

Computer aided simulation of spark plasma sintering process (Part 1 : formulation)

Y.T. Keum* and J.H. Jeon

Department of Precision Mechanical Engineering, Graduate School in Hanyang University, Seoul 133-791, Korea
*CPRC, Division of Mechanical Engineering, Hanyang University, Seoul 133-791, Korea

(Received November 8, 2005)

(Accepted November 24, 2005)

Abstract Spark plasma sintering processes have been rapidly introduced recently to improve the quality and productivity of ceramic products and to solve the problem of environmental pollutions. Sintering temperatures and pressing pressures in the spark plasma sintering process are known to be the important factors highly affecting the quality of the ceramics. In this research, in order to see the effects of sintering temperatures and pressing pressures on the grain growth during the spark plasma sintering process of Al_2O_3 , the grain growth processes associated with sintering temperatures and pressing pressures are simulated by the Monte Carlo method (MCM) and the finite element method (FEM). In this Part 1, the formulations for the simulation, which is the theoretical background of Part 2, are introduced.

Key words Spark plasma sintering, Monte Carlo method, Finite element method, Computer simulation, Sintering temperature, Pressing pressure, Grain growth, Relative density

스파크 플라즈마 소결공정의 전산모사(1부 : 수식화)

김영탁*, 전종훈

한양대학교 일반대학원 정밀기계공학과, 서울, 133-791

*CPRC, 한양대학교 기계공학부, 서울, 133-791

(2005년 11월 8일 접수)

(2005년 11월 24일 심사완료)

요약 본 1부 연구에서는 스파크 플라즈마 열에 의한 그린 세라믹의 소결에서 열전달 및 가압력으로 인한 상대밀도의 변화를 유한요소법(FEM)으로 해석하고 그 결과에 따른 입자성장을 몬테카를로법(MCM)을 이용하여 전산모사하는 방법을 제시하기 위하여 SPS의 FEM 해석과 MCM 해석의 이론적 배경을 기술한다.

1. 서론

실험 과정이 매우 복잡하고 실험 시간이 많이 걸려 이를 대체하기 위한 컴퓨터에 의한 시뮬레이션이 많은 각광을 받고 있다. 컴퓨터 시뮬레이션은 실제실험을 통해 얻고자 하는 정보들을 컴퓨터 상에서 다루기 쉽도록 해주며, 보다 정확하고 효율적인 다양한 기능을 통해서 실험 결과를 개선하게 한다. 그리고 실험에서 얻은 시편에서 미세한 영역의 분별하기 어려운 재료의 거동을 컴퓨터 시뮬레이션을 통해서 예측하고 확인할 수 있다. 또한 고온에서 이루어지는 시편을 통해 얻기 어려운 실험의

결과를 컴퓨터로 시뮬레이션하여 보다 쉽게 원하는 결과를 얻을 수도 있다. 응용기술의 급속한 발전에 힘입어, 이전에는 사람의 능력으로는 단시간 내에 계산할 수 없었던 복잡한 공학 문제들, 예를 들면 유체역학 및 구조역학 관련분야의 제반 대형 문제들을 그래픽모델링 기술 및 유한요소해석법, 유한차분법, 유한체적법등 전산해석 기법을 이용하여 풀 수 있게 되고 또한 대용량의 계산결과 들을 그래픽가시화 기술을 이용하여 효과적으로 검토하고 평가할 수 있게 되었다. 이에 따라, 이들 모델링 및 가시화 기술, 전산해석기술을 통합적으로 활용하여 컴퓨터상에서 실제문제를 표현할 수 있는 수치적 모델을 만든 후에 공학계산 및 평가와 분석을 수행함으로써 공학문제의 물리적 거동을 근사적으로 규명하는 컴퓨터 시뮬레이션(computer simulation : 전산모사)과 고전적인 물리적 실험과의 관계가 점차로 밀접하게 상호보완적으

*Corresponding author
Tel: +82-2-2220-0436
Fax: +82-2-2298-6194
E-mail: ytkeum@hanyang.ac.kr

로 접근하고 있다.

기존의 건조공정 소결법에 비하여 작업공정이 단순하고 세라믹 제품의 질을 우수하게 할 뿐만 아니라 환경 오염 문제를 줄이는 것으로 알려져 있는 스파크 플라즈마 소결(spark plasma sintering, SPS)에 관한 연구가 활발해짐에 따라 이 공정중에 입자성장에 대한 관심이 증대되고 이를 전산모사하는 기술들이 많이 연구되고 있는 추세이다. 이 시뮬레이션은 모델링, 계산, 해석, 그리고 평가 순으로 이루어진다. 이들 과정들 중에서 모델링과 계산이 정확한 시뮬레이션을 위해서 무엇보다 중요하게 수행되어야 한다. 실제로 모델의 크기와 요소 성분 그리고 진행되는 계산 과정을 잘 기술하면 좋은 결과를 얻을 수 있다.

본 연구에서는 스파크 플라즈마 소결의 온도분포, 입자성장, 상대밀도를 해석 하기 위하여 SPS 공정을 유한요소법(FEM)과 몬테카를로법 (MCM)으로 전산모사한다. 이를 위하여 SPS의 FEM 해석과 MCM해석의 이론적 배경을 본 1부 연구에서는 기술한다.

2. 온도분포 유한요소 해석

Fig. 1은 스파크 플라즈마 소결공정을 유한요소법과 몬테카를로법으로 전산 모사하여 소결체 내부의 온도와 기공의 크기 그리고 상대 밀도를 해석하는 과정을 보여 준다.

본 연구에서는 스파크 플라즈마 소결공정으로 소결되는 Al₂O₃ 소결체 내부의 온도 분포를 유한요소법으로 해석하고, 온도분포에 따른 입자 성장 구조를 관찰한다.

스파크 플라즈마 소결은 탄소금형을 따라 강한 전류가 흐를 때 탄소금형과 소결체 사이의 방전으로 인한 고온의 열이 탄소금형 내부의 소결체로 열전달이 일어나 소결체가 소결되는 세라믹스 제조공정이다. 본 연구에서는

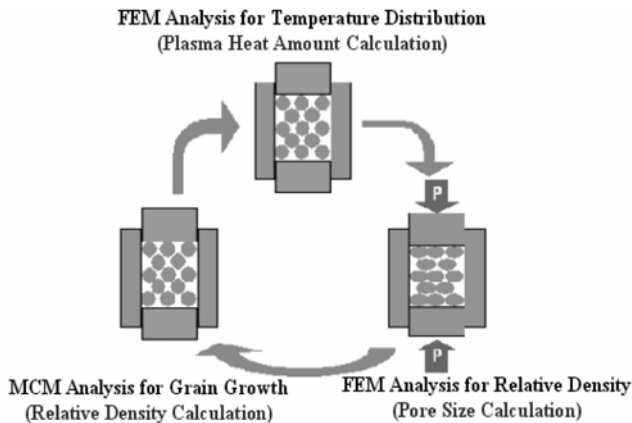


Fig. 1. Spark plasma sintering process simulation procedure.

이러한 현상에 기초를 두고 열전대에서 측정된 온도를 소결온도로 보고 온도에 따른 소재의 열전도도를 이용하여 내부온도를 유한요소법으로 해석하였다. 다음은 소결체 내부의 온도를 열전달 해석한 유한요소법을 기술한다.

1차원 열전도 방정식은 다음과 같고

$$\frac{\partial}{\partial x} \left(k_x \frac{\partial T}{\partial x} \right) + Q = \rho c \frac{\partial T}{\partial t} \quad (1)$$

식 (1)에 상응하는 범함수는 다음 식과 같이 표현된다.

$$\pi_c = U + \Omega_Q + \Omega_q \quad (2)$$

여기서

$$U = \frac{1}{2} \int_V \left[k_x \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)^2 \right] dV, \quad \Omega_Q = - \int_V Q T dV, \quad \Omega_q = - \int_{S_2} q^* T dS \quad (3)$$

이고, S₂는 열유동 q가 발생하는 영역이다.

형상함수 [N]과 절점온도 {t}로 요소내의 온도 {T}를 나타내면

$$\{T\} = [N] \{t\} \quad (4)$$

이고, 절점온도 {t}는 다음과 같이 기술된다.

$$\{t\} = \begin{Bmatrix} t_1 \\ t_2 \\ \vdots \\ M \\ \vdots \\ t_i \end{Bmatrix} \quad (5)$$

온도기울기 행렬 {g}를 다음과 같이 정의하면,

$$\{g\} = \left\{ \frac{\partial T}{\partial x} \right\} \quad (6)$$

열유속 {q_x}는

$$\{q_x\} = - [D] \{g\} \quad (7)$$

이고, 여기서 물성행렬 [D]는

$$[D] = \begin{bmatrix} k_x \\ 0 \end{bmatrix}$$

이다. 식(4)~식(7)을 식(3)에 대입하고 식(2)를 행렬 형태로 나타내면 다음과 같다.

$$\pi_c = \frac{1}{2} \int_V \{g\}^T [D] \{g\} dV - \int_V \{t\}^T [N]^T Q dV - \int_{S_2} \{t\}^T [N]^T q^* dS \quad (8)$$

한편, 식(4)을 식(6)에 대입하면 온도 기울기 행렬 {g}는

다음과 같다.

$$\{g\} = \left[\begin{array}{c} \frac{\partial N_1}{\partial x} \quad \frac{\partial N_2}{\partial x} \quad \frac{\partial N_3}{\partial x} \\ \Lambda \end{array} \right] \left\{ \begin{array}{c} t_1 \\ t_2 \\ t_3 \\ M \end{array} \right\} \quad (9)$$

식(9)를 행렬식으로 표현하면

$$\{g\} = [B] \{t\} \quad (10)$$

이다. 식(8)에 식(9)을 대입하고 절점온도 $\{t\}$ 가 일반 좌표에 독립적임을 고려하면 식 (8)은 다음과 같이 표현될 수 있다.

$$\pi_c = \frac{1}{2} \{t\}^T \iiint_V [B]^T [D] [B] dV \{t\} - \{t\}^T \iiint_V [N]^T Q dV - \{t\}^T \iint_{s_2} [N]^T q^* dS \quad (11)$$

$\{t\}$ 에 관한 범함수의 최소화 즉,

$$\frac{\partial \pi_c}{\partial \{t\}} = \iiint_V [B]^T [D] [B] dV \{t\} - \iiint_V [N]^T Q dV - \iint_{s_2} [N]^T q^* dS = 0 \quad (12)$$

로부터 다음과 같은 관계식을 얻을 수 있다.

$$\left[\iiint_V [B]^T [D] [B] dV \right] \{t\} = \{f_Q\} + \{f_q\} \quad (13)$$

여기서 하중행렬들은 각각 다음과 같다.

$$\{f_Q\} = \iiint_V [N]^T Q dV, \quad \{f_q\} = \iint_{s_2} [N]^T q^* dS \quad (14)$$

식(13)에서 열전도 행렬을 다음과 같이 정의하면,

$$[k] = \iiint_V [B]^T [D] [B] dV \quad (15)$$

식(13)은 다음과 같이 간략히 기술될 수 있다.

$$[k] \{t\} = \{f\} \quad (16)$$

해석영역 V 를 N 개의 유한요소로 나누고 식 (16)을 유한 요소들에 적용하여 유한요소의 열전도행렬 $[k^{(e)}]$ 과 하중행렬 $\{f^{(e)}\}$ 을 구한 후, 조합방법을 사용하여 전체 해석 영역과 전체 좌표계에 대한 열전도행렬 $[K]$ 과 하중행렬 $\{F\}$ 를 기술하면,

$$[K] = \sum_{e=1}^N [k^{(e)}] \quad (17)$$

$$\{F\} = \sum_{e=1}^N \{f^{(e)}\} \quad (18)$$

와 같고, 전체 해석 영역에 대한 유한요소 방정식은 다음과 같다.

$$[K] \{t\} = \{F\} \quad (19)$$

한편, 전기 저항체 R 에 시간 dt 동안에 전류 i 가 흘러 발생한 열량 dQ 는 다음과 같다.

$$dQ = i^2 R dt \quad (20-1)$$

dt 시간에 기전력 ε 이 전하 q 에 한 일의 크기 dW 는

$$dQ = \varepsilon dq = \varepsilon i dt \quad (20-2)$$

이고, 에너지 보존의 법칙으로부터 기전력이 한 일 dW 와 열 에너지 dQ 는 같다. 즉

$$\varepsilon i dt = i^2 R dt \quad (21)$$

이다.

3. 상대밀도 유한요소 해석

Al_2O_3 그린 세라믹의 소결은 온도와 가압력이 큰 영향을 주는 것으로 알려져 있다. 즉, 소결온도는 입자성장에 그리고 가압력은 소결체의 상대밀도에 지대한 영향을 준다. 이런 영향은 열린 기공의 부피를 줄여 그린 세라믹의 특성을 우수하게 변화시키기 때문이다.

절점 i, j, m 을 가지는 3절점 삼각형 요소의 절점 변위행렬을 다음과 같이 표현하면

$$\{d\} = \begin{Bmatrix} d_i \\ d_j \\ d_m \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} u_i \\ v_i \\ u_j \\ v_j \\ u_m \\ v_m \end{Bmatrix} \quad (22)$$

변위 $\{\psi\}$ 는 다음과 같이 간략히 기술된다.

$$\{\psi\} = [N] \{d\} \quad (23)$$

여기서 $[N]$ 은 형상함수 행렬이다.

또한 변형률 행렬은 구배 행렬 $[B]$ 을 사용하여 다음과 같이 표현된다.

$$\{\varepsilon\} = [B] \{d\} \quad (24)$$

한편, 총 포텐셜 π_p 는 다음과 같이 기술된다.

$$\pi_p = U + \Omega_b + \Omega_p + \Omega_s \quad (25)$$

여기서, $U, \Omega_b, \Omega_p, \Omega_s$ 는 각각 변형에너지, 체적력 포텐셜, 집중하중 포텐셜, 그리고 분포하중 포텐셜이고 다음

과 같이 기술된다.

$$U = \frac{1}{2} \iiint \{\varepsilon\}^T [D] \{\varepsilon\} dV \quad (26)$$

$$\Omega_b = - \iiint \{\psi\}^T \{X\} dV \quad (27)$$

$$\Omega_p = - \{d\}^T \{P\} \quad (28)$$

$$\Omega_s = - \iiint \{\psi\}^T \{T^*\} dS \quad (29)$$

여기서, $[D]$ 는 재료의 물성 구성행렬, $\{X\}$ 는 체적력, $\{P\}$ 는 집중 하중, $\{T^*\}$ 는 표면압력, 는 표면압력이 작용하는 영역을 나타낸다.

따라서 총 포텐셜 π_p 는 식 (23)과 식 (24)을 이용하여 다음과 같이 표현될 수 있다.

$$\pi_p = \frac{1}{2} \iiint \{d\}^T [B]^T [D] [B] \{d\} dV - \iiint \{d\}^T [N]^T \{X\} dV - \{d\}^T \{P\} - \iiint \{d\}^T [N]^T \{X^*\} dS \quad (30)$$

총하중 $\{f\}$ 를 다음과 같이 나타내면

$$\{f\} = \iiint [N]^T \{X\} dV + \{P\} + \iiint [N]^T \{T^*\} dS \quad (31)$$

총 포텐셜은 다음과 같다.

$$\pi_p = \{d\}^T \iiint [B]^T [D] [B] dV \{d\} - \{d\}^T \{f\} \quad (32)$$

정식화를 위하여 최소 포텐셜 에너지 원리를 적용하면

$$\frac{\partial \pi_p}{\partial \{d\}} = [\iiint [B]^T [D] [B] dV] \{d\} - \{f\} = 0 \quad (33)$$

이다. 즉,

$$[\iiint [B]^T [D] [B] dV] \{d\} = \{f\} \quad (34)$$

이기 때문에 강성행렬을 다음과 같이 정의하면

$$[k] = [\iiint [B]^T [D] [B] dV] \quad (35)$$

다음과 같은 간략한 식을 얻을 수 있다.

$$[k] \{d\} = \{f\} \quad (36)$$

유한요소들의 조합으로 전체 영역을 생각하면 전체 영역의 강성행렬 $[K]$ 와 힘벡터 $\{F\}$ 는 다음과 같고

$$[K] = \sum_{e=1}^N [k^{(e)}] \quad (37)$$

$$\{F\} = \sum_{e=1}^N [f^{(e)}] \quad (38)$$

여기서 $[k^{(e)}]$ 와 $\{f^{(e)}\}$ 는 각각 유한 요소의 강성행렬과 힘 벡터이다. 따라서 해석 전체 영역에서의 유한요소식은 다음과 같이 기술된다.

$$[K] \{d\} = \{F\}$$

4. 입자성장 몬테카를로 해석

입자성장 시뮬레이션 모델링은 미리 컴퓨터 상에 구성된 미세조직의 입계나 정점을 정해진 방법에 따라 이동시켜서 그 성장과정을 계산하는 결정론적 방법을 사용한다. 세라믹 소결에 따른 입자성장과 그에 따른 미세 조직 발달을 격자모델에 기초한 몬테카를로 시뮬레이션 방식을 사용한 이유는 다음과 같다. 첫째는 실험적인 방법만으로 입자성장에 영향을 미치는 변수 들 중의 일부조차도 조절하기가 쉽지 않기 때문이다. 예를 들면, 거의 통제할 수 없는 수준의 극소량의 불순물도 입계 이동에 큰 영향을 미치기 때문에 정확한 성장 속도 평가가 불가능하다. 이처럼 미시적 인자들의 영향이 크게 나타나기 때문에 여러 인자들이 복합적으로 작용했을 경우에 한 인자의 영향만을 규명하기 어려워진다. 둘째는 해석적 방법으로는 결정립 형상과 분포에 대한 가정이 필요하기 때문이다. 이는 불규칙한 형상과 크기를 가진 미세 조직을 정의하는데 필요한 인자들이 너무 많아 취급이 어려워지고, 사용된 가정으로 인해서 실험 결과와 비교가 어렵기 때문이다.

일정 간격으로 배열된 격자 점들에 고려하고자 하는 개체들의 특성을 대응시키고 한 격자 점과 그 인접격자 점들의 상호작용을 평가한다. 이런 특성 때문에 모든 격자 점들의 정보가 동시에 고려되어야 하는 분자동역학에서 요구되는 많은 용량의 계산이나 기억장치 등의 한계를 극복할 수 있다. 따라서 계는 격자 점들의 집합으로 이루어지며 그 크기는 계산용량에 의존하게 된다. 결정질 재료들은 결정 격자들이 주기적인 배열을 이루고 있고, 이들 격자에 위치한 원자들 상호간의 작용에 의해 그 특성이 나타나기 때문에 몬테카를로 방법은 재료의 특성을 연구하는데 유용하게 사용될 수 있다. 본 연구에서는 400×400 삼각 격자 배열로 구성되며 격자 배열의 양 끝단이 서로 순환되는 무한 경계조건을 갖는다.

원래의 Voronoi 모자이크 방법은 연속체 공간 내에 존재하는 핵과 핵 사이를 수직 이등분하는 특성 때문에 모든 입계가 직선이지만, 이번 연구에서는 주어진 공간이 불연속적인 특성을 갖는 격자배열이기 때문에 불규칙한 형태의 입계가 나타난다. 불규칙한 형태의 입계 생성에는 동일 방위를 가진 핵들이 인접해 있을 경우 1개의 입자로 서로 합쳐지는 현상에 기여한다. 이런 현상이 불

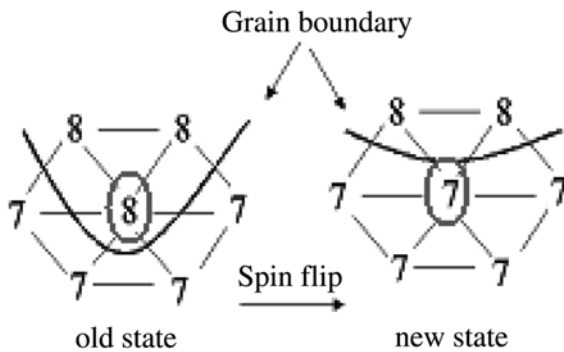


Fig. 2. 몬테카를로 방법에 의한 입자성장과정.

규칙한 입계조직을 나타낼 수 있게 한다.

입자성장의 전산모사는 몬테카를로 시뮬레이션으로 표현하였다. Fig. 2과 같이 Random하게 입자핵을 생성한 후 변환에너지 $\Delta E = E_{\text{new}} - E_{\text{old}}$ 를 계산하여 변환확률 $P(1 \text{ if } \Delta E \leq 0, \exp(-\Delta E/k_B T) \text{ if } \Delta E > 0)$ 를 선정한다. 변환확률에 따라 입자성장을 판단한다.

5. 결 론

본 1부 연구에서는 온도에 따른 Al_2O_3 의 열전도율을 이용하여 SPS 과정에서 탄소 다이와 소결체의 사이에서 방전현상으로 발생하는 열의 전달에 의한 소결체 내부의 온도분포를 FEM으로 해석 하는 방법을 제시하였다.

그리고 스파크 플라즈마 열에 의한 그린 세라믹의 소결에서 열전달 및 가압력으로 인한 상대밀도의 변화를 FEM으로 해석하고 그 결과에 따른 입자성장을 몬테카를로 방법을 이용하여 전산모사 하는 방법을 제시하였다.

감사의 글

본 연구는 한양대학교 세라믹공정연구센터를 통한 한국과학재단 우수연구센터 지원금에 의한 것입니다.

참 고 문 헌

- [1] S. Hoshii, A. Kojima and M. Goto "Rapid baking of graphite powders by the spark plasma sintering method", Letters to the Editor/Carbon 38 (2000) 1879.
- [2] Y.W. Gu, N.H. Loh, K.A. Khor, S.B. Tor and P. Cheang "Spark plasma sintering of hydroxyapatite powders", Biomaterials 23 (2002) 37.
- [3] Masao Tokita, "Trends in advanced SPS systems and technology", The Journal of The Society of Powder Technology Japan 30(11), 790-804.
- [4] Jinhua Gao and R.G. Thompson "Real time-temperature models for monte carlo simulations of normal grain growth", Acta Mater 44(11) (1996) 4565.
- [5] K. Mehnert and P. Klimanek "Monte Carlo simulation of grain growth in textured metals", Scripta Materialia 35(6) (1996) 699.
- [6] N. Rajmohan and J.A. Szpunar "Monte-Carlo simulation of gross texture development in silicon steel in the presence of MnS particles", Materials Science and Engineering A 289 (2000) 99.
- [7] R. Chakarova, D.E. Oner, I. Zoric and B. Kasemo "Monte carlo simulation of initial Al(111) oxidation", Surface Science 472 (2001) 63.
- [8] Yunus A. Cengel, Heat Transfer, McGraw-Hill (1999).
- [9] Daryl L. Logan, "A first course in the finite element method", third edition, Thomson Learning (1993).
- [10] Frank P. Incropera and David P. Dewitt, "Introduction to heat transfer", Second Edition, John Wiley & Sons, INC. (1990).
- [11] Randall M. German, "Sintering theory and practice", John Wiley & Sons, Inc. (1996).