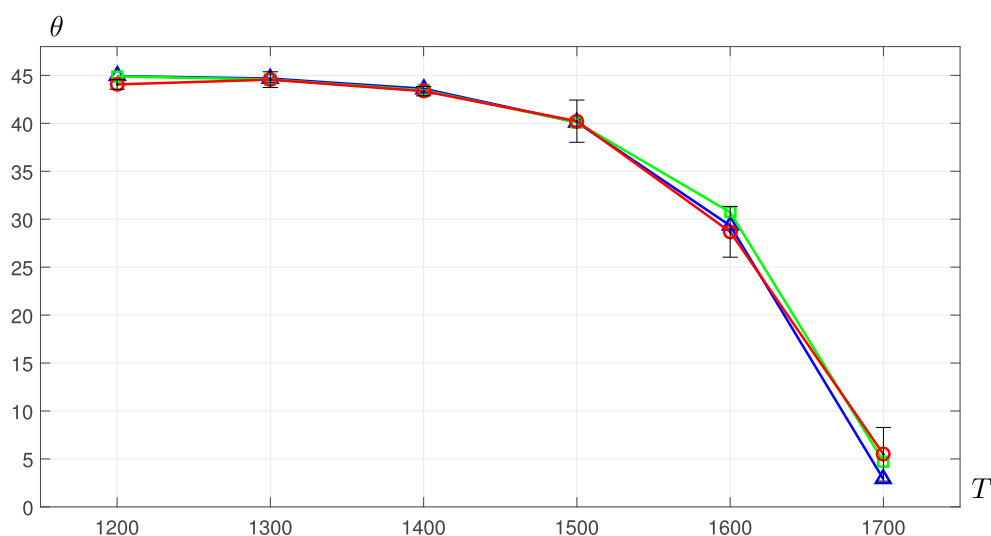


Рис. 4. Сравнение экспериментальных и рассчитанных значений пористости спечённого образца: \circ — эксперимент, Δ — расчёты с использованием формулы (8), \square — расчёты с использованием формулы (6)

1300, 1400, 1500, 1600 и 1700 °C, далее выдержка в течение часа и остывание со скоростью 100 °C в час до температуры 800 °C. В соответствии с экспериментальными данными начальное значение пористости выбиралось равным $\theta = 45\%$.

В конфигурации модели, когда расчёт изменения вязкости производится по формуле (8), соотношение изменения модуля объёмной вязкости (5) было скорректировано с учётом пороговой пористости $\theta_c = 0.02$ на основе подхода, предложенного в [16]:

$$\psi = \frac{2(1-\theta)^3}{3(\theta-\theta_c)}. \quad (9)$$

На рис. 2 приведены графики изменения пористости при нагреве до 1600 °C, рассчитанные на трёх различных вариантах сетки с количеством конечных элементов $N_{el} = 720$, $N_{el} = 2700$ и $N_{el} = 5760$ с использованием соотношения (8). Наблюдается хорошая сеточная сходимость. При проведении дальнейших расчётов использовалась сетка с количеством элементов $N_{el} = 5760$. Шаг по времени выбирался равным $ht = 0.01$ с, что удовлетворяет условию Куранта.

Полученные результаты расчётов изменения пористости во времени для трёх стадийного режима нагрева до температур 1400, 1500, 1600 °C представлены на рис. 3. Видно, что кривые изменения θ для различных температур нагрева имеют схожий характер.

В рамках работы проведено сопоставление результатов расчёта пористости образца с полученными экспериментальными данными. На рис. 4 представлены два набора численных данных, полученных с использованием различных соотношений для изменения вязкости (6) и (8). Наибольшее расхождение в значениях пористости наблюдается при максимальной температуре спекания с моделью (8). В целом показано хорошее совпадение результатов, что подтверждает корректность выбранной модели для описания изменения пористости при спекании образцов из керамической пасты на основе порошка оксида алюминия.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Для развития индустрии 3D-печати из керамики необходимо иметь возможность качественного прогнозирования и контроля конечной формы изделия после спекания. В рамках работы рассмотрена модель вязкого спекания, численное решение которой реализовано методом

конечных элементов в трёхмерном случае. Проведено тестирование модели путём сравнения с экспериментальными данными по спеканию образцов из керамического порошка оксида алюминия, изготовленных методом лазерной стереолитографии. Было рассмотрено два варианта расчёта изменения сдвиговой вязкости, подобраны материальные константы для рассматриваемого материала, показано хорошее совпадение результатов пористости спечённого образца. Таким образом, рассмотренная модель может быть выбрана за основу для дальнейшей разработки более комплексного подхода к моделированию процесса спекания, в том числе с учётом анизотропии и с возможностью прогнозирования изменения сложных форм изделий.

ЛИТЕРАТУРА

1. Gibson I., Rosen D., Stucker B., Khorasani M. Additive Manufacturing Technologies. Springer Nature, 2021; <https://doi.org/10.1007/978-3-030-56127-7>
2. Chen Z., Li Z., Li J., Liu Ch., Lao Ch., Fu Y., Liu Ch, Li Yang, Wang P., He Y. 3D printing of ceramics: A review // J. Europ. Ceram. Soc. 2019. V. 39. P. 661–687; <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2018.11.013>
3. Rahaman M.N. Sintering of Ceramics. Boca Raton: Taylor and Francis Group, 2008; <https://doi.org/10.1201/b15869>
4. Jhabvala J., Boillat E., Glardon R. Study of the inter-particle necks in selective laser sintering // Rapid Prototyping J. 2013. V. 19, N 2. P. 111-117; <https://doi.org/10.1108/13552541311302969>
5. Kart H. H., Wang G., Karaman I., Cagin T. Molecular dynamics study of the coalescence of equal and unequal sized Cu nanoparticles // Internat. J. Modern Phys. C. 2009. V. 20 (02). P. 179-196; <https://doi.org/10.1142/S0129183109013534>
6. Singh R., Sharma V. Nano tungsten carbide interactions and mechanical behaviour during sintering: A molecular dynamics study // Comput. Materials Sci. 2021. V. 197. Article 110653; <https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2021.110653>
7. Liang A., Liu C., Branicio P. S. Hot-press sintering of aluminum nitride nanoceramics // Phys. Rev. Materials. 2021. V 5. Article 096001; <https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.5.096001>
8. Nosewicz S., Rojek J., Pietrzak K., Chmielewski M. Viscoelastic discrete element model of powder sintering // Powder Technology. 2013. V. 246. P. 157–168; <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2013.05.020>
9. Sweidan F. B., Ryu H. J. Kinetic Monte Carlo simulations of the sintering microstructural evolution in density graded stainless steel fabricated by SPS // Materials Today Communications. 2021. V. 26. Article 101863; <https://doi.org/10.1016/j.mtcomm.2020.101863>
10. Liu Y., Miltzer M., Perez M. Phase field modelling of abnormal grain growth // Materials. 2019. V. 12. Article 4048; <https://doi.org/10.3390/ma12244048>
11. Van de Vorst G. A. L., Mattheij R. M. M., Kuiken H. K. A boundary element solution for two-dimensional viscous sintering // J. Comput. Phys. 1992. V. 100. P. 50–63; [https://doi.org/10.1016/0021-9991\(92\)90309-M](https://doi.org/10.1016/0021-9991(92)90309-M)
12. Skorohod V.V. Rheological Basis of the Theory of Sintering. Kiev: Naukova Dumka, 1972; <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1998.tb02768.x>
13. Van der Laan A., Epherre R., Chevallier G., Beynet Y., Weibel A., Estourn C. Fully coupled electrothermal and mechanical simulation of the production of complex shapes by spark plasma sintering // J. Europ. Ceram. Soc. 2021. V. 41, N 7. P. 4252-4263; <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2021.02.010>
14. Olevsky E.A. Theory of sintering: from discrete to continuum // Mater. Sci. Engrg. R. Rep. 1998. V. 23. P. 41–100; [https://doi.org/10.1016/S0927-796X\(98\)00009-6](https://doi.org/10.1016/S0927-796X(98)00009-6)
15. Olevsky E.A., Kandukuri S., Froyen L. Consolidation enhancement in spark-plasma sintering: Impact of high heating rates // J. Appl. Phys. 2007. V. 102. Article 114913; <https://doi.org/10.1063/1.2822189>
16. Maniere C., Harnois C., Marinel S. 3D printing of porcelain and finite element simulation of sintering affected by final stage pore gas pressure // Materials Today Communications. 2021. V. 26. Article 102063; <https://doi.org/10.1016/j.mtcomm.2021.102063>

17. *German R.M.* Sintering Theory and Practice. Wiley, 1996.
18. *Safronov A., Chugunov S., Tikhonov A., Gusev M., Akhatov I.* Numerical simulation of sintering for 3D-printed ceramics via SOVS model // *Ceram. Internat.* 2019. V. 45. P. 19027–19035; <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.06.144>
19. *Raj P.M., Cannon W.R.* Anisotropic shrinkage in tape-cast alumina: role of processing parameters and particle shape // *J. Amer. Ceram. Soc.* 1999. V. 82. Article 2619; <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1999.tb02132.x>
20. *Olevsky E. A., Kushnarev B., Maximenko A., Tikare V., Braginsky M.* Modelling of anisotropic sintering in crystalline ceramics // *Philosophical J.* 2005. V. 85, N 9. P. 2123–2146; <https://doi.org/10.1080/14786430412331331989>
21. *ASTM Standard C1161-18* Standard test method for flexural strength of advanced ceramics at ambient temperature // *ASTM Internat.* 2018; DOI: 10.1520/C1161-18, www.astm.org
22. *Van N.C., Sistla S.K., Van K.S., Giang N.A., Bezold A., Broeckmann C., Lange F.* A comparative study of different sintering models for Al_2O_3 // *J. Ceram. Soc. Japan.* 2016. V. 124. P. 301-312; <https://doi.org/10.2109/jcersj2.15257>

UDC 539.3:519.6

**NUMERICAL APPROACH FOR SIMULATION OF GEOMETRY
VARIATION DURING SINTERING OF CERAMICS BASED
ON THE FINITE ELEMENT METHOD**

© 2023 O. A. Solnyshkina^{1,2a}, N. B. Fatkullina^{1,2b}, A. Z. Bulatova^{1,2c},
V. N. Kireev^{1,2d}, A. R. Bilyalov^{1e}, I. Sh. Akhatov^{1f}, V. N. Pavlov^{1g}

¹*Bashkir State Medical University,
ul. Lenina 3, Ufa 450008, Russia,*

²*Center for Micro- and Nanoscale Dynamics of Dispersed Systems,
Bashkir State University,
ul. Zaki Validi 32, Ufa 450076, Russia*

E-mails: ^aolgasolnyshkina@gmail.com, ^bnazgulbay@mail.ru, ^cbulatova29@yandex.ru,
^dkireev@anrb.ru, ^eazat.bilyalov@gmail.com, ^fiskander.akhatov@gmail.com,
^grectorat@bashgmu.ru

Received 04.08.2022, revised 04.08.2022, accepted 29.09.2022

Abstract. Sintering is a complex physical and mechanical process, which is one of the most important technological processes in powder metallurgy and ceramic industry. In this work, the study of free sintering of a ceramic object is carried out using the rheological theory of sintering. Numerical solution of the problem in the three-dimensional case was implemented using the Finite Element Method with the freely distributed FreeFem++ software. The experiments on sintering of aluminium oxide ceramic paste were conducted for several temperature regimes. The validation of the realized model is confirmed by comparing the numerical and experimental data of porosity evolution.

Keywords: rheological sintering model, 3D printing, ceramic powder, aluminium oxide, numerical simulation, finite element method.

DOI: 10.33048/SIBJIM.2023.26.116

REFERENCES

1. Gibson I., Rosen D., Stucker B., Khorasani M. Additive Manufacturing Technologies. Springer Nature, 2021; <https://doi.org/10.1007/978-3-030-56127-7>
2. Chen Z., Li Z., Li J., Liu Ch., Lao Ch., Fu Y., Liu Ch, Li Yang, Wang P., He Y. 3D printing of ceramics: A review. *J. Europ. Ceram. Soc.*, 2019, Vol. 39 pp. 661–687; <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2018.11.013>
3. Rahaman M.N. Sintering of Ceramics. Boca Raton: Taylor and Francis Group, 2008; <https://doi.org/10.1201/b15869>
4. Jhabvala J., Boillat E., Glardon R. Study of the inter-particle necks in selective laser sintering. *Rapid Prototyping J.*, 2013, Vol. 19, No. 2, pp. 111–117; <https://doi.org/10.1108/13552541311302969>
5. Kart H. H., Wang G., Karaman I., Cagin T. Molecular dynamics study of the coalescence of equal and unequal sized Cu nanoparticles. *Internat. J. Modern Phys. C*, 2009, Vol. 20 (02), pp. 179–196; <https://doi.org/10.1142/S0129183109013534>
6. Singh R., Sharma V. Nano tungsten carbide interactions and mechanical behaviour during sintering: A molecular dynamics study. *Comput. Materials Sci.*, 2021, Vol. 197, article 110653; <https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2021.110653>

7. Liang A., Liu C., Branicio P. S. Hot-press sintering of aluminum nitride nanoceramics. *Phys. Rev. Materials*, 2021, Vol 5, article 096001; <https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.5.096001>
8. Nosewicz S., Rojek J., Pietrzak K., Chmielewski M. Viscoelastic discrete element model of powder sintering. *Powder Technology*, 2013, Vol. 246, pp. 157–168; <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2013.05.020>
9. Sweidan F. B., Ryu H. J. Kinetic Monte Carlo simulations of the sintering microstructural evolution in density graded stainless steel fabricated by SPS. *Materials Today Communications*, 2021, Vol. 26, article 101863; <https://doi.org/10.1016/j.mtcomm.2020.101863>
10. Liu Y., Miltzer M., Perez M. Phase field modelling of abnormal grain growth. *Materials*, 2019, Vol. 12, article 4048; <https://doi.org/10.3390/ma12244048>
11. Van de Vorst G. A. L., Mattheij R. M. M., Kuiken H. K. A boundary element solution for two-dimensional viscous sintering. *J. Comput. Phys.*, 1992, Vol. 100, pp. 50–63; [https://doi.org/10.1016/0021-9991\(92\)90309-M](https://doi.org/10.1016/0021-9991(92)90309-M)
12. Skorohod V.V. Rheological Basis of the Theory of Sintering. Kiev: Naukova Dumka, 1972; <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1998.tb02768.x>
13. Van der Laan A., Epherre R., Chevallier G., Beynet Y., Weibel A., Estourn C. Fully coupled electrothermal and mechanical simulation of the production of complex shapes by spark plasma sintering. *J. Europ. Ceram. Soc.*, 2021, Vol. 41, No. 7, pp. 4252–4263; <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2021.02.010>
14. Olevsky E.A. Theory of sintering: from discrete to continuum. *Mater. Sci. Engrg. R. Rep.*, 1998, Vol. 23, pp. 41–100; [https://doi.org/10.1016/S0927-796X\(98\)00009-6](https://doi.org/10.1016/S0927-796X(98)00009-6)
15. Olevsky E.A., Kandukuri S., Froyen L. Consolidation enhancement in spark-plasma sintering: Impact of high heating rates. *J. Appl. Phys.*, 2007, Vol. 102, article 114913; <https://doi.org/10.1063/1.2822189>
16. Maniere C., Harnois C., Marinel S. 3D printing of porcelain and finite element simulation of sintering affected by final stage pore gas pressure. *Materials Today Communications*, 2021, Vol. 26, article 102063; <https://doi.org/10.1016/j.mtcomm.2021.102063>
17. German R.M. Sintering Theory and Practice. Wiley, 1996.
18. Safronov A., Chugunov S., Tikhonov A., Gusev M., Akhatov I. Numerical simulation of sintering for 3D-printed ceramics via SOVS model. *Ceram. Internat.*, 2019, Vol. 45, pp. 19027–19035; <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.06.144>
19. Raj P.M., Cannon W.R. Anisotropic shrinkage in tape-cast alumina: role of processing parameters and particle shape. *J. Amer. Ceram. Soc.*, 1999, Vol. 82, article 2619; <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1999.tb02132.x>
20. Olevsky E. A., Kushnarev B., Maximenko A., Tikare V., Braginsky M. Modelling of anisotropic sintering in crystalline ceramics. *Philosophical J.*, 2005, Vol. 85, No. 9, pp. 2123–2146; <https://doi.org/10.1080/14786430412331331989>
21. ASTM Standard C1161-18 Standard Test Method for Flexural Strength of Advanced Ceramics at Ambient Temperature. *ASTM Internat.*, 2018; DOI: 10.1520/C1161-18, www.astm.org
22. Van N.C., Sistla S.K., Van K.S., Giang N.A., Bezold A., Broeckmann C., Lange F. A comparative study of different sintering models for Al₂O₃. *J. Ceram. Soc. Japan*, 2016, Vol. 124, pp. 301–312; <https://doi.org/10.2109/jcersj2.15257>