

ICME für die Keramikentwicklung

Simon Pirkelmann, Friedrich Raether, Gerhard Seifert

Fraunhofer HTL

Zusammenfassung

In diesem Beitrag wird eine automatisierte Simulationskette vorgestellt, die zentraler Bestandteil einer zukünftigen integrierten Entwicklung keramischer Komponenten im Sinne des ICME sein kann. In dieser Simulationskette sind In-house-Lösungen mit kommerzieller Finite-Elemente-Software (ANSYS Mechanical APDL) so verknüpft, dass aus den spezifischen Eigenschaften der Gefüge mehrphasiger Keramiken deren makroskopische Materialeigenschaften zuverlässig vorhergesagt werden können. Durch die Automatisierung können Datenbanken mit breiter Variation von Phasenzusammensetzung, Korngrößen, Porosität und anderen Gefügeparametern angelegt werden. Auf Basis dieser Daten können mit Hilfe von maschinellem Lernen, konkret einem Gradient Boosting Algorithmus, sehr schnell die geeignetsten Mikrostrukturen zum Erzielen der aus der Anwendung abgeleiteten, erforderlichen Materialeigenschaften ermittelt werden. Dieser Top-Down-Ansatz für die Keramikentwicklung wird am Beispiel von zweiphasigen Keramiken aus Aluminiumoxid und Zirkoniumoxid demonstriert.

1 Einleitung

Bei der Material- und Produktentwicklung werden aktuell immer mehr Simulationsverfahren und virtuelle Testmethoden eingebunden, um die Entwicklung möglichst zielgerichtet ausführen zu können und damit schneller und kostengünstiger zu machen. Die hierfür etablierte Methodik ist das *Integrated Computational Materials Engineering* (ICME), bei dem computergestützte Verfahren auf unterschiedlichsten Längenskalen mit experimentellen Daten verknüpft werden. Ziel ist es dabei im Idealfall, aus den anwendungsbedingten Anforderungen an die Produktperformance im Top-Down-Ansatz die optimalen Lösungen für Materialauswahl, Konstruktion und Herstellverfahren abzuleiten. Im Bereich metallischer Werkstoffe existieren bereits sehr viele Software-Tools für die Simulation unterschiedlichster Fragestellungen vom Kristallwachstum auf atomarer Ebene bis zur Materialermüdung (high-cycle fatigue) [1] oder virtuellen Crashtests in der Automobilindustrie. Auch deren automatisierte Verknüpfung und die Gewinnung von Korrelationen zwischen Herstellprozess und Anwendungsverhalten [2], bei Einsatz von *machine learning* - Algorithmen auch im Sinne eines Top-Down Materialdesigns [3-5], wurde bereits gezeigt. Trotz dieser Fortschritte werden aber bisher meist nur individuelle ICME-Bausteine in der industriellen Praxis eingesetzt, weil sehr viele der Simulationsverfahren noch zu rechenaufwändig oder nicht hinreichend validiert sind.

Für keramische Werkstoffe ist der Weg zum vollständigen ICME noch etwas weiter. Keramiken als im allgemeinen spröde Materialien benötigen für viele Prozesse und Phänomene andere Modelle als die meist duktilen Metalle. Solche Simulationsmethoden existieren zwar sowohl für die verschiedenen Schritte bei der Keramikherstellung (z.B. Pulver-Verdichtung [6], Entbinderung [7] oder Sintern [8, 9]) als auch für die mikrostrukturbasierte Vorhersage von Materialeigenschaften [10, 11]. Die Entwicklung automatisierter Simulationsketten steht aber noch am Anfang; ein Ansatz zum Top-Down-Design von Keramiken mithilfe einer Simulationskette auf Basis der Mikrostruktur-Eigenschaften wurde kürzlich in der Gruppe der Autoren entwickelt [12]. Dieser Ansatz nutzt eine voxelbasierte Nachbildung realer Mikrostrukturen, die mit der Gefügegeometrie realer Proben abgeglichen sind. Auf Basis der dreidimensionalen Mikrostrukturmodelle werden verschiedene makroskopische Materialeigenschaften durch Finite-Elemente-Modellierungen berechnet. Eine automatische Simulationskette ermöglicht die Skalierung der Simulationen für eine große Anzahl von Mikrostrukturen, die in einer Datenbank der Mikrostruktur-Materialeigenschaften gesammelt werden. Diese Trainingsdaten werden zur Entwicklung von KI-Modellen für die Eigenschaftsprädiktion verwendet, mithilfe derer optimale Zusammensetzungen zur Erzielung gewünschter Eigenschaften identifiziert werden können.

In diesem Artikel wird die Simulationsmethodik am Materialbeispiel *zirkoniumverstärktes Aluminiumoxid* (zirconia-thickened alumina, ZTA) vorgestellt. ZTA sind Mischkeramiken mit exzellenten mechanischen Eigenschaften,

die für zahlreiche Strukturkomponenten eingesetzt werden. Die Werkstoffeigenschaften hängen dabei stark vom Mischungsverhältnis von Al_2O_3 und ZrO_2 ab und werden zusätzlich signifikant durch die Korngrößenverhältnisse der beiden Komponenten beeinflusst. Durch die Variation der Zusammensetzung ist es möglich, ein breites Spektrum an mechanischen, elektrischen und thermischen Eigenschaften abzudecken. Im Folgenden wird die numerische Methodik in ihren Grundzügen erläutert und am Beispiel der Wärmeleitung konkret demonstriert.

2 Strukturgenerierung

Der Herstellungsprozess der Mischkeramik ATZ startet mit einem Al_2O_3 - ZrO_2 -Pulvergemisch, das gepresst, dann zunächst drucklos gesintert und abschließend durch heißisostatisches Pressen zu möglichst hoher Dichte versintert wird. Dadurch entsteht ein im Wesentlichen porenfreies Gefüge aus Al_2O_3 - und ZrO_2 -Körnern (vgl. Abb. 1a). Dieses Gefüge wird durch dreidimensionale Voxel-Strukturen, sogenannte repräsentative Volumenelemente (RVEs), mittels des In-house Strukturgenerators GeoVal virtuell nachgebildet (vgl. Abb. 1b). Die RVEs sollten einen hinreichend großen Ausschnitt der Struktur mit ausreichender Genauigkeit abbilden. Aufgrund der bei der RVE-Erzeugung gewählten periodischen Randbedingungen reichen hierzu im vorliegenden Fall ca. 100 Partikel aus, die in einem RVE mit 64^3 Voxeln dargestellt werden. Die Abbildungsgenauigkeit wird anhand mehrerer Mikrostruktur-Deskriptoren wie Volumenanteilen, mittlere Sehnenlängen der Körner oder Korngrenzflächenanteilen ermittelt, die anhand von Rasterelektronenmikroskopie-Aufnahmen (REM) auch an gesinterten Proben bestimmt werden können. Die generierten Voxel-Strukturen werden anschließend mit dem In-house Programm VoxSM in ein Netz für die Simulation umgewandelt.

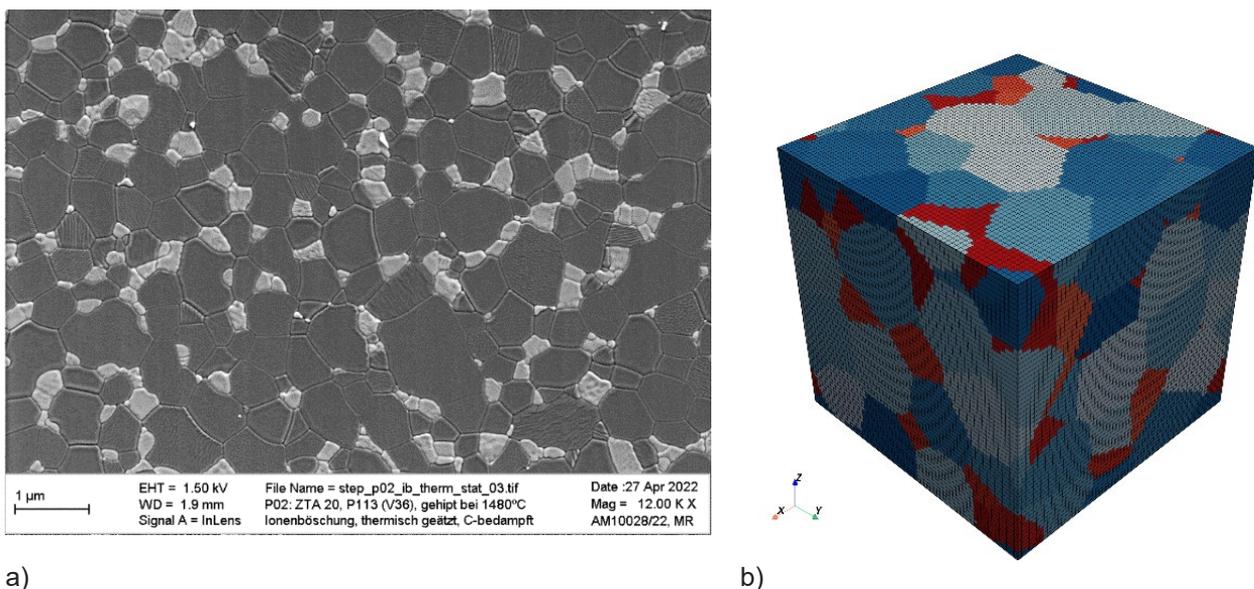


Abb. 1: a) REM-Aufnahme des Gefüges einer ZTA-Probe. Die dunkelgrauen Bereiche entsprechen Al_2O_3 , hellgrau ist ZrO_2 . b) Dreidimensionales Voxel-RVE (Auflösung 64^3 Voxel) zur Nachbildung der Mikrostruktur der ZTA-Probe aus a). Blaue Bereiche entsprechen Al_2O_3 -Körnern, rot dargestellt sind ZrO_2 -Körner.

3 Materialsimulation

Auf Basis der erstellten Mikrostruktur-Geometrien werden durch Finite-Elemente-Simulationen makroskopische Materialeigenschaften der Mikrostruktur vorhergesagt. Dabei kommt die Simulationssoftware ANSYS Mechanical zum Einsatz. Mittels verschiedener APDL-Skripte werden elastische Eigenschaft (E-Modul, Poissonzahl), thermische Leitfähigkeit, Wärmeausdehnungskoeffizient sowie thermische Spannungen im Gefüge simuliert. Das Vorgehen bei der Simulation wird anhand des Beispiels der Wärmeleitfähigkeit demonstriert: Im Simulationsskript wird zunächst das erstellte Netz geladen und die Wärmeleitfähigkeit der Einzelphasen (Al_2O_3 - und ZrO_2 -Körner) zugewiesen. Diese Daten sind in der Regel aus Datenbanken entnommen, können aber auch durch dedizierte Messungen ergänzt werden. Die Wärmeleitfähigkeit von Mischkeramiken wird außerdem maßgeblich durch die Korngrenzen zwischen den kristallinen Körnern der Einzelphasen beeinflusst. In der

Simulation können Kontaktelemente an Korngrenzflächen eingeführt werden, um die Genauigkeit der Simulationen zu steigern. Für diese wird ein materialabhängiger Wärmeübertragungskoeffizient festgelegt, der quantifiziert, wie stark der Wärmefluss durch das Material aufgrund der nicht idealen Wärmeübertragung an den Korngrenzen (hervorgerufen durch Phononenstreuung) gehemmt wird. Da der Wärmeübertragungskoeffizient im Allgemeinen schwer zu messen ist, wird sein Wert durch inverse Simulationen aus gemessenen Werten für das vorliegende Materialsystem abgeleitet (siehe unten).

Als Randbedingung für die Mikrostruktursimulation eines RVEs wird ein Temperaturgradient ΔT entlang einer Koordinatenachse für zwei gegenüberliegende Seitenflächen des RVEs gesetzt. Die Finite-Elemente-Simulation berechnet den mittleren Wärmefluss \dot{q} , der sich innerhalb des Gefüges im Gleichgewichtszustand einstellt (vgl. Abb. 2a). Daraus kann mittels der Formel $\dot{q} = -\lambda \Delta T$ die Wärmeleitfähigkeit λ der Struktur in der jeweiligen Achse bestimmt werden. Diese Berechnung wird für alle Raumrichtungen wiederholt und gemittelt.

Zur Reduktion von Artefakten aufgrund der beschränkten Größe und Auflösung der RVEs wird in einem abschließenden Homogenisierungsschritt eine weitere Simulation auf Basis eines Makro-RVEs, aufgebaut aus Würfeln von mehreren regulären RVEs, durchgeführt (vgl. Abb. 2b). Dabei wird für jeden Würfel die oben berechnete Wärmeleitfähigkeit mit einer zufälligen Orientierung des Koordinatensystems angenommen. Als Ergebnis erhält man eine Abschätzung für den makroskopischen Wert der Wärmeleitfähigkeit.

Um die Vorhersagegenauigkeit der Simulation zu überprüfen, werden die Ergebnisse anhand einer kleinen Zahl von Proben validiert. Für diese Proben erfolgt ein Abgleich der Mikrostruktur-Deskriptoren des realen Gefüges und der virtuellen RVEs, sowie die experimentelle Messung der Wärmeleitfähigkeit. Die Validierungsmessungen dienen außerdem dazu, mittels inverser Simulationen fehlende Eingangsgrößen für die Simulationen (insbes. der Wärmeübertragungskoeffizient) für das jeweils vorliegende Materialsystem festzulegen. Insgesamt erreichen die Finite-Elemente-Simulationen für die betrachteten Materialeigenschaften des ZTA-Materialsystems eine Genauigkeit von >95%.

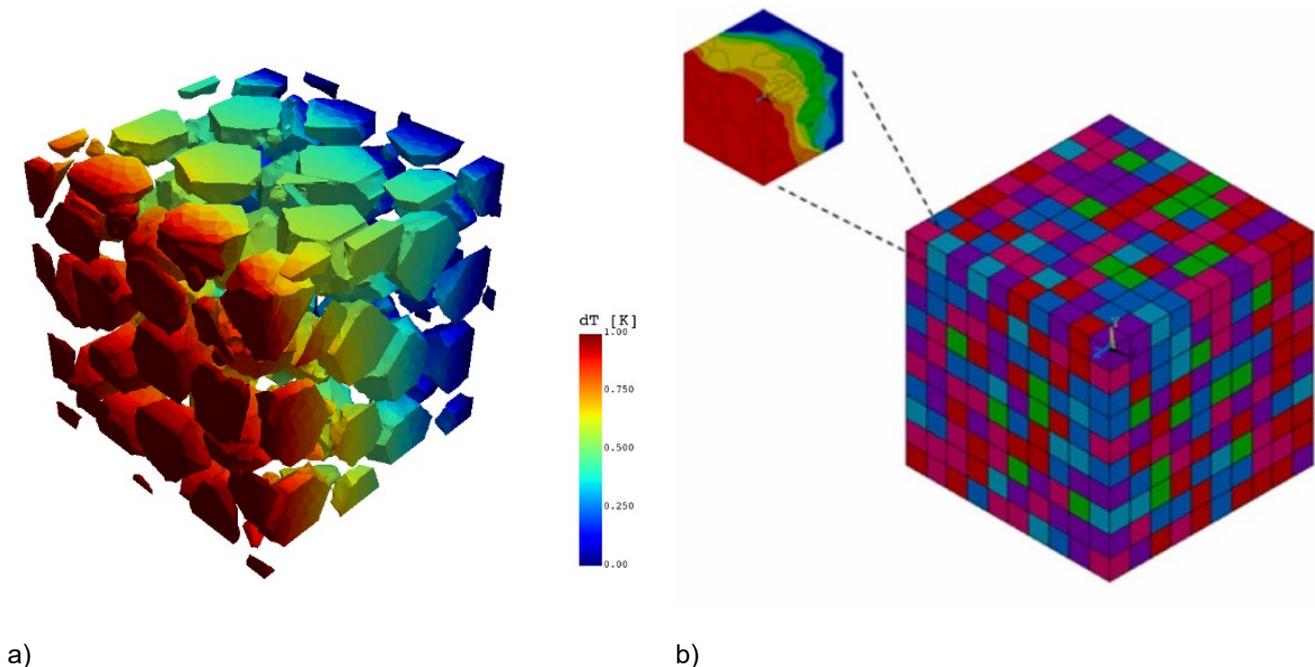


Abb. 2: a) Simulation der Wärmeleitfähigkeit eines RVEs mittels finite Elemente Methode. Dargestellt ist ein Temperaturgradient entlang einer Achse des RVE. b) Illustration eines Makro-RVE, aufgebaut aus mehreren kleineren RVEs, das für den Homogenisierungsschritt verwendet wird.

4 Automatische Simulationskette und KI-Modelle zur Eigenschaftsprädiktion

Der beschriebene Ablauf zur Generierung und anschließenden Simulation von Mikrostrukturen ist durch Python-Skripte automatisiert und parallelisiert durchführbar. Dadurch ist es möglich, eine große Anzahl Strukturen zu erzeugen und einzelne Parameter der Mikrostrukturen (Volumenanteile, Sehnenlängen, etc.) statistisch zu variieren. Für jede erzeugte Struktur werden die jeweiligen Mikrostruktur-Deskriptoren und die zugehörigen simulierten Materialeigenschaften in einer Datenbank abgespeichert.

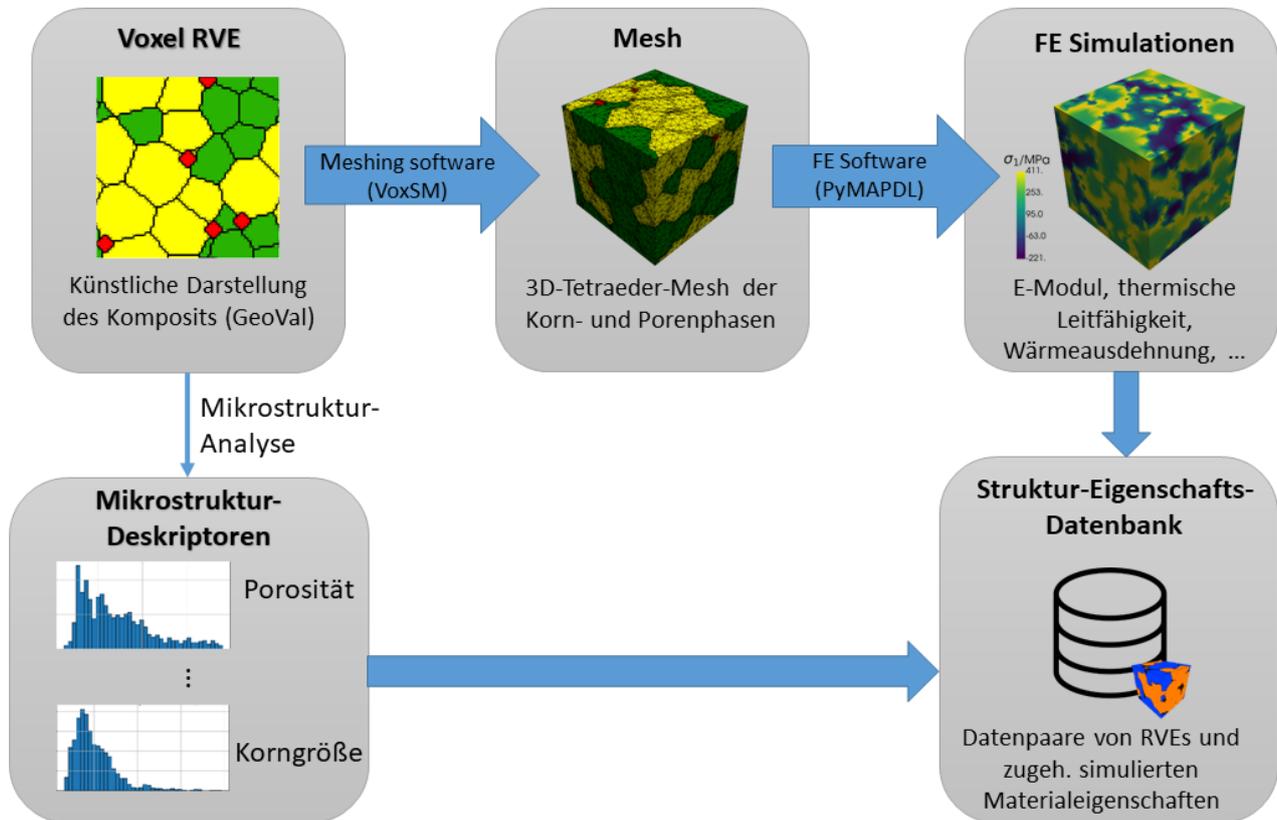


Abb. 3: Schematische Darstellung der einzelnen Schritte der Simulationskette zur automatisierten Durchführung von Mikrostruktur-Eigenschaftssimulationen für eine große Zahl von RVEs.

In Abbildung 4 ist das Ergebnis der Simulationskette für die Simulation der Wärmeleitfähigkeit für das ZTA-System dargestellt. Die Abbildung zeigt die (nichtlineare) Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit des Materials vom Volumenanteil des Al_2O_3 . Es ist gut zu erkennen, dass vor allem im Bereich mittlerer Volumenanteile Zusammensetzungen mit gleichem Volumenanteil durchaus unterschiedliche Wärmeleitfähigkeit aufweisen können. Die Wärmeleitfähigkeit des Materials ist hier folglich nicht einzig durch den Volumenanteil einstellbar. Vielmehr kommen weitere Deskriptoren wie die Grenzflächenanteile zwischen den Al_2O_3 -Körnern zum Tragen, die in der Abbildung durch die Farbskala dargestellt sind.

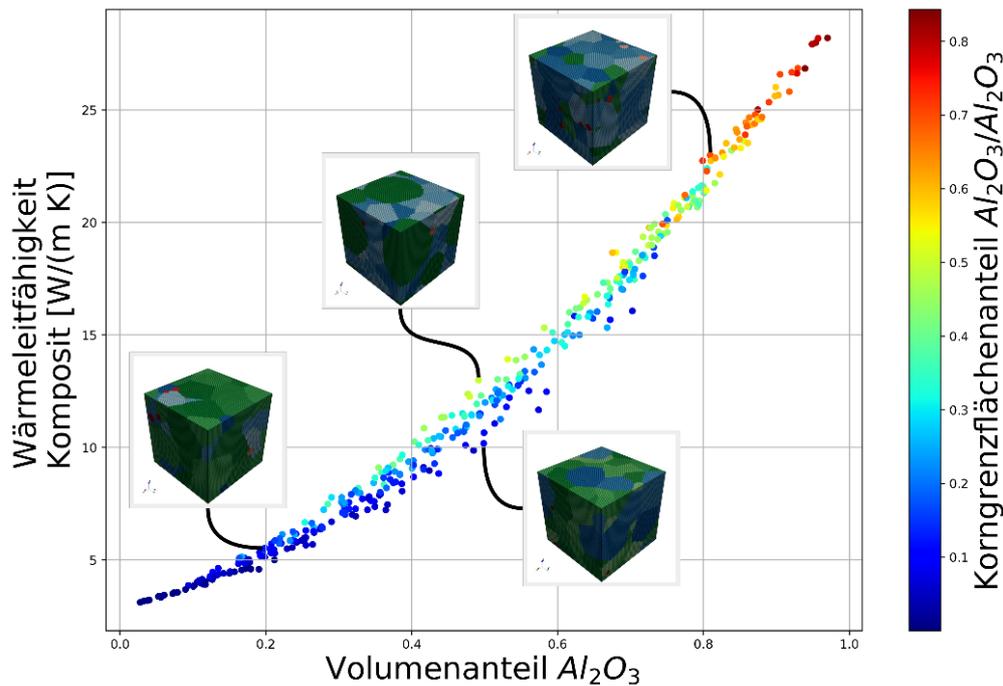


Abb. 4: Wärmeleitfähigkeit verschiedener ZTA-Mikrostrukturen in Abhängigkeit des Volumenanteils des Al_2O_3 (dargestellt in blau in den Bildern ausgewählter RVEs) und der Korngrenzflächenanteile zwischen Al_2O_3 -Körnern.

Um die nichtlinearen Zusammenhänge der Mikrostrukturdeskriptoren und der resultierenden Materialeigenschaften erfassen zu können, werden Machine-Learning-Modelle eingesetzt. Diese Modelle werden mit Trainingsdaten aus der automatischen Simulationskette trainiert. Anschließend können sie verwendet werden, um die erwarteten Materialeigenschaften für eine gegebene Struktur anhand der Deskriptoren vorherzusagen. Mittels Gradient-Boosting-Verfahren wird ein Ensemble von Entscheidungsbäumen trainiert, das einen funktionalen Zusammenhang zwischen den Eingangsdaten (Mikrostruktur-Deskriptoren) und Ausgangsgrößen (Materialeigenschaften) identifiziert. Durch die Machine-Learning-Modelle können die aufwändigen FE-Simulationen durch die Auswertung statistischer Surrogate-Modelle ersetzt werden. Dadurch ist es möglich, den Parameterraum der Mikrostruktur-Designvariablen systematisch und effizient abzutasten und optimale Strukturen zur Realisierung einer gewünschten Zieleigenschaft zu finden.

5 Zusammenfassung und Ausblick

Die vorgestellte automatisierte Simulationskette zur gefügebasierten Eigenschaftssimulation von Keramiken in Verbindung mit KI-Algorithmen zur schnellen und zielgerichteten Auswertung der erzeugten Datenbanken für Mikrostruktur-Eigenschaften ist ein sehr leistungsfähiges Werkzeug für die Digitalisierung der Keramikentwicklung. Schon im aktuellen Entwicklungsstand ist eine effiziente Suche nach optimalen Strukturen im Sinne eines Top-Down Materialdesigns möglich. Die für eine bestimmte Kombination von Ausgangsrohstoffen entwickelten Modelle können Anwendern in Form von Apps zur Verfügung gestellt werden, um ihnen die Herstellung maßgeschneiderter Hochleistungswerkstoffe für konkrete Anwendungen in der Praxis zu ermöglichen.

Um die gesamte Keramik-Entwicklungskette nach dem ICME-Konzept so weit wie möglich zu digitalisieren, müssen in Zukunft für weitere Schritte Modellierungen und experimentell bestimmte Informationen mit der oben beschriebenen Simulationskette verknüpft werden. Dazu gehört die naheliegende Fragestellung, durch welche Kombination von Rohstoffen und Thermoprozessführung das rechnerisch ermittelte „ideale“ Gefüge am effizientesten erreicht werden kann. Hier kann entweder geeignet digitalisiertes empirisches Wissen genutzt oder – nach hinreichender Validierung – auf etablierte analytische Sintermodelle, die Phänomene wie Kornwachstum beinhalten, zurückgegriffen werden. Auf der anderen Seite, d.h. in Richtung auf ein konkretes Produkt hin, spielen

die makroskopischen Effekte im Thermoprozess eine entscheidende Rolle. Prominente Beispiele sind unerwünschte Verformungen während des Sinterns, die oft die Möglichkeiten, durch additive Fertigung komplexe Geometrien in einem Schritt zu fertigen, konterkarieren. Hier können kontinuumsmechanische Modelle auf Basis von präzisen In-Situ-Messdaten wie das vom Fraunhofer HTL entwickelte [13], die die Verformung von Bauteilen im Thermoprozess zuverlässig vorhersagen können, genutzt werden, um selbstständig die Konstruktionsdaten so anzupassen, dass der Sinterverzug berücksichtigt und zielgenau nach dem Sinterprozess die gewünschte Endform des Bauteils erreicht wird.

Insgesamt bietet das Konzept der integrierten, computergestützten Keramikentwicklung mit dem hier vorgestellten digitalen Baustein des anwendungsspezifischen Top-Down Designs keramischer Gefüge großes Potenzial, die Entwicklung innovativer keramischer Komponenten wesentlich zu beschleunigen und dabei zugleich die Rohstoff- und Energieeffizienz der zugehörigen Herstellprozesse wesentlich zu verbessern.

6 Literatur

- [1] G.J. Schmitz, U. Prah, Integrative Computational Materials Engineering: Concepts and Applications of a Modular Simulation Platform, Wiley-VCH, Weinheim, 2012.
- [2] P. Mason, Ch.R. Fisher, R. Glamm, M.V. Manue, G.J. Schmitz, A.K. Singh, A. Strachan, Proceedings of the 4th World Congress on Integrated Computational Materials Engineering (ICME 2017), Springer, 2017.
- [3] S. Gajek, M. Schneider, T. Böhlke, On the micromechanics of deep material networks, J. Mech. Phys. Solids 142 (2020) 103984.
- [4] J. Kuhn, J. Spitz, P. Sonnweber-Ribic, M. Schneider, T. Böhlke, Identifying material parameters in crystal plasticity by Bayesian optimization, Optim. Eng. (2021). <https://doi.org/10.1007/s11081-021-09663-7>.
- [5] A. Tran, T. Wildey, Solving Stochastic Inverse Problems for Property–Structure Linkages Using Data-Consistent Inversion and Machine Learning, JOM 73 (1) (2021) 72-89.
- [6] T. Breinlinger, T. Kraft, Coupled discrete element and smoothed particle hydrodynamics simulations of the die filling process, Comp. Part. Mech. 3 (2016) 505–511.
- [7] A. Maximenko, O. van der Biest, Finite Element Modelling of Binder Removal from Ceramic Mouldings, J. Eur. Ceram. Soc. 18 (1998) 1001-1009.
- [8] E.A. Olevsky, V. Tikare, T. Garino, Multi-Scale Study of Sintering: A Review, J. Am. Ceram. Soc., 89 [6] (2006) 1914–1922.
- [9] F. Raether, G. Seifert, Modeling Inherently Homogeneous Sintering Processes, Adv. Theory Simul. 1 (2018) 1800022.
- [10] Y. Othmani, T. Böhlke, T. Lube, A. Fellmeth, Z. Chlup, F. Colonna, A. Hashibon, Analysis of the effective thermoelastic properties and stress fields in silicon nitride based on EBSD data, J. Eur. Ceram. Soc. 36 (2016) 1109–1125.
- [11] G. Grabowski, Modelling of thermal expansion of single- and two-phase ceramic polycrystals utilising synthetic 3D microstructures, Comp. Mater. Sci. 156 (2019) 7–16.
- [12] Pirkelmann S., Seifert G., Raether F.: Top-down material design of multi-phase ceramics. Open Ceramics, Volume 9, (2022).
- [13] F. Raether, G. Seifert, H. Ziebold, Simulation of Sintering across Scales, Adv. Theory Simul. 2 (2019) 1900048.