

陶磁器用筆絵付けロボットの開発（第3報）

横山貴広・柘植英明・小稲彩人

Development of A Writing Brush Painter's Robot for Ceramics(III)

Takahiro YOKOYAMA , Hideaki TSUGE and Ayato KOINE

岐阜県を代表する主要な地場産業である陶磁器産業は、海外からの輸入増大に伴い年々その生産規模を縮小している。このように地場産業全体が低迷する中で、産業の活性化や持続的発展のためには「匠」の技を持つ技能者の後継者技能伝承問題の解決や製品の高付加価値化、美濃焼独自のオリジナル商品の創出などが求められている。そこで昨年度、当研究所で開発した従来の陶磁器用筆絵付けロボットの高性能化（多品種、多筆化、多色化）に着手し、システム全般の設計と教示部ハードウェアの製作を完成させた。本年度は、教示部ソフトウェアの開発と、ロボット部ハードウェアの製作を実施した。

1. 緒言

県内の地場産業は、全般的に海外からの低価格輸入製品の増大により年々売上高や生産規模を落としている。とりわけ東濃地方を中心とする陶磁器産業に関してはその傾向が顕著に見られる。

陶磁器産業の発展には海外の低価格製品に対抗した少品種大量生産方式ではなく、美濃焼独自の高付加価値製品の開発や「匠」の技を持つ技能者が製作する高品質の製品開発が必須となってくる。しかし、技能者が高齢化し、次世代に技能の伝承が行われていないなどの問題も生じている。

以上の背景により、ロボットアームを使用して技能者の技能を保存し、再現するシステムの開発を行ってきた。

昨年度は従来からのシステムの高機能化（多品種、多筆化、多色化）を実施し、システム全般に関する設計と教示部ハードウェアを製作し完成させた。図1は高性能化のイメージ図である。

本年度は、昨年製作した教示部ハードウェアに対応したソフトウェア開発とロボット部ハードウェアの設計・製作を行った。その結果、オペレータに使いやすい教示部のシステムとロボット部ハードウェアを完成させた。

2. システムの概要

図2に示すように、システムは、教示部、システムPC部、ロボット部によって構成されている。

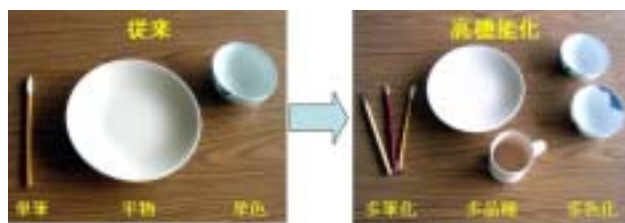


図1 高性能化のイメージ図

教示部では人の筆記動作に用いる筆の位置（X：縦，Y：横，Z：高さ）と姿勢（A：アジマス，E：エレベーション，R：ロール）を磁気センサでリアルタイム計測している。システムPC部では教示部で測定したデータの保存、加工、演算を行っている。またロボット部では（株）三菱重工業製のPA-10ロボットアーム（7軸垂直多関節型）を用い、先端位置姿勢制御を行い人の筆記動作をロボットアームで再現している。



図2 システム全般の構成図
3. 教示部ソフトウェアの開発

すことで対策をしている。

その他には、姿勢のエレベーション（E）が±90°付近になると他の姿勢（A：アジマス、R：ロール）が回転する“ジンバルロック”と呼ばれる特殊な現象が生じ、この姿勢付近の精度の低下やロボットアームが誤動作する可能性がある。この対策として方向四元数（Q0：実数部、Q1、Q2、Q3：虚数部）を用いて、ロボット姿勢行列を算出し、今後の対策とする予定である。

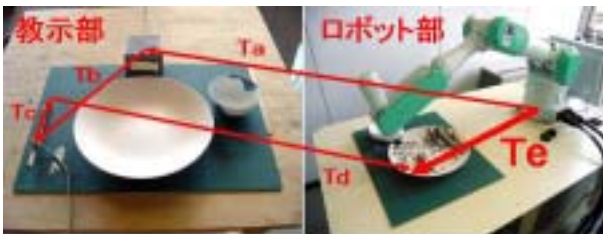
3 - 4 ロボットデータの作成

加工後のデータを用いてロボットを動作させるには、ロボットデータ（ロボット基本行列）を作成する必要がある。ロボット基本行列式とロボットデータの作成に必要な教示部とロボット部の関係説明図を図5に示す。

ロボット基本行列式

CA*CE	CA*SE*SR-SA*CR	CA*SE*CR+SA*SR	X
SA*CE	CA*CR+SA*SE*SR	SA*SE*CR-CA*SR	Y
-SE	CE*SR	CE*CR	Z
0	0	0	1

$$SA=\sin A \quad SE=\sin E \quad SR=\sin R \quad CA=\cos A \quad CE=\cos E \quad CR=\cos R$$



$$\text{ロボットデータ } T_e = T_d \cdot T_c \cdot T_b \cdot T_a$$

図5 ロボット基本行列式と関係説明図

図よりロボットベースの中心から筆の先端（Te）までのロボット基本行列式作成にはロボットベースと磁気センサトランスミッタ中心（Ta）、磁気センサトランスミッタ中心と磁気センサレシーバ中心（Tb）、磁気センサレシーバ中心と教示部筆の先端（Tc）、教示部筆の先端とロボット部筆の先端（Td）までのロボット基本行列式を掛け合わせることが必要となる。加工後の教示データは磁気センサトランスミッタ中心と磁気センサレシーバ中心の相対的な位置・姿勢を現している。

こうして求めた行列（Te）を使用してロボットを動作させている。

なお、ロボットデータのフォーマットはロボット基本行列式のデータ12個（4列目は一定のため除く）、Penデータ2個、ワークの回転角度・傾斜角度2個の16個で構成している。

3 - 5 ロボット動作の実行

上記のように作成したロボットデータを用いて、ロボットアームの筆記動作とワークの状態を変化させるサーボモータを同期させて動作させる。平成19年度にロボット部ソフトウェア開発で対応する予定である。

4 . ロボット部ハードウェアの開発

ロボット部ハードウェアは、昨年度製作した教示部に対応できるシステムとなるように設計・製作した。完成したロボット部ハードウェアの外観を図6に示す。



図6 ロボット部ハードウェアの外観

まず多品種対応に関しては、教示部ハードウェアがワークの状態（傾斜・回転）を検出できるセンサを取り付けたのに対して、ロボット部ではセンサの値に応じ、傾斜・回転モータの回転で再現できる構造となっている。またロボットアームの動作とモータの回転を同期させて再現するため、応答性の良いモータを採用している。次に多筆化対応では、筆の本数だけロボット部作業台に筆先を置くことができるスタンドを設置し、ロボットアーム先端と筆とをアクチュエータを用いて脱着できるようにした。多色化に関しては、顔料容器を複数並べて対応した。通常、教示は1回行うのに対し、ロボットは複数回動作させるため、顔料の濃度や沈殿の影響を考慮して攪拌モータを設置した。

一般的に、ワークと顔料容器との間に距離があるため、姿勢によってはロボットアームの可動範囲異常が起こることがある。そのため、ロボットアーム全般の位置を調整できるようにして、本システムの稼働に最適な位置を決定する。

さらにロボットの筆記動作時に人と同じような感じで筆に対する弾力性を出すため、筆とロボットアームに取り付けるためのブラケットの間にクッション性の材料を挿入している。

以上の機能を考慮して、本年度はロボット部ハードウェアの製作を実施し完成させた。

5.まとめ

教示側のソフトウェア開発を実施し、オペレータに使い易いシステムを構築した。

ロボット側の設計・製作を行い、ハードウェアを完成させた。

今後、本年度製作したロボット側のソフトウェアの作成に取りかかると同時に、システム全般の総合調整を行う予定である。また本システムを用いて出来上がった製品の精度を上げるには、ロボットアームが絵付けをするのに適した筆の開発も必要である。

さらに、ロボットの姿勢制御方法の検討やオペレータがより使いやすいような環境を考慮したシ

ステム開発を同時に進め、本システムを活用した地場産業の活性化に貢献していきたいと考えている。

謝辞：本研究を進めるにあたっては、陶磁器業界に携わる方々に様々なご意見を頂きました。特に（株）東産工業所には陶磁器製品全般に関するご意見、新栄機工（株）にはシステムの設計・製作に対するご意見を頂きました。ここに心より深く感謝申し上げます。

【参考文献】

- 1) 横山貴広, 久富茂樹, 光井輝彰 “ ロボット教示高度化のためのセンシング手法に関する研究の実用化 ”, 岐阜県生産情報技術研究所研究報告, pp47-50, 第5号 平成15年度
- 2) 横山貴広, “ 陶磁器用筆絵付けロボットの開発 ”, 日本陶磁器産業振興協会 (JAPPY1 月号) pp11-13
- 3) 特願 2004-249868 「 ロボット教示システム 」
- 4) 横山貴広, “ 陶磁器用筆絵付けロボットの開発 ”, 岐阜県セラミックス技術研究所研究報告, 2005, pp21-23,
- 5) 横山貴広, “ 陶磁器用筆絵付けロボットの開発 (第2報) ”, 岐阜県セラミックス研究所研究報告, 2006, pp30-32,

マイクロ波をもちいた CoAl_2O_4 系顔料の水熱合成

尾畑 成造・加藤 昌宏*・横山 久範・安達 直己・岩田 芳幸

Hydrothermal Synthesis of Cobalt Aluminate pigments by Microwave Heating

Seizo OBATA, Masahiro KATO*, Hisanori YOKOYAMA, Naoki ADACHI and Yoshiyuki IWATA

pH 12 に溶液を調製し、220 °C 以上でマイクロ波水熱合成(M-H)処理することによって CoAl_2O_4 スピネルが得られた。しかし合成された CoAl_2O_4 スピネル粉末は青みがあった緑色を示した。合成条件をさらに検討した結果、合成された粒子は M-H 処理 1 時間まで成長し、これ以上長時間 M-H 処理しても粒子形状やサイズにはほとんど影響しなかった。また M-H 処理時間は色調には影響を与えなかった。これに対し溶液調製時の濃度が色調に大きく影響し、その濃度を高くすることによって合成した粉末はより青味を増した。

1. 緒言

コバルトアルミネート(CoAl_2O_4)はテナールブルー、コバルトブルーとして知られる青色顔料であり、その印象的な光学特性からガラスや塗料、プラスチック、カラーテレビ用の発色顔料などとして広くもちいられてきた¹⁾。

この CoAl_2O_4 は 2 種類の金属化合物からなるスピネル構造を有する複合酸化物であり、耐光性・耐候性などに優れ非常に安定した顔料である。このためセラミック用顔料としても多くもちいられ、実際に陶磁器用顔料として CoAl_2O_4 スピネルやこれに酸化亜鉛を加えた (Co, Zn) Al_2O_4 として広く使用されている²⁾。

CoAl_2O_4 など陶磁器で使用される顔料の合成は一般的に固相反応法で行われるが、この方法は 2 種類以上の粉体を混合・加熱(>1,000 °C)して合成するため、組成や粒子径が不均一で不純物が混入しやすい³⁾。また粒子径は粉体特性のうち非常に重要な要素の一つであり、焼結特性や発色特性に影響を及ぼす。

このため、ゾルゲル法⁴⁾や水熱合成法⁵⁻⁷⁾、有機前駆体⁸⁾からの調製などによる合成が検討されてきた。またその発色性^{5,6,9)}についても検討されてきた。このうち水熱合成法は溶液から粉体を作製可能なプロセスの一つであり、ゾルゲル法で必要とされる仮焼工程を必要とせず、組成や粒子径が均一で高純度な微粒子を低温で合成することができる¹⁰⁾。またマイクロ波と材料

の相互作用による加熱を利用した水熱合成が研究されており、より均一な粒子径をもつ微粒子の迅速合成が可能であると報告されている¹¹⁾。そこで本研究ではこのマイクロ波をもちいた水熱合成(M-H)によって CoAl_2O_4 系顔料の低温での迅速合成を検討するとともに得られた粉体特性を評価した。

2. 実験方法

2-1 粉体合成

コバルト及びアルミニウム源として硝酸コバルト($\text{Co}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$)(関東化学製)ならびに硝酸アルミニウム($\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$)(関東化学製)を使用した。これらをイオン交換水に溶解させ、それぞれ Co 濃度及び Al 濃度 1 M の水溶液を調製した。pH 調整については 3 M の水酸化ナトリウム(NaOH)を使用した。これらを Co モル濃度 : Al モル濃度の比が 1 : 2 となるように分取した後、スターラーにて攪拌しながら NaOH 溶液をゆっくりと添加し、pH 調整を行った。さらに水を添加し、所定の濃度に調製した。その後室温にて 24 時間攪拌し、測定した pH を溶液の pH とした。

得られた溶液をテフロンセルに入れ、スターラーで攪拌しながらパーキンエルマー製 Multiwave 3000 をもちいて 180 ~ 240 °C で所定時間保持してマイクロ波水熱(M-H)処理した。温度についてはテフロンセル下部から IR センサ

* 多治見市陶磁器意匠研究所

ーをもちいて測温した。セル内温度と IR センサー間で温度差が生じないように目的温度まで 20 分間かけて昇温し、反応後の生成物は遠心分離及び吸引過により回収した。さらにイオン交換水で生成物を数回洗浄したのち、100 で一昼夜乾燥した。

2 - 2 粉体特性

得られた粉末は粉末 X 線回折(ブルカー-AXS 製 MXP3)、透過型電子顕微鏡 (TEM)(日立製作所製 H-8100)をもちいて粉体の鉱物組成や形態を評価した。また分光光度計(東京電色製 TC-1800)にて 400 ~ 780 nm の領域における分光反射率を測定し、これから算出した吸収スペクトルをもちいて得られた生成物の色調を評価した。

3 . 結果及び考察

3 - 1 溶液の pH と処理温度の影響

M-H 処理前において水酸化ナトリウムを添加し、pH 9 ~ 12 に調整して得られた沈殿物の主成分は Co と Al の層状複水酸化物であった。このほかには水酸化アルミニウム($\text{Al}(\text{OH})_3$)のピークがみられたものの、水酸化コバルトと同定

されるピークはなかった。図 1 に pH をそれぞれ 9, 10, 11, 12 に調製した溶液をもちいて種々温度で 2 時間 M-H 処理して得られた生成物の XRD の結果を示す。このとき溶液中の Co の濃度は 0.05 M に調製した。

180 で M-H 処理したところ、pH 9 に調製した溶液からの生成物では Co と Al の層状複水酸化物と $\text{Al}(\text{OH})_3$ のピークが見られ、反応が進行していないことが分かる。また pH 10 でややピークが小さくなっているものの pH 9 と同様に反応がほとんど進行していなかった。一方 pH 11 及び pH 12 に調整した溶液からの生成物では層状複水酸化物のピークは消失し、スピネル構造を有する生成物とベーマイト(boehmite: $\text{AlO}(\text{OH})$)のピークを確認した。このスピネル構造を有するピークについて 65 ° 付近に示されるピーク(440)をもちいて検討した結果、四酸化三コバルト(Co_3O_4)と CoAl_2O_4 が生成していると考えられる。ここでピーク強度比、ピーク位置を検討した結果、pH 11 では Co_3O_4 、pH 12 では CoAl_2O_4 が生成されていると考えられる。また 200 で M-H 処理した結果、pH 9 及び pH 10 に調整した溶液からスピネル構造の生成物と

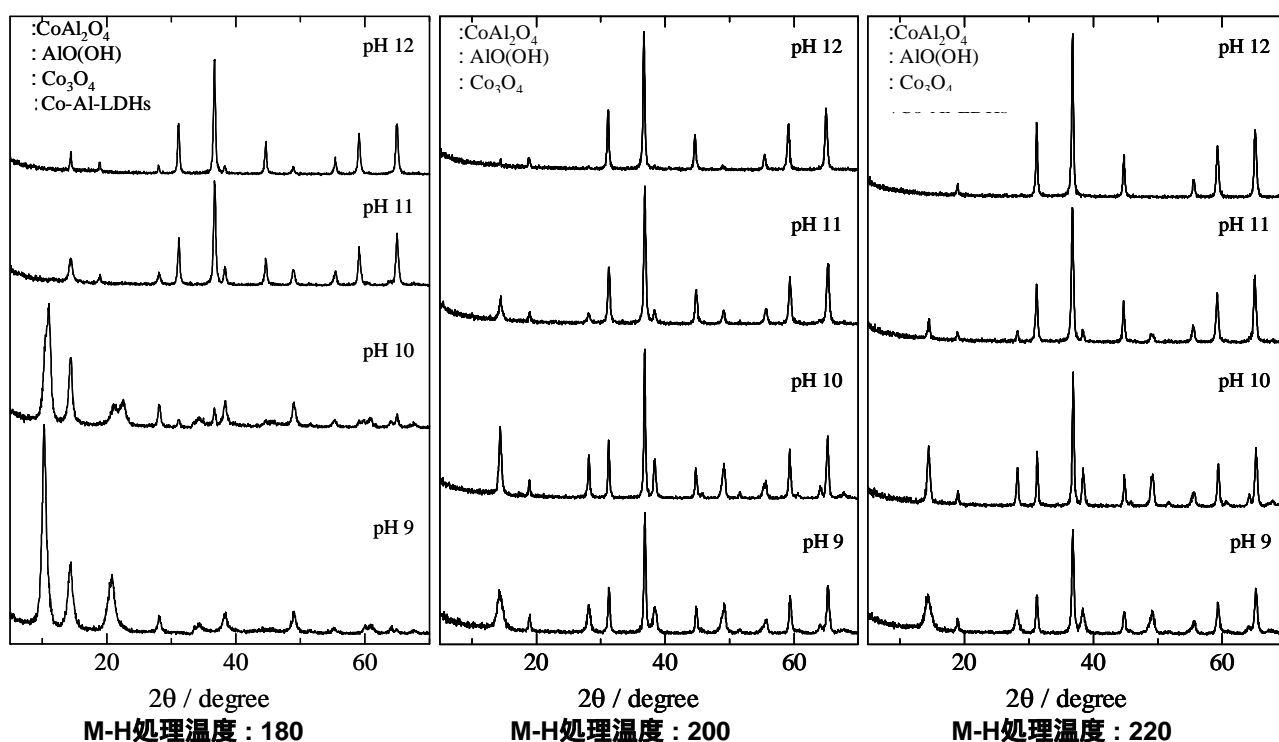


図 1 所定の pH に調整した溶液を用いて種々温度で 2 時間 M-H 処理して得た生成物の XRD 結果

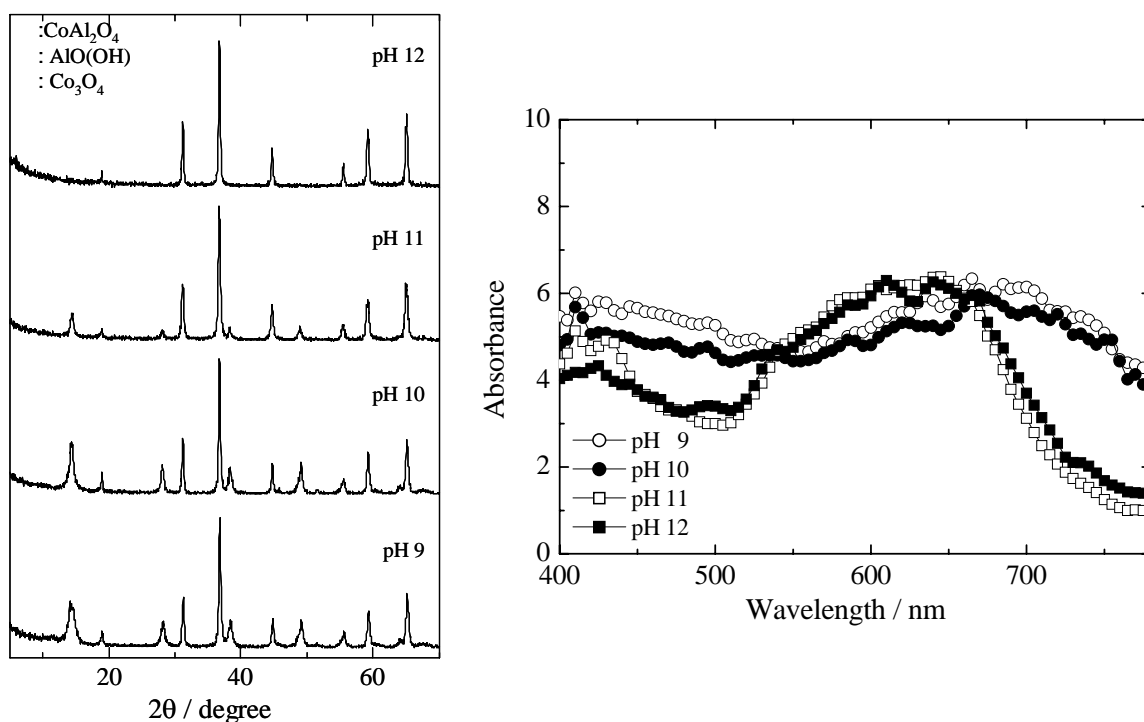


図2 所定の pH に調整した溶液を用いて 240 で M-H 処理して得た生成物の XRD 結果とその吸収スペクトル

$\text{AlO}(\text{OH})$ が生成されたものの、pH 9～11 の溶液からの生成物は Co_3O_4 と $\text{AlO}(\text{OH})$ であった。また pH 12 ではピークが小さくなったものの不純物として $\text{AlO}(\text{OH})$ が存在している事が分かる。さらに処理温度を上げ、220 で M-H 処理した結果、pH 11 及び 12 で CoAl_2O_4 スピネルの生成が確認できた。また pH 12 の溶液から得られた生成物は $\text{AlO}(\text{OH})$ のピークが消失し CoAl_2O_4 スピネルのピークのみとなった。このことから pH 12 に溶液を調整し 220 で 2 時間マイクロ波水熱合成することによって CoAl_2O_4 スピネルが得られることが分かった。この結果は Z.-Z. Chen ら^{5,6)}が報告している 240 以上で 20 時間乾燥器中にて水熱処理する通常法と比較して M-H 処理することで迅速に CoAl_2O_4 スピネルの合成が可能になったといえる。しかし得られた CoAl_2O_4 粒子は青味がかかった緑色を呈しており、コバルトブルーとして知られる青色顔料とはその発色が異なっていた。

そこでさらに処理温度をあげ、試験を行った。図2に pH を 9, 10, 11, 12 に調製した溶液を 240、2 時間 M-H 処理して得られた生成物の XRD の結果と得られた生成物の吸収スペクトルを示す。

XRD の結果から 220 M-H 処理と同様に pH 9, 10 に調整された溶液からの生成物で Co_3O_4 及び $\text{AlO}(\text{OH})$ のピークが見られるものの、pH 11 及び pH 12 で CoAl_2O_4 スピネルが生成された。吸収スペクトルの結果も XRD の結果を反映しており、pH 9, 10 からの生成物は 400～780 nm の領域で顕著なピークが見られず Co_3O_4 と同様のかなり黒味がかかった緑色を示した。一方、pH 11, 12 からの生成物は 500～700 nm の広範囲で高い吸収スペクトルを示した。中でも 530 nm、580 nm、630 nm 付近でピークを持っており Co の 4 配位を示すピークと一致する。このことから pH 11 以上で CoAl_2O_4 スピネルが生成されていると考えられる。しかし、吸収を示すピークは低くブロードであり、青味がかかった緑色であった。

3 - 2 M-H 処理時間の影響

そこでこの 500～700 nm の吸収スペクトルを高くし、 CoAl_2O_4 スピネルの青色顔料を生成すべく、先と同様に Co 濃度 0.05 M として pH 12 に調整した溶液を使用し、処理温度 240 で M-H 処理時間を変化させて合成した。図3に種々時間 M-H 処理して得られた生成物の吸収

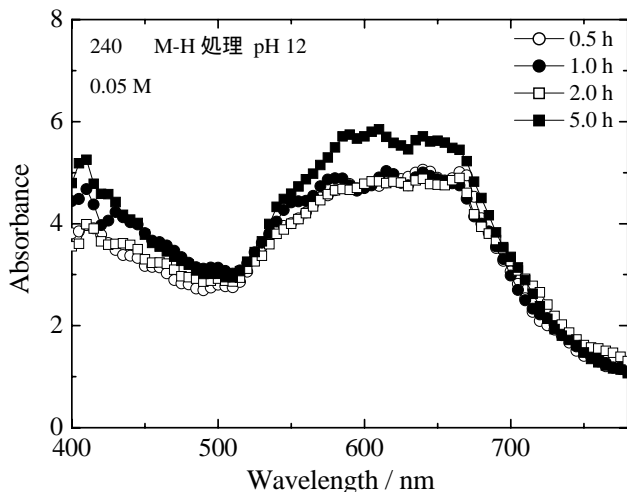


図3 pH 12 に調整した溶液を用いて 240 で所定時間 M-H 処理して得た生成物の吸収スペクトル

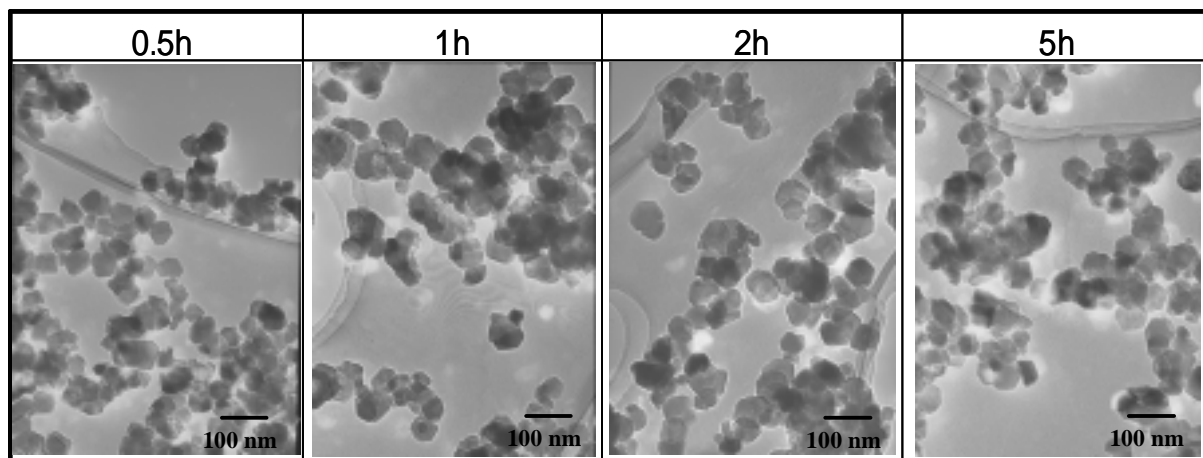
スペクトルを示す。5 時間 M-H 処理して得られた生成物で 500 ~ 700 nm の吸収ピークがやや大きくなったものの 0.5, 1, 2 時間ともにそのスペクトルにほとんど変化が見られず、どれも青みがかった緑色を呈し、M-H 処理時間は生成物の発色にほとんど影響を与えないことがわかった。

図 4 に種々時間 M-H 処理して得られた生成物の TEM 像を示す。0.5 時間から 1 時間にかけて粒子が成長し粒子径が大きくなっていることが分かる。しかしこれ以上 M-H 処理時間を長くしても粒子形状の変化はほとんどない。逆に粒子径については 1 時間から 5 時間と M-H 処理時

間を長くすることで生成物の粒子径がやや小さくなっているものもみられる。5 時間 M-H 処理した生成物の XRD の結果では小さいながら $\text{Al}(\text{OH})_3$ のピークが見られた。M-H 処理後の上澄み液中に存在する Al 及び Co イオンを ICP にて測定したところ、溶存する Al イオンは M-H 処理 1 時間を最小として徐々に増加する傾向にあった。このことから M-H 処理時間をさらに長くすると一度生成された CoAl_2O_4 スピネルが再溶解し生成が抑制される可能性がある事から長時間の M-H 処理は好ましくないと考えられる。

3 - 3 溶液濃度の影響

次に溶液調製時の Co と Al のモル比を 1 : 2 に固定しつつ、その濃度を变化させて M-H 処理して得られる生成物について検討した。このときの溶液は pH 12 に調整し、M-H 処理の条件は 240、2 時間とした。図 5 に所定濃度に調製した溶液から M-H 処理して得た生成物の吸収スペクトルを示す。500 ~ 700 nm 付近の吸収ピークは濃度が 0.025, 0.05, 0.1 M (Co 濃度) と増加するにつれて大きくなっている。特に 530 nm、580 nm、630 nm 付近の Co^{2+} の 4 配位を示すピークが濃度増加とともに大きくなっており、生成物の色も青味がかかった緑色から濃い青色へと変化した。図 6 に種々濃度の溶液から M-H 処理により得られた生成物の TEM 像を示す。0.025 M から得た生成物ではやや角張った球状粒子であるが、0.05 M では角張った粒子が目立つようになり、0.1 M からの生成物は



240 M-H処理 pH12 0.05 M
図 4 pH 12 に調整した溶液をもちいて 240 で所定時間 M-H 処理して得た生成物の TEM 像

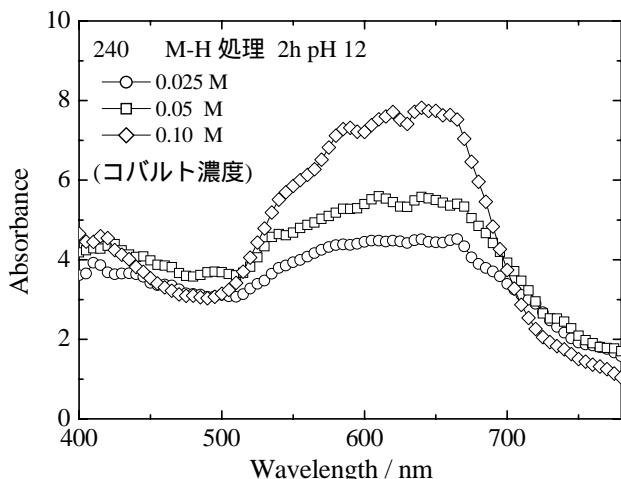


図5 pH 12 に調整した種々濃度の溶液をもちいて 240 で M-H 処理して得た生成物の吸収スペクトル

八面体形状をしていることがわかる。この八面体の形状が生成物の発色に影響していると考えられるものの、pH 12 に調整した溶液をもちいて 245 、24 時間の条件で通常水熱合成して得た生成物と比較した結果、同じ八面体構造を有し、粒子径もほとんど変わらないにもかかわらず、青みがあった緑色を示し、粒子形状の影響はほとんどないものと考えられる。現在この原因について CoAl_2O_4 スピネルの結晶構造のひずみなどが発色に影響を与えていると考えているが今後さらに検討したい。

Co 濃度 0.1 M、Al 濃度 0.2 M として pH 12 に調整した溶液をもちいて 240 、2 時間 M-H 処理して得た生成物の粒度分布測定した結果、平均粒子径 100 nm の粒度分布が狭い粒子であることが分

かった。

4.まとめ

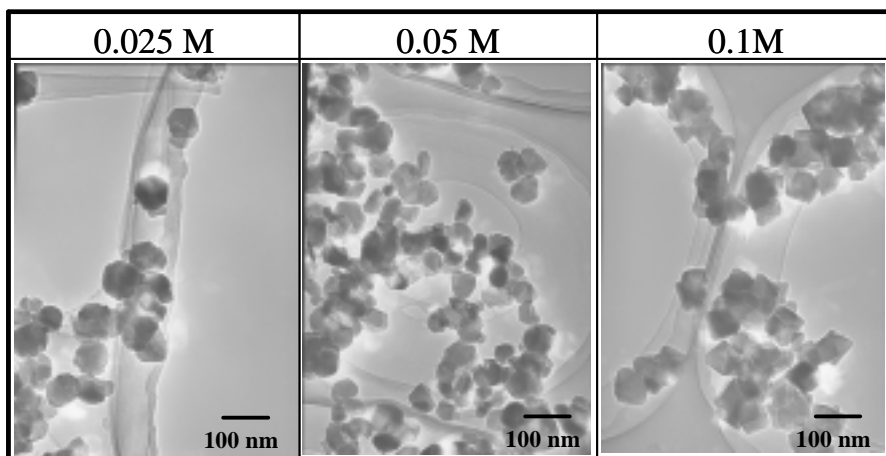
pH12 に溶液を調製し、220 以上でマイクロ波水熱合成することによって CoAl_2O_4 スピネルが得られた。しかし合成された CoAl_2O_4 スピネル粉末 M-H 処理 1 時間まで成長し、その後粒子形状やサイズはほとんど変化がなかった。また M-H 処理時間は色調には影響を与えなかった。これに対し溶液調製時の濃度が色調に大きく影響し、その濃度を高くすることによって合成した粉末はより青味を増した。

謝辞：透過型電子顕微鏡の使用等に際し、岐阜大学工学部機能材料工学科 橋場稔教授、櫻田修助教授にご指導とご協力を得ました。ここに御礼申し上げます。

また本研究は財団法人岐阜県研究開発財団が文部科学省との間に締結した都市エリア事業に関する委託契約に基づく研究開発業務の一部としておこなったものである。

【参考文献】

- 1) 伊藤征司郎編, "顔料の辞典", p213-214, 朝倉書店, (2000).
- 2) 高嶋廣夫著, "陶磁器釉の科学", p241-243, 内田老鶴圃, (1994).
- 3) P. H. Bolt, F. H. P. M. Habraken and J. W. Geus, J. Solid State Chem., p59-69, 135 (1998).



240 M-H処理 2h pH12

図6 pH 12 に調整した種々濃度の溶液をもちいて 240 で M-H 処理して得た生成物の TEM 像

- 4) S. Chemlal, A. Larbot, M. Persin, J. Sarrazin, M. Sghyar and M. Rafiq, *Mater. Res. Bull.*, p2515-2523, 35 (2000).
- 5) Z.-Z. Chen, E.-W. Shi, W.-J. Li, Y.-Q. Zheng, N.-C. Wu, and W.-Z. Zhong,, *J. Am. Ceram. Soc.*, p2949-2955, 85 (2002).
- 6) Z.-Z. Chen, E.-W. Shi, Y.-Q. Zheng, B. Xiao, and J.-Y. Zhuang, *J. Am. Ceram. Soc.*, p1058-1060, 86 (2003).
- 7) Z.-Z. Chen, E.-W. Shi, W.-J. Li, Y.-Q. Zheng, J.-Y. Zhuang, B. Xiao and W.-Z. Zhong,, *Mater. Sci. Engin.*, p217-223, B107 (2004).
- 8) W.-S. Cho and M. Kakihana, *J. Alloys Compounds*, p87-90, 287 (1999).
- 9) D. M. A. Melo, J. D. Cunha, J. D. G. Fernandes, M. I. Bernardi, M. A. F. Melo and A. E. Martinelli, *Mater. Res. Bull.*, p1559-1564, 38 (2003).
- 10) W. J. Dawson, *Am. Ceram. Soc. Bull.*, p1673-1678, 67 (1988).
- 11) H. Katsuki, A. Shiraishi, S. Komarneni, W. J. Moon, S. Toh and K. Kaneko, *J. Ceram. Soc. Jpn.*, 112, 384-387, (2004).

ガラス粉体の粉碎・分級による微細化試験

横山久範・岩田芳幸・安達直己・尾畑成造

Grinding and classifying test of glass powders

Hisanori YOKOYAMA, Yoshiyuki IWATA, Naoki ADACHI and Seizo OBATA

従来の各種無機粉体をインクジェット印刷に利用するには、微細な粉体に粉碎・分級する必要がある。今回、陶磁器用だけでなく絶縁材料やシール材料であるガラス粉体を用い、粉碎・分級による微細化試験を行った。その結果、湿式粉碎では湿式ジェットミルが極めて短時間に微粉碎することができた。また、分級方法では遠心分離方法により、 $1\mu\text{m}$ 以下のみの粉体に分級することができた。

1. 緒言

インクジェット印刷は、装置がシンプルで多色化が容易なため、低価格のプリンターとしてパーソナル分野に普及してきた。特にプリンターの高精細化・高速化とデジカメやインターネットなどデジタルメディアの普及により、カラー写真や年賀状などのプリンターとして広く利用されるに至っている。また、インクジェット印刷はマスキングや真空蒸着などの複雑な工程の必要がなく、大面積の印刷プロセスに適していることから、有機ELの印刷¹⁾、液晶ディスプレイ用カラーフィルターの印刷²⁾など新規分野への展開も進んでいる。

一方、顔料などの粉体をインクジェット印刷に利用する場合、沈降安定性を確保するためナノサイズの粒子径の粉体が用いられている³⁾。これらの粉体はほとんどが合成による微細粉体である。しかし、従来の粉体を粉碎及び分級することにより、インクジェット印刷に使用が可能となれば、その応用範囲の拡大が期待できる。

そこで、インクジェット印刷インク用の粉体を粉碎及び分級で作製するため、粉碎方法や分級方法を検討した。粉体には陶磁器用ばかりでなく絶縁材料やシール材料としても利用可能なガラス粉体を用いた。

2. 実験方法

2-1 原料

ガラス原料には有鉛フリット Ceramic Colors No.150(カネ水水野絵具製造所製:平均粒子径 $2.8\mu\text{m}$)と無鉛フリット M-802(日本陶磁器原料製:

平均粒子径 $58\mu\text{m}$)の2種類を用いた。

2-2 乾式粉碎

無鉛フリットを原料として、粉碎方法の異なる2種類のジェットミルで乾式粉碎を行った。用いたジェットミルは、流動型ジェットミル AFG-100(ホソカワミクロン製)と循環気流型ジェットミル STJ-100/CP-04(セイシン企業)である。流動型ジェットミルによる粉碎は3本のノズルから噴射される粉体同士を衝突させて粉碎を行う方法で、 1.9mm と 2.5mm のノズルを用いてノズル径の影響を検討した。また、本装置には上部に回転式分級機が組み合わされており、その回転数による分級方法についても検討した。一方、循環気流型ジェットミルは循環する気流内で壁及び粒子同士を衝突させて粉碎する方法であり、空気圧 700MPa にて6回の粉碎を行った。

2-3 湿式粉碎

有鉛フリットを原料として、ボールミル、ビーズミル、振動ミル、湿式ジェットミルの4種類の方法で粉碎試験を行った。溶媒には粉体が溶解しにくいエタノールを用いた。ボールミル粉碎では、 5mm 及び 10mm のアルミナ製玉石とジルコニア製玉石を用い、7日間粉碎を行った。ビーズミル粉碎は、SC50/16(三井鉱山製)によりジルコニア製玉石 0.2mm 、回転数 5000rpm により5hの粉碎を行った。また、振動ミルはV6-20(日陶科学製)により 5mm ジルコニア製玉石で23h粉碎を行った。以上の粉碎はスラリー濃度 $50\text{wt}\%$ にて行った。湿式ジェットミルはスラリーを高圧で衝突させることにより粉碎する方法であり、アルティ

マイザーHJP-25005(スギノマシン製)を用い噴射圧245MPaにて20回粉砕を行った。ここで1回の粉砕にかかる時間は1分間として見積もった。また、スラリー濃度の影響を調べるため、濃度15,30,50wt%にて試験した。

2 - 4 湿式分級

湿式ジェットミルにより20回粉砕した15wt%スラリーを沈降分離、遠心分離、濾過の方法で分級を検討した。遠心分離は高速遠心分離装置H-2000B(国産遠心器製)を用い、回転数1000及び2000rpmにて20分の条件で分離した。

2 - 5 表面処理

ガラス粉体は水に溶出するため、インクジェット印刷用インクには非水系溶媒を用いる必要がある。そのため、粉体が非水系溶媒に濡れやすいように疎水性に表面処理を施した。表面処理剤としては粉体のステアリン酸(試薬特級:カライクス)エマルジョンのステアリン酸(ノボル LU-6418:カバコ)シランカップリング剤(SZ6070:東レ・ダウ・コング・シリコン)ガラス撥水剤(Si系、F系)を検討した。表面処理は、湿式ジェットミルにより20回粉砕したスラリーを2日間ボールミル混合する方法で行った。また、スラリー濃度30wt%において湿式ジェットミルでの粉砕中に表面処理剤を添加し、粉砕と表面処理の同時処理を検討した。

2 - 6 粉体評価

粉砕した各粉体は、レーザー散乱式粒度分布測定機(SALD-2000J:島津製作所製)により測定した。また、表面処理した粉体の疎水性は、ガラス基板にスラリーをスピコートし、その粉体と水の濡れ性を接触角(DM300:協和界面科学製)により評価した。

3 . 結果及び考察

3 - 1 乾式粉砕

循環気流型ジェットミルでは粉砕回数が増えるほど粉砕後の平均粒子径は小さくなった。一方、流動型ジェットミルの場合、噴出するノズル径を1.9mmと2.5mmと比較したところ、1.9mmの方が平均粒子径は小さくなった。

図1に循環気流型ミルによる6回粉砕後の粉体とノズル径1.9mmによる粉砕後の粉体の粒度分布を示す。今回の粉砕試験では、流動型ミルの方が粒子径は小さくなり、微細な粉砕物を得ることができた。これは、流動型ミルには回転型分級装

置が付属しており、微粒粉体のみが分級されたためと思われる。また、分級装置では回転数が大きいほど得られる粉体の粒子径は小さくなった。

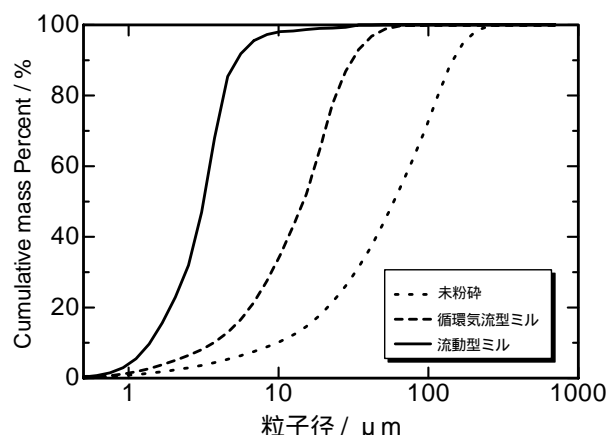


図1 乾式粉砕による粒度分布

3 - 2 湿式粉砕

図2にボールミル粉砕における玉石と粉砕時間の影響を示す。粉砕時間が96h(4日)の場合、ジルコニア製玉石に比べアルミナ玉石の方が平均粒子径は小さくなったが、168h(7日)ではジルコニア製玉石の方が粒子径が小さくなった。また、玉石径による影響は、96hでは小さな径の方が粉砕効果が大きかったが、最終的にはどちらの径でも同程度の平均粒子径となった。

図3に各種粉砕方法における粉砕時間と平均粒子径の関係を示す。いずれの粉砕方法でも粉砕時間が長くなるほど平均粒子径は小さくなった。平均粒子径が1μm程度になるまでの粉砕時間を比較すると、短い順に湿式ジェットミル、振動ミル、ボールミルとなり、湿式ジェットミルでは20分程度で7日間ボールミル粉砕と同程度の平均粒子径となった。一方、ピーズミルでは5h粉砕では平均粒子径が1μm程度まで粉砕できなかった。

図4左に7日間ボールミル粉砕した粉体と右に20分湿式ジェットミル粉砕した粉体のSEM観察像を示す。ボールミル粉砕では原料粉体が破碎したままでほぼ同じ形状をしているのに対し、湿式ジェットミルでは粉砕時に粒子の角部分が破碎し、丸みを帯びた形状になった。両粉体の粒子径分布では、ボールミル粉砕粉体は粒子径分布が狭いのにに対し、湿式ジェットミル粉砕粉体は広い分布となった。湿式ジェットミルの場合、粒子が衝突によりその角が破碎して、比較的大きな球状の粉体と角部の微細な粉体になるためと思われる。

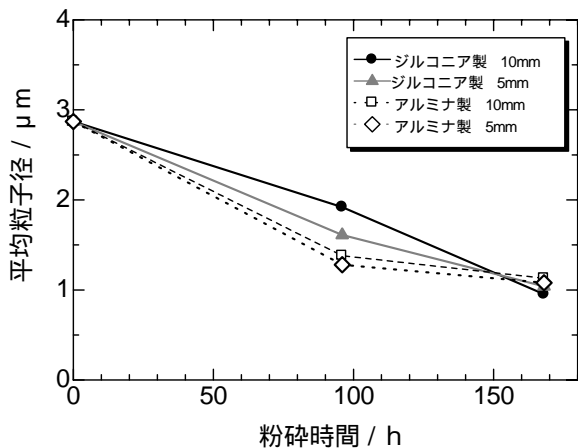


図2 ボールミル粉碎における玉石と粉碎時間の影響

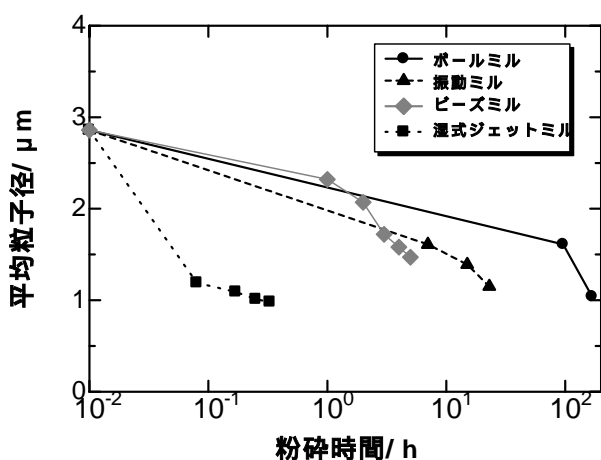


図3 湿式粉碎における粉碎時間と平均粒子径の関係

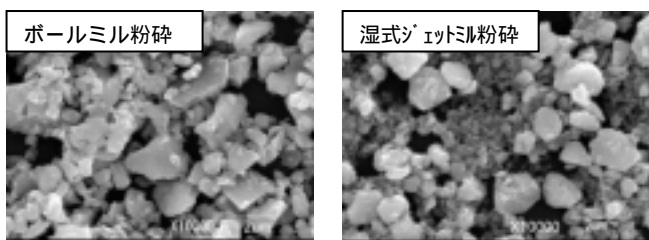


図4 湿式粉碎後の粉体形状

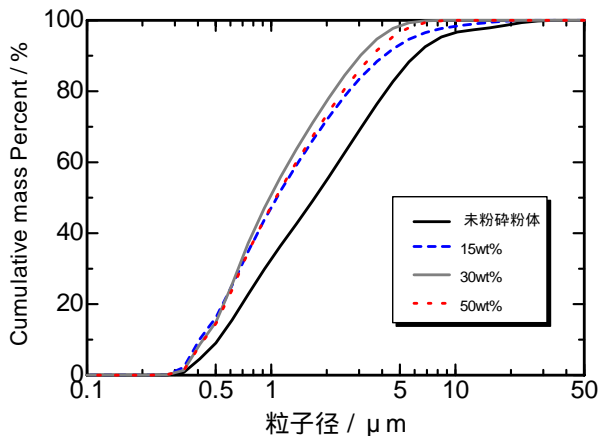


図5 湿式ジェットミル粉碎でのスラリー濃度の影響

図5に20回湿式ジェットミル粉碎した粉体のスラリー濃度の影響を示す。スラリー濃度 15wt% の場合、5 μm 以上の粗粉体が残存しているのに対し、30wt%、50wt% ではそうした粉体が少なくなった。スラリー濃度が高くなるほど粒子の衝突頻度が高くなり、粉碎が進行すると予測したが、最も粒子径が小さくなったのは30wt% スラリーであった。これにより、50wt% スラリーの粒子径が大きくなったのは、高濃度になることで粒子間距離が小さくなり、衝突時のエネルギーが分散したためではないかと考える。

3 - 3 湿式分級

1 μm のフィルターを用いた濾過分級試験を実施した結果、スラリー中の粒子が全てフィルターに捕獲されてしまい、分級することができなかった。また、沈降分級では1週間の放置で数 μm 以下の粉体のみに分級できた。一方、遠心分離は短時間で分級が可能であり、効率良く微細な粉体を得ることができた。

図6に湿式ジェットミル粉碎粉体を遠心分離した粉体の粒子径分布を示す。粉碎後の平均粒子径は約 1 μm であり、回転数 1000rpm、20 分の遠心分離でほぼ平均粒子径以下の粉体のみに分級できた。また、回転数を 2000rpm に高くするとさらに微細な粉体のみが分級でき、平均粒子径は 100nm 以下となった。しかし、収率が極めて低く、ほんのわずかな量しか得ることができなかった。

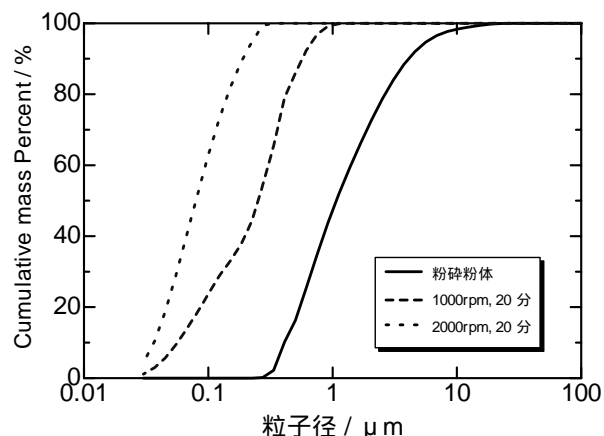


図6 遠心分離分級条件による粒度分布

3 - 4 表面処理

通常、粉体に表面処理を施す場合、溶剤中に粉体と表面処理剤を添加し、加熱中で加水分解等を利用して行う⁴⁾。しかし、表面処理、粉体の回収、焼成などの複雑な工程が必要なため、今回は簡易

的にボールミル混合による表面処理の可能性を検討した。合わせて、粉碎と同時に表面処理を施すことができないかを検討した。

表1に各種表面処理剤の添加量と処理した粉体と水との接触角を示す。いずれの表面処理粉体も処理しない粉体に比べ、高い接触角となった。特に、接触角が高くなったのはシランカップリング剤とエマルジョンのステアリン酸であり、効果が少なかったのは粉体のステアリン酸であった。ガラス系撥水剤は表面処理による効果は認められたが、高い接触角には至らなかった。

図7にシランカップリング剤とエマルジョンのステアリン酸の添加量と接触角の関係を示す。シランカップリング剤では、添加量が1.1wt%までは急激に接触角が増加したが、それ以上の添加ではわずかな増加になった。一方、エマルジョンのステアリン酸の場合、添加量が多いほど接触角は高くなった。

表2に湿式ジェットミル粉碎時に表面処理剤を添加し、同時処理を行った粉体の接触角を示す。接触角は粉体のステアリン酸、エマルジョンのステアリン酸、シランカップリング剤の順に高くなった。また、表1に示す粉碎後に表面処理した場合と比較すると、いずれの処理方法でも同時処理の接触角がわずかに小さくなった。今回最も表面処理効果が大きかったのは、シランカップリング剤による処理方法で、疎水性の高い粉体を得ることができた。

表1 表面処理剤の添加量と接触角

試験体	添加量	接触角
処理なし	-	16.7
ステアリン酸(粉体)	0.07	29.9
	0.17	35.7
ステアリン酸(エマルジョン)	1.7	72.3
	3.5	98.2
シランカップリング剤	0.3	70.0
	1.1	128.5
	1.8	132.7
	3.5	139.6
シリコン撥水剤	3.3	48.3
フッ素撥水剤	3.5	53.9

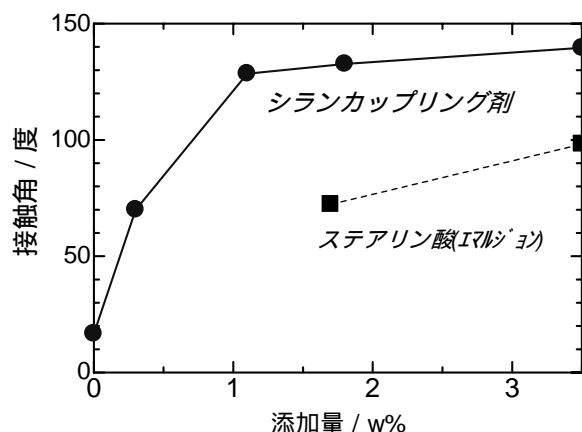


図7 表面処理剤の添加量と接触角の関係

表2 粉碎と表面処理の同時処理による接触角

試験体	添加量	接触角
ステアリン酸(粉体)	0.07	48.6
ステアリン酸(エマルジョン)	1.7	68.1
シランカップリング剤	1.1	130.4

4.まとめ

ガラス粉体を粉碎・分級・表面処理を行った結果、以下のことが分かった。

- 1) 粉碎方法では粗粉碎には乾式の流動型ジェットミルが適しており、微粉碎では湿式ジェットミルにより短時間粉碎が可能であった。
- 2) 分級方法として、遠心分離方法が微細な分級に適していた。
- 3) シランカップリング剤による表面処理により疎水性の粉体を作製することができた。

【謝辞】本研究は都市エリア産学官推進事業の一課題として行った研究です。

【参考文献】

- 1) T. Shimoda., K.Morii, S. Seki and H. Kiguchi, *MRS BULLETIN*, 11, 821-827(2003)
- 2) 田中直樹, 日経マイクロデバイス, 10, 46-51(2006)特許第 3283249 号
- 3) 甘利武司監修, "インクジェットプリンター技術と材料", シーエムシー出版(1998)
- 4) 「セラミックスの製造プロセス」, 日本セラミックス協会, p135-142(1988)

無機顔料の粉碎と分級が発色に及ぼす影響

安達直己・尾畑成造・岩田芳幸・柘植英明・横山久範

Influence of grinding and classifying process on coloration of inorganic pigment

Naoki ADACHI, Seizo OBATA, Yoshiyuki IWATA, Hideaki TUGE and Hisanori YOKOYAMA

陶磁器やタイルなどへの加飾が可能なインクジェット印刷技術において、加飾精度の向上にはシステムのみならず微細な粒子を用いたインクの調製が重要である。そこで、インクジェット印刷に適したインクを調製するための前段階として、無機顔料粒子の粉碎と分級について検討した。本研究では、無機顔料には古代呉須を用いてボールミル、振動ミル、湿式ジェットミルの粉碎効果を検討した。その結果、湿式ジェットミルは非常に短時間で効率よく $1\ \mu\text{m}$ 以下の平均粒径まで粉碎可能であった。また、振動ミルはボールミリングと比較して短時間で微細に粉碎できることが明らかとなった。粗大粒子の除去を目的とした自然沈降による分級においては、粗大な粒子が沈殿するだけでなく、比重の大きい複合酸化物が優先的に沈殿するために、化学的な組成のずれが生じ、その結果、未処理と異なる色を示すことが明らかとなった。

1. 緒言

従来、陶磁器等のセラミックス製品の加飾は、一般に無機顔料やそれらを含む絵具を筆などで手書きする方法やパット印刷を利用する方法で行われる。しかしながら手書きによる加飾は、セラミックス製品に同一模様を描くことが困難である上、高い技術を必要とする。また、パット印刷は多色印刷する方法として広く普及されているが、製版が複雑であることや数色以上の印刷が困難である。そこで、我々はこれまで多品種少量生産に適し、同一模様の加飾が可能なインクジェットプリンターシステムを利用した加飾技術の開発に着手してきた。インクジェット印刷の加飾精度を向上させるには、機械的なプリンターシステムの向上のみならず、使用するインクの性能を向上する必要がある。

特に、インクジェット印刷においては目詰まりが大きな問題となっており、この問題を解決するためには微細な顔料粒子でさらに分散が安定なインクを調製することが望まれる。特に、無機系顔料インクの粒子は有機系の顔料と異なり、比重が大きいと沈降しやすく、また、市販されている無機顔料は粒径が大きい。そのため無機顔料粒子を粉碎・分級することで、微粒化する必要がある。

近年、ナノ粒子の分散を可能とする懸濁液の調製方法として湿式ジェットミル¹⁻³⁾が注目を浴び

ている。湿式ジェットミルは、連続的に対向から超高圧で懸濁液を噴射させ衝突させることで粒子同士をぶつけ合い粉碎・分散させる方法¹⁾である。その特徴として、粒子同士の衝突によるエネルギーで粉碎・分散を行うために、ボールミリング等で用いるようなメディア（玉石等）がないため、粉碎・分散工程においてコンタミネーションが極力抑えられることや処理能力が高いことから非常に短時間で懸濁液の調製が可能であることなどがあげられる。また、Omuraら⁴⁾は湿式ジェットミルでアルミナ泥漿を調製するとボールミリングと比較して低い粘度で安定な泥漿が調製可能で、さらに緻密な成形体が作製できることを報告している。

そこで、本研究ではインクジェット印刷を視野に入れた無機顔料インクの調製のために、種々の粉碎方法を行うことで粉碎効果を検討するとともに、自然沈降により無機顔料粒子を分級することによる微細化を検討し、実際にインクとして使用した際の発色等の影響を検討した。

2. 実験方法

無機顔料には、青色の下絵具として用いられている古代呉須(平均粒径 $2.33\ \mu\text{m}$ 、日陶産業製)を使用した。粉碎方法は湿式法で行い、ボールミリング、振動ミル、湿式ジェットミルの3種類の

方法にて行った。ボールミリングは、ポリプロピレン製の容器に直径5mmのジルコニア製玉石を用いて行った。振動ミル(小型振動ミル、日陶科学製)は、テフロン製の容器に直径5mmのジルコニア製玉石を用いて1分間に1450回振動する条件で行った。また、湿式ジェットミル(アルティマイザー HJP-25005、スギノマシン製)は、250MPaの高圧で懸濁液を噴射し衝突させて処理した。このとき、1分間に1回懸濁液が循環するように設定し、1回循環することを1パスとし、最大で40パス行った。いずれも溶媒として脱イオン水を用いて、呉須の濃度が33wt%となるように調製した。

呉須粒子の粉碎効率は、経時変化もしくはパス回数における粒度分布を測定することで評価した。粒度分布の測定は、レーザー光散乱回折式(SALD-2000J、島津製作所製)を用い測定した。また、粒径の違いによる色の変化を確認するために33wt%の呉須インクを調製し、タイル上に筆で塗布した後、石灰-亜鉛釉をかけて電気炉にて1250℃で焼成し、分光光度計(CMS-500、村上色彩技術研究所製)を用いてL*a*b*表色系で比較検討した。L*は明度を示し、色相と彩度を示す色度はa*とb*で示され、+a*は赤方向、-a*は緑方向、+b*は黄方向、-b*は青方向を示す。

粉碎した呉須は、粗大粒子等を除去するために分級を行った。分級方法は、比色管中で2日間自然沈降することで行なった。分級により沈殿した粒子と懸濁液中の粒子をそれぞれ取り分けた後、110℃で乾燥させて粒子を得た。それぞれの粒子は比較のため、粒度分布の測定、粉体比重測定、定量分析を行った。比重測定は、ヘリウムピクノメーター(AccuPyc1330、マイクロメリテックス製)にて測定し、定量分析は蛍光X線(ZSX100e、リガク製)にて測定した。それぞれの粒子の色の違いを比較するために、33wt%の呉須インクを調製し、タイル上に筆で塗布した後、石灰-亜鉛釉をかけて1250℃で焼成し、分光光度計を用いて同様に比較検討した。

3. 結果及び考察

種々の粉碎方法で調製した呉須粒子の平均粒径(D_{50})とその標準偏差を図1と図2にそれぞれ示す。図1からボールミリングと振動ミルで粉碎

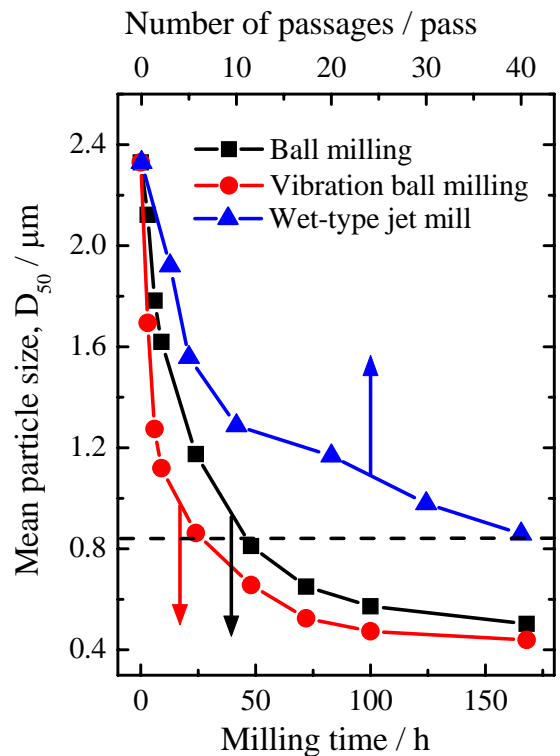


図1 各種粉碎方法における粉碎時間およびパス回数と平均粒径の関係

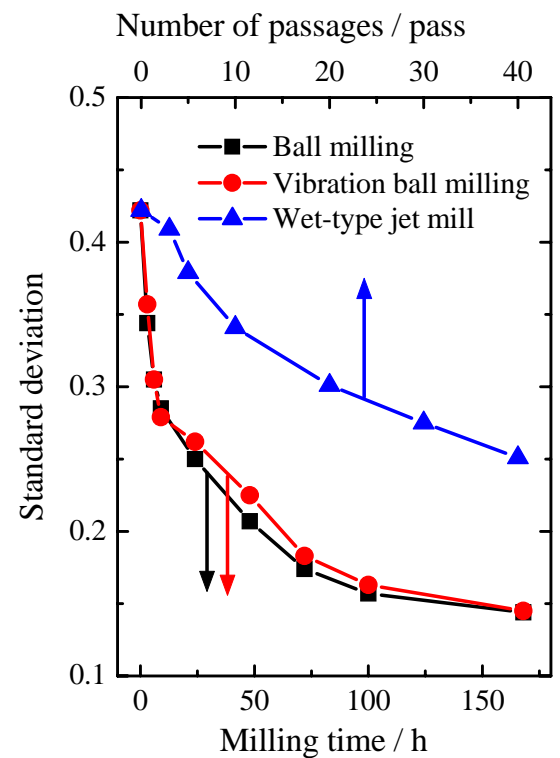


図2 各種粉碎方法における粉碎時間およびパス回数と平均粒径から算出した標準偏差の関係

表 1 粒径の違いによる色の変化

平均粒径 (mm)	L*	a*	b*
2.3	36.3	-2.3	-14.8
1.5	30.6	-2.4	-14.1
1.2	34.9	-2.5	-14.2
0.8	33.2	-2.8	-14.6
0.5	31.4	-3.0	-15.3

効果を比較した場合、振動ミルのほうがいずれのミリング時間においても平均粒径が小さく粉砕効果が高いことがわかった。特に、平均粒径が約 0.8 μm まで粉砕した場合、ボールミリングは 48 時間必要とするのに対して振動ミルは 24 時間で粉砕可能であった。このことから粉砕効果はボールミリングよりも振動ミルのほうが高いことがわかった。また、そのときの標準偏差を比較した場合、図 2 で示すようにボールミリングと振動ミルはほぼ同じような挙動を示した。しかし、平均粒径 0.8 μm での標準偏差を比較した場合、すなわちボールミリングを 48 時間行ったときと振動ミルを 24 時間行った場合とを比較すると、標準偏差はボールミリングの方が小さいことがわかる。このことから、ボールミリングのほうが振動ミルよりも粉砕に時間がかかるが、粒径のばらつきが少ないことが明らかとなった。また、湿式ジェットミルに関しては図 1 から平均粒径を約 0.8 μm まで粉砕するのに 40 パス (40 分間) 程度で達成することができ、さらに図 2 からそのばらつきは振動ミルとほぼ同様の値を示した。しかし、振動ミルで 0.5 μm 程度まで粉砕した懸濁液を用いて同様に湿式ジェットミルを行ったところ、平均粒径および標準偏差は変わらず、それ以上の粉砕効果は得られなかった。このことから、微粒子になるにしたがい粒子同士が、衝突するエネルギーは小さくなるうえ粒子の凝集力は大きくなることから、一定の粉砕限界が存在すると考えられる。このことから、湿式ジェットミルは平均粒径を 1 μm 程度に粉砕するには短時間で達成することが可能であり、効果的な粉砕方法であることがわかった。

次にこの粉砕の効果が発色に与える影響を検討すべく各粒径における色の変化を検討した。呉須の濃度が 33 wt% になるように調製し、振動ミルで粉砕をしながら懸濁液を分取し、種々の粒径とそのときの色の変化を比較した。その結果を表 1 に示す。いずれの粒径においても L*、a*、b* はほとんど変わらず、粒径が変化しても発色にはあまり影響がないことがわかった。

次に、自然沈降により振動ミルで調製した懸濁液を分級し、沈降堆積部分と懸濁液部分を分取しそれぞれを乾燥させて粒子を得た。懸濁液部分の粒子を微粉とし、沈降堆積部分の粒子を沈殿物とした。得られた沈殿物はこげ茶色を呈しており、他の粒子と明らかに異なる色を示した。そこで、これら粒子の性質の違いを種々方法で比較検討した。表 2 には、未処理と振動ミルで粉砕した粉砕後、微粉、沈殿物の粒子の平均粒径とそのときの標準偏差、比重および主要成分の定量分析の結果を示す。この定量分析の結果は、各元素がそれぞれ代表的な単一の酸化物であったと仮定したときに存在する割合を示す。平均粒径および標準偏差に関しては、沈殿物には、粗大な粒子が多いため微粉と比較して粒径が大きく、標準偏差も大きくなった。また、比重に関しても差があり、沈殿物のほうが微粉および未処理、粉砕後よりも大きい値を示した。このときの主成分を比較すると沈殿物は、未処理などと比較して SiO₂、Al₂O₃ の割合が少なく、その一方で Fe₂O₃、MnO、Cr₂O₃ が多く含まれていることが明らかとなった。一般に

表 2 各粒子の平均粒径、比重および化学組成

	未処理	粉砕後	微粉	沈殿物
平均粒径 (mm)	2.33	0.48	0.46	0.65
標準偏差 (-)	0.42	0.14	0.11	0.25
比重 (-)	3.00	3.01	2.93	3.09
SiO ₂ (%)	54.1	53.7	53.6	44.2
Al ₂ O ₃ (%)	21.5	21.3	21.4	18.6
Fe ₂ O ₃ (%)	5.05	5.00	4.39	10.8
Co ₂ O ₃ (%)	13.1	13.0	13.0	12.1
MnO (%)	3.21	3.18	3.07	5.53
Cr ₂ O ₃ (%)	2.61	2.59	2.42	5.53
ZrO ₂ (%)	0.02	0.98	0.86	1.17

表3 各粒子の色の比較

	L*	a*	b*
未処理	36.3	-2.3	-14.8
粉碎後	31.4	-3.0	-15.3
微粉	17.6	1.6	-19.2
沈殿物	10.6	0.8	7.1

Fe₂O₃ は赤色を、MnO は黒色や褐色、Cr₂O₃ は暗草色を呈することが知られている⁴⁾。これら成分が沈殿物に多く含まれる原因として、比重の違いが考えられる。ストークスの関係から沈降速度は、粒子の大きさと比重に依存する。したがって、粗大粒子を除去する際に、比重の大きい複合酸化物が優先的に沈殿したと考えられる。この結果、沈殿物にはFe や Mn、Cr の成分が未処理などと比較して2倍程度増加したため、こげ茶色を呈したと考えられる。

また、これら粒子を用いて33 wt%の懸濁液を調製し、タイル上に書き釉薬を塗布し、1250℃で焼成したときの色の違いを比較検討した。その結果を表3に示す。未処理や粉碎後と比較して微粉はa*が大きくb*が小さい値を示した。また、沈殿物は、それらと比較してb*の値が大きく異なった。このことから微粉は、未処理や粉碎後と比較して

青が強く出ており、また、沈殿物は黄色が強い茶黒色を呈した。これらの違いは、Fe₂O₃、MnO、Cr₂O₃の割合が大きく影響していると考えられる。微粉は、未処理などと比較して比重の大きい複合酸化物の割合が減ったためにコバルトの青色が強調され、その逆に沈殿物にはそれらの成分が増えたために、黄色が強い茶黒色のような色となったと考えられる。

4.まとめ

無機顔料である古代呉須を用いてボールミリング、振動ミル、湿式ジェットミルの粉碎効果を検討した。その結果、湿式ジェットミルは非常に短時間で効率よくある程度(0.8 μm)の粒径まで粉碎可能であるが、ボールミリングや振動ミルほど微細に粉碎することが難しいことがわかった。また、振動ミルはボールミリングと比較して短時間で微細に粉碎できることが明らかとなった。

粗大粒子の除去を目的とした自然沈降による分級においては、粗大な粒子が沈殿するだけでなく、比較的比重の重い成分が優先的に沈殿するためにもとの未処理と異なる色を示すことが明らかとなった。

【参考文献】

- 1) 田中 邦明ら, *化学工学論文集*, **29**, 740-747 (2003)
- 2) 田中 邦明ら, *化学工学論文集*, **30**, 325-331 (2004)
- 3) 堀田 裕司ら, *セラミックス*, **42**, 93-97 (2007)
- 4) N. Omura *et al.*, *J. Am. Ceram. Soc.*, **89**, 2738-2743 (2006)
- 5) 釉とその顔料, 素木 洋一著, 第4章 (1968)

アルミナのマイクロ波 (2.45 GHz) 発熱特性に与える 不純物の影響

立石賢司・茨木靖浩・伊藤正剛・水野正敏

Effect of impurities on microwave (2.45GHz) heating characteristics of alumina

Kenji TATEISHI, Yasuhiro IBARAKI, Sadataka ITO and Masatoshi MIZUNO

高純度アルミナに Na_2CO_3 、 Fe_2O_3 、 $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ を種々の濃度で混合した焼結体を作製し、マイクロ波照射によるアルミナの発熱特性に与える不純物の影響について調べた。Fe および Mg 成分を混合した焼結体からはマイクロ波照射による自己発熱は観測されなかった。これらに対し、Na 成分を混合した焼結体では自己発熱が観測され、 $200 < T < 400$ の温度域での発熱速度は Na 成分の混合量に対して直線的に増加した。またアルミナと β -アルミナからなる複合体を作製し、焼成温度の違いがマイクロ波発熱特性に与える影響について検討した。アルミナと β -アルミナからなる複合体のマイクロ波発熱特性には焼成温度依存性が観測され、発熱特性には粉末の特性と焼結状態の両方が影響を与えることがわかった。

1. 緒言

電気・ガスによるセラミックスの焼成プロセスでは、被焼成体は試料表面から内部への熱伝導により加熱される。そのため、急速に加熱すると熱応力により割れが発生する。一方、マイクロ波を用いたセラミックスの焼成プロセスでは、被焼成体自体が発熱するため、熱伝導によらずに加熱できる。マイクロ波による焼成の問題点として、表面からの放熱が挙げられる。表面から放熱により、試料内に温度差が生じると、温度の高い部分は低い部分に比べて誘電加熱による発熱が増加する。この温度差が熱伝導によって緩和しきれない場合には、熱応力により割れが発生する¹⁾。我々は、被焼成体とほぼ等価な発熱特性を有する材料を発熱壁^{2), 3)}として用いることで放熱による問題を緩和し、均質な大型アルミナの焼成に成功した⁴⁾。これまで、アルミナおよび陶磁器に適した発熱壁は実用化されているが、その他のセラミックスに対する発熱壁は開発されていない。マイクロ波焼成技術を他のセラミックス材料に応用するためには、目的とする被焼成体にあわせて発熱壁の発熱特性を制御する必要がある。

現在、発熱壁の一つとしてアルミナ - ムライト系材料を用いているが、本研究ではマイクロ波照射による発熱要因を調べるためにアルミナについ

て検討した。不純物の多いアルミナがよりマイクロ波を吸収し易いことは知られている⁵⁾。しかしながら、不純物がアルミナのマイクロ波発熱特性にどのような影響を与えるかについては不明な点も多い。そこで本研究では、 Na_2O 、 Fe_2O_3 、 MgO 等アルミナ原料中に含まれる不純物とマイクロ波照射による発熱特性との関連について検討した。

2. 実験方法

高純度アルミナ粉末として AKP-20 (純度 99.99%、住友化学製) を用いた。AKP-20 に対して Na_2O 、 Fe_2O_3 、 MgO としての換算値がそれぞれ 0.5mass% となるように Na_2CO_3 (純度 99.5%、純正化学製)、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ (純度 99.9%、高純度化学製)、 $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (純度 99.9%、高純度化学製) を添加混合し、バインダーとして PVA (polyvinylalcohol) を用いて顆粒にした後、一軸加圧 (2.7 kgf/cm^2) により $30\text{mm}\phi$ - 10mm t のペレットを作製した。また同様にして、 Na_2O が Al_2O_3 に対して 0.5mass% となるように、アルミナと β -アルミナ ($\text{Na}_2\text{O} \cdot 11\text{Al}_2\text{O}_3$ 、高純度化学製) からなる複合体を作製した。マイクロ波照射による発熱特性の測定には、予め電気炉により目的温度で 2 時間焼結させた試料を用いた。昇温速度は $100 \text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ とした。発熱試験は 1.5 kW のマグネ

トロン発振機が4台の計6kWの出力を有するマイクロ波焼成炉（美濃窯業製）中に行った。

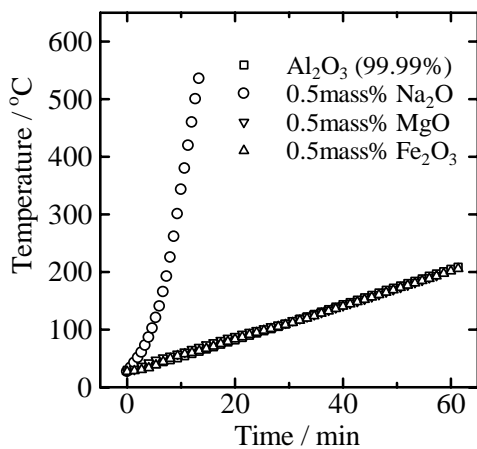


図1 Na, Fe, Mg 成分を混合したアルミナ焼結体（1600 ）のマイクロ波発熱特性

3. 結果及び考察

図1は1600 で電気炉焼成した試料表面の温度をマイクロ波照射時間に対してプロットした図である。Mg および Fe 成分を混合したアルミナの発熱速度は高純度アルミナの発熱速度にほぼ等しく、Mg および Fe 成分は0.5mass%以下の濃度においてアルミナの発熱速度に影響を与えないことが分かった。これらに対し、Na 成分を混合したアルミナでは急激な発熱が観測された。マイクロ波照射中の炉内の雰囲気の上昇温度は、高純度アルミナの昇温速度にほぼ一致していた。従って、図1に示した純度99.99%、Mg または Fe 成分を混合したアルミナの温度の上昇は、アルミナ自体の発熱ではなく、周辺雰囲気からの外部加熱によるものと考えられる。

図2にNa成分を混合したアルミナの粉末X線回折図形を示す。回折図形にはアルミナの回折ピークの他にβ-アルミナの存在が確認された。β-アルミナは室温から強いマイクロ波吸収を示す材料であり、この存在が発熱速度に大きく影響を与えていると考えられた。

Na成分の混合量の違いがマイクロ波発熱特性に与える影響について検討した。図3にNa₂Oとして換算した濃度が0.1から1.0mass%の試料の時間-温度曲線を示す。比較のため、自己発熱しないアルミナの昇温データ（炉内雰囲気の上昇温度にほぼ等しい）も示した。Na混合量の増加に伴い、

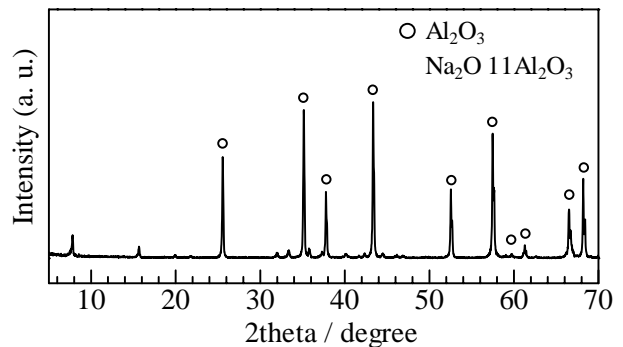


図2 Na成分を混合したアルミナの粉末X線回折図形

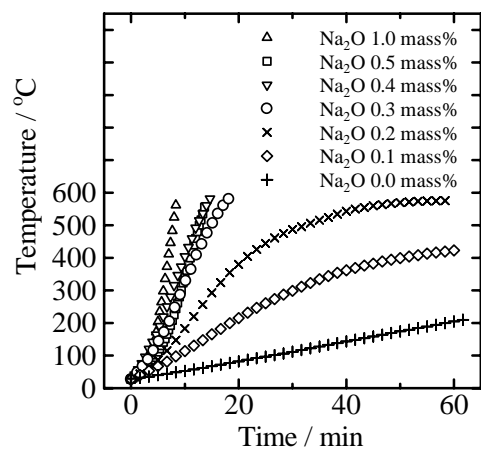


図3 Na成分がマイクロ波発熱特性に与える影響

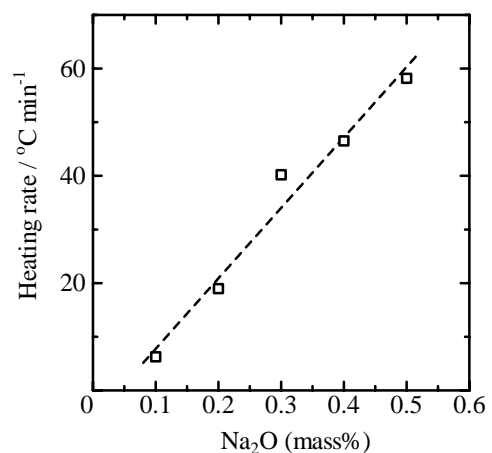


図4 Na成分と発熱速度の関係(200 < T < 400)

発熱速度が増加した。特に、Na混合量が0.5mass%以上の試料では、400 以上の温度域において発熱速度の急激な増加が観測され、サーマルランナーを生じる強いマイクロ波吸収を示した。各試料についてみると、200 < T < 400 における温

度は時間に対してほぼ直線的に増加していた。そこで、この温度範囲のデータを直線近似し、発熱速度と定義した。図4に発熱速度のNa₂O濃度依存性を示す。Na成分の混合量が0.1から0.5mass%に増えると、発熱速度は6から60 /min程度に増加した。また発熱速度は混合量に対してほぼ直線的に増加し、混合量の僅かな違いが発熱速度に大きく影響することがわかった。

上記で述べたように、Na成分を混合し1600で焼成したアルミナ中ではβ-アルミナが合成されており、β-アルミナ量の増加に伴って発熱速度は上昇した。次に焼成温度がマイクロ波発熱特性に与える影響を調べるために、アルミナ粉末とβ-アルミナ粉末を出発原料として複合体を作製し、1200から1600で焼成した。図5にアルミナとβ-アルミナからなる複合体の発熱特性を示す。100 < T < 300における試料温度は時間に対してほぼ直線的に増加している。図6にこの温度域における発熱速度の焼成温度依存性を示す。発熱速度は焼成温度の増加に伴って増加していることがわかる。特に、1500から1600の間で急激な増加が観測された。これらの結果より、マイクロ波照射による発熱特性には、粉末の特性とその焼結状態が影響していることがわかった。

4.まとめ

マイクロ波照射によるアルミナの発熱特性に与える不純物の影響について調べた。Na成分がアルミナの発熱特性に大きな影響を与えること、FeおよびMg成分の影響は小さいことが分かった。またアルミナとβ-アルミナからなる複合体のマイクロ波発熱特性の焼成温度依存性を調べ、粉末の特性と焼結状態がともに発熱特性に影響を与えることを明らかにした。

【参考文献】

1) セラミックスの高速焼結技術 - セラミックス電磁プロセッシング -, ティー・アイ・シー (1997).

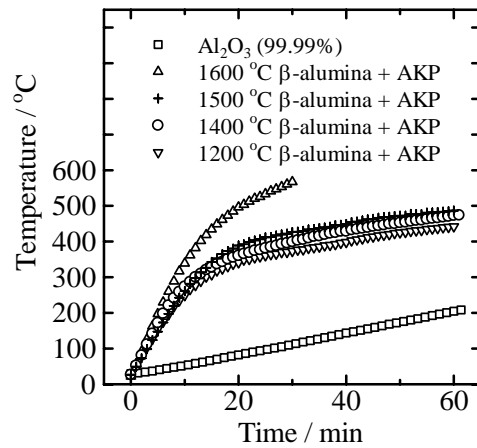


図5 アルミナとβ-アルミナからなる複合体のマイクロ波発熱特性

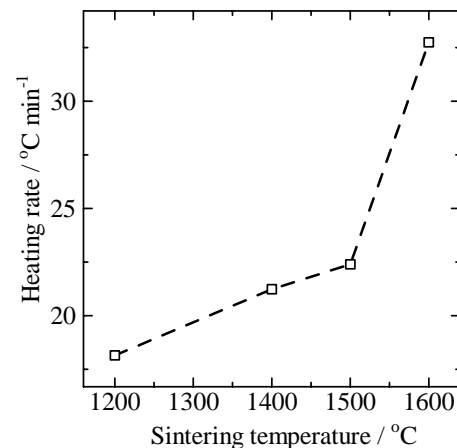


図6 アルミナとβ-アルミナからなる複合体のマイクロ波発熱特性

2) M. Sato *et al.*, *Ceramic Transactions*, **111**, (2001), 277-285.
 3) S. Takayama *et al.*, *Ceramic Transactions*, **111**, (2001), 305-312.
 4) 水野正敏, *金属* Vol. 76 No. 8 (2006), 899-904.
 5) Willard H. Sutton, *Ceramic Bulletin*, Vol. 68, No. 2 (1989), 376-386.

アルミナ成形体における脱脂時の膨張挙動

水野正敏・立石賢司・茨木靖浩・伊藤正剛

Expansion Behavior during De-binding Process in Alumina Green Body

Masatoshi MIZUNO, Kenji TATEISHI, Yasuhiro IBARAKI and Sadataka ITO

アクリル系エマルジョンタイプのバインダを種々の量含有するアルミナの成形体を作製し、これらの脱脂時の膨張挙動について調べた。その結果、バインダ 4%を含有する成形体は、1 及び 2%含有する成形体とは異なる膨張挙動を示した。この挙動はバインダの熱分解に起因すると考えられた。

1. 緒言

セラミックスの成形において、原料粉末の流動性を改善し、精密な形状を維持し、またハンドリングを容易にするために、有機バインダが重量で数%から 20%添加される。バインダは焼結に先立ちできるだけ低い温度で短時間に除去することが望ましいと言われている。有機バインダの熱分解は 100~500 で起こるが、急激に分解すると多量の発生ガスのために割れや膨れの原因となる。これらを防ぐために、従来の経験に基づいてゆっくり加熱し、大型肉厚品であると通常 100 時間以上かけて脱脂される。当所で実施した大型アルミナ(バインダ 2%添加)のマイクロ波焼成においても、焼結温度 1575 までの全昇温時間の内、約 2/3 が 600 までの脱脂過程に要した時間であった。

前述したように、脱脂時に発生する割れや膨れの欠陥は、発生ガスによって成形体内部に圧力がかかって起こるため、昇温プログラムの決定にはバインダの示差熱天秤による加熱減量曲線が参考にされる。しかし、この方法ではガスの発生する温度はわかるものの、実際の成形体における脱脂挙動までを知ることはできない。

そこで、本研究では成形体の脱脂挙動を把握することを目的に、アクリル系エマルジョンタイプのバインダを種々の量含有するアルミナの成形体を作製し、これらの脱脂時の膨張挙動について調べた。

2. 実験方法

2-1 アルミナ成形体の作製

アルミナは AL-160SG-4(平均粒径 0.6 μ m : 昭和

電工製)、分散剤はポリアクリル酸アンモニウム塩系の D-305(中京油脂製)、バインダはアクリル系エマルジョンタイプの WA310(三井化学製)を用いた。アルミナ粉末 73mass%、蒸留水 17mass%、分散剤 0.55mass%(アルミナ量に対して)からなるスラリーを 48 時間のボールミリングにより調整した。このスラリーを約 15 分間減圧下で攪拌脱泡した後、バインダをアルミナ粉末に対して 1、2、4mass% 添加、再脱泡して鑄込み成形用スラリーとした。鑄込み成形は石膏型を用いて行い、50mm x 50mm x 6mmt の角板成形体を作製した。

2-2 測定

成形体の熱膨張をマックサイエンス製 TD5000S により測定した。測定は成形体から切り出し等の加工を行って得た約 5mm x 50mm の試料を用いて、昇温速度 1、2、5、10 /min の条件で、30cc/min の空気を流入させながら行った。

バインダ WA310 の加熱減量をリガク製 Thermo Plus TG8120 により測定した。測定には WA310 を 130 で 24 時間乾燥し、水分を除去した試料を用いた。

3. 結果及び考察

図 1 にバインダ WA310 の TG-DTA の測定結果を示す。昇温速度は 5 /min である。WA310 の重量は 220 付近から徐々に減少し始め、300~400 間で急激に減少した。この温度間の重量減少分は約 82%であり、WA310 の急激な熱分解が起こっていることがわかる。その後、500 まででは緩やかな減少した。平井らはこの緩やかな重量減少は残留炭素の酸化によるものと説明している¹⁾。

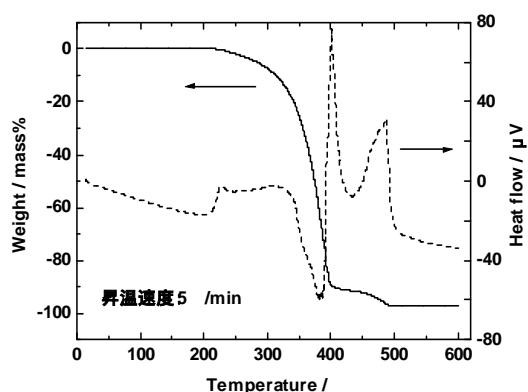


図1 バインダWA310のTG-DTA曲線

図1のDTA曲線からも炭素の燃焼によると考えられる鋭い発熱ピークがみられる。

図2にバインダを1、2、4%含有する成形体を1 /minで昇温した時の熱膨張曲線を示す。バインダ1及び2%の成形体の場合、膨張曲線はほぼ同じであるが、4%では1及び2%に比べて200 ~ 310 の膨張率が大きく、310 以上では逆に小さくなった。図3にバインダを0、1、2、4%含有する成形体を10 /minで昇温した時の熱膨張曲線を示す。バインダ0、1、2%の成形体では、昇温速度が1 /minと同様にほぼ同じ膨張曲線を示した。しかし、4%の成形体では1 /minと同様な膨張挙動を示すが、高膨張と低膨張に転じる温度に違いがみられた。これらの温度は昇温速度に影響を受け、昇温速度が1、5、10 /minの場合、高膨張に転じる温度はそれぞれ約210、220、230、低膨張に転じる温度は約300、330、370であり、昇温速度の増加とともに高温側にシフトした。平井らはWA310の分解開始温度は昇温速度によって異なり、15 /h

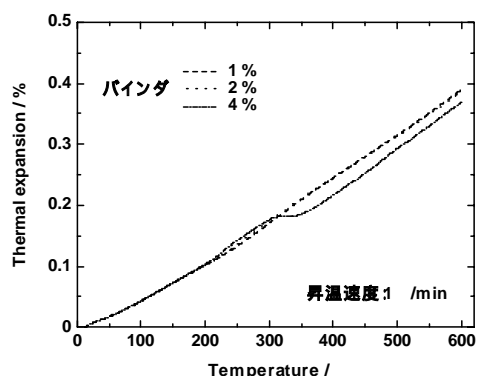


図2 昇温速度1 /minの時の膨張曲線

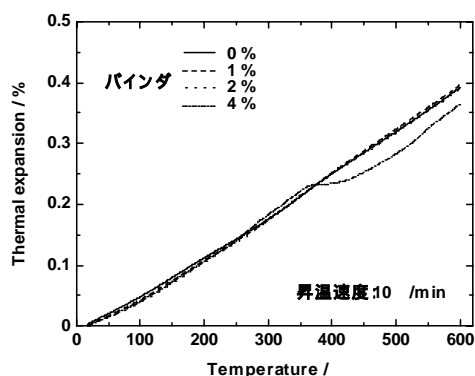


図3 昇温速度10 /minの時の膨張曲線

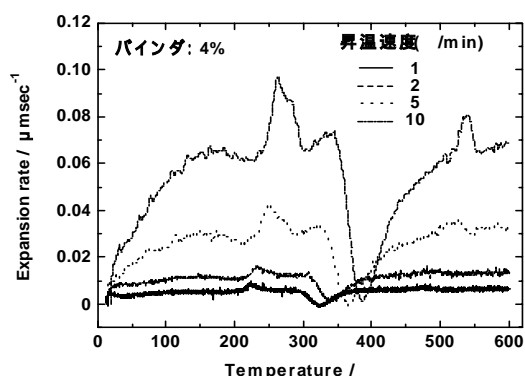


図4 バインダ4%の成形体の膨張速度曲線

では200 を示した分解開始温度が10 /minでは280 になることを報告している¹⁾。このことと図1に示したTG曲線から、バインダ4%の成形体を示す変則的な膨張挙動が、バインダWA310の分解に起因することは明らかである。しかし、この挙動が4%の成形体にだけなぜ現れたのかは、現時点では不明である。

図4にバインダ4%を含有する試料の膨張速度を温度に対してプロットした。この図からも昇温速度の違いによる温度シフトの様子がみてとれる。

4.まとめ

アクリル系エマルジョンのバインダ4%を含有する成形体において、1及び2%のバインダを含有する成形体とは異なる膨張挙動を示した。この挙動はバインダの熱分解に起因すると考えられた。

【参考文献】

- 1) 平井敏夫, 戸高栄弘, 鈴木傑, 岐阜県セラミックス技術研究所研究報告, 32-37(2000)

強化磁器食器のシミュレーションによる応力解析

倉知一正・林亜希美・柘植英明・水野正敏

Stress analysis of reinforced porcelain tableware by simulation

Kazumasa KURACHI, Akemi HAYASHI, Hideaki TSUGE and Masatoshi MIZUNO

有限要素法でのシミュレーションにより、強化磁器碗の縁に荷重をかけた場合に生じる応力の解析を行った。シミュレーション条件の検討を行った結果、ハンマーモデルに荷重をかけ、碗の応力を解析する方法を用いた場合に、最大応力点が生じる場所が実際の衝撃試験で観察される破壊起点位置とよく一致し、シミュレーションを用いて応力を解析することが、耐衝撃性を評価するのに有効であることが確認できた。

1. 緒言

近年、学校、病院などの給食用食器は安全性、情操教育等の理由から、金属やプラスチックに替わり陶磁器製食器が使用され、年々増加傾向にある。学校給食では大量の食器を積み重ねて搬送したり、機械での洗浄が行われており、一般使用に比べ、食器どうしの衝突や落下によって衝撃を受ける頻度が高く、破損の原因になっている。

我々は、曲げ強度や厚みと衝撃強さの関係、更に食器の形状が衝撃強さに大きく影響することを明らかにした^{1)~2)}。昨年度、シミュレーション解析が、衝撃に強い食器の形状検討に有効であることを報告したが³⁾、種々の課題も残された。本年度は更に精度良くシミュレーションを行うための条件の検討を行ったので報告する。

2. 実験方法

形状のCADデータ化は、サンプルの断面形状をスキャナーによって画像データとし、画像処理ソフトで表面の座標を多数点読み取ることで行った。CADソフトCaelum XXen ((株)トヨタケラム製) で、座標をスプライン曲線でつなぎ断面形状とした。それを360° (Full Model) または180° (Half Model) 回転させて碗形状を作成し、その後、シミュレーションを行う際に必要な拘束面を作成した。拘束面はVブロックとの接触面および底面とした。また、荷重面モデルでは荷重面も作製した。

応力解析は、構造解析ソフト3GA(PlassoTech社製)を使用した。材料特性は密度 2.8g/cm^3 、ヤ

ング率 120GPa 、ポアソン比 0.223 とした。拘束条件としては拘束面を法線拘束し、 50kg または 25kg の荷重を加えた時のZZ方向応力をシミュレーションした。

2-1 荷重面モデルとハンマーアセンブリモデルの比較

荷重面モデルでは、荷重面の面積を変化させたときのZZ方向応力を比較した。また、実際の衝撃試験のように、ハンマーを追加したモデルで、ハンマーに荷重をかけた場合の比較も行った。

2-2 ハンマーアセンブリモデルでの接触検出設定と接触条件の検討

今回行ったCAD作製方法では食器モデルとハンマーモデルの位置関係を定位置にすることは難しい。そこで、シミュレーションソフトに用意されている接触検出距離設定と接触条件について検討を行った。

2-3 180°回転モデル(Half Model)の検討

シミュレーションでは、メッシュ分解された要素がすべてコンピューターで解析される。そのため大きなモデルを小さな要素に分解すると、コンピューターも高性能なスペックが必要となり、解析時間も長時間かかるようになる。そのため、回転体でのシミュレーションの場合、 180° だけ回転させたハーフモデルでの解析を行うことが多い。そこで、 180° 回転モデルと 360° 回転モデルとの比較を行った。

3. 結果及び考察

3 - 1 荷重面モデルとハンマーアセンブリモデルの比較

シミュレーションを行うには、拘束面、荷重面を定義しなければならない。食器形状モデルのみでシミュレーションを行う場合にはモデルに荷重面を作成する必要があるが、モデル毎に同じ面積で荷重面を作るとは難しい。同じモデルで意図的に荷重面の面積を変えシミュレーションを行ったところ、荷重面の面積が小さい時にZZ方向の最大応力は大きく、面積が大きい時に最大応力が小さくなることがわかった。そこで、食器モデルとハンマーをパーツとして組み合わせてシミュレーションを行うアセンブリで検討を行った。荷重面モデルとハンマーアセンブリモデルとの比較を図1に示す。荷重面モデルではリムに近い位置に最大応力点があるが、ハンマーアセンブリモデルではリムの少し下の位置にある。平成15年度に行った高速度カメラ観察でも、破壊の起点はリムの少し下の位置であり、ハンマーアセンブリモデルの方が実際の衝撃試験に近いことがわかった。

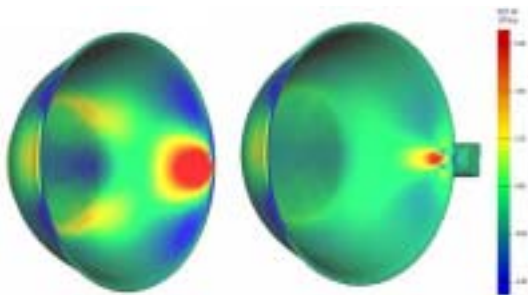


図1 荷重面モデル(左)とハンマーアセンブリモデル(右)の比較

3 - 2 ハンマーアセンブリモデルでの接触検出設定と接触条件の検討

シミュレーションソフト上での食器モデルとハンマーモデルの接触検出設定について検討を行った。接触検出距離を0.1mmとした場合、ハンマーだけに応力が発生し、食器の方には力が伝わらない結果となった。距離を大きくしていく

とわずかに応力が小さくなる傾向にあった。これは、食器とハンマーの接触面積が増えるためと考えられる。

接触条件では、スライド、セパレーション及びフリーの3つの方法について検討を行った。この内フリーでは、ハンマーが食器に接触できなかった。スライドとセパレーションでは、食器に荷重が加わることがわかったが、最大応力としてはスライドで $8.0e^6$ 、セパレーションで $1.7e^7$ と差が出来ることがわかった。

3 - 3 180°回転モデル(Half Model)の検討

180°モデルでは、荷重を360°モデルの半分の25kgとした。また、拘束条件として断面の放線拘束を追加した。その結果、ZZ軸方向の最大応力は、360°モデルで $6.48e^6$ 、180°モデルで $6.77e^6$ であった、シミュレーションソフトで変形状態を映像化しても、同じような変形の様子である。180°モデルと360°モデルを直接比較することは出来ないが、180°モデルでもシミュレーション条件をあわせれば評価可能である。

4. ま と め

有限要素法でのシミュレーションにより、強化磁器碗の縁に荷重をかけた場合に生じる応力の解析を行った。衝撃試験時のようにハンマーモデルに荷重を加えシミュレーションするハンマーアセンブリモデルでの結果が、実際の衝撃試験時の破壊の様子に近く、この方法でのシミュレーション耐衝撃性の評価に対して有効であることがわかった。

【参考文献】

- 1) 水野正敏, 倉知一正, 柘植英明, 林亜希美, 岐阜県セラミックス技術研究所研究報告, 11-14(2004)
- 2) 林亜希美, 柘植英明, 倉知一正, 水野正敏, 岐阜県セラミックス技術研究所研究報告14-16(2005)
- 3) 倉知一正, 林亜希美, 岩田靖三, 柘植英明, 水野正敏, 岐阜県セラミックス研究所研究報告20-22(2006)

切り出し試験片による曲げ強度への研削条件の影響

林亜希美 倉知一正 水野正敏

The Effect of grinding condition on the bending strength of specimen cut from porcelain

Akemi HAYASHI, Kazumasa KURACHI and Masatoshi MIZUNO

強化磁器食器の曲げ強度試験において、試料作製における仕上げ加工時に研削砥石の#200、#325、#600、#800を用い、切り込み深さをそれぞれ $2\mu\text{m}$ 、 $5\mu\text{m}$ 、 $15\mu\text{m}$ の条件で加工を行いその影響について検討を行った。その結果、曲げ強度に対しては切り込み深さの影響は少なかった。砥石の#325、#600、#800を使った場合には曲げ強度の差は見られなかったが、#200の砥石を用いる場合には曲げ強度が低下した。破壊源の観察を行うと、粗い砥石を用いて加工を行うに従い、加工面が破壊源になる場合が多く見られた。

1. 緒言

給食用強化磁器食器の曲げ強さ試験方法は1996年に作られた日本セラミックス協会規格(JCRS203-1996)があり、試験片の作製方法として鑄込み成形と、製品からの切り出し試験片が示されている。しかし、食器からの切り出し試験片の作製方法は、『できるだけ平坦で平行面を持つ試験片を製品から切り出す。製品の所定の部分をダイヤモンドカッターで10mm幅に切り出し、切断面を200~600番のダイヤモンドホイールで研削し、幅 $8.0\pm 0.5\text{mm}$ の試験片に仕上げる。』との表記にとどまっている。ファインセラミックス等では加工条件が強度に影響を及ぼすことが知られており¹⁾、強化磁器の曲げ強さ試験においても加工条件の影響について検証する必要がある。本研究では研削砥石の粒度と曲げ強度の関係について検討を行ったので報告する。

2. 実験方法

試験体として径170mmの市販強化磁器を試験に用いた。ダイヤモンドカッター(日本工機株式会社製ラクソーV33)で強化磁器の底部を平板に切り出した後、精密切断機(東京精機工作所製)で10mm幅に切り出した。切り出した試験片の切断面をまず、切断による影響を取り除くために、#325の砥石を用いて切り込み深さ $5\mu\text{m}$ で約 $800\mu\text{m}$ の研削を行った。次に表1に示す条件で $200\mu\text{m}$ 研削を行った。

表1 研削条件

研削条件	砥石粒度	切り込み深さ
800_2	#800	$2\mu\text{m}+1\mu\text{m}$
800_5	#800	$5\mu\text{m}$
800_15	#800	$15\mu\text{m}$
600_2	#600	$2\mu\text{m}+1\mu\text{m}$
600_5	#600	$5\mu\text{m}$
600_15	#600	$15\mu\text{m}$
325_2	#325	$2\mu\text{m}+1\mu\text{m}$
325_5	#325	$5\mu\text{m}$
325_15	#325	$15\mu\text{m}$
200_2	#200	$2\mu\text{m}+1\mu\text{m}$

3点曲げ強度(20個の平均値)はスパン30mm、クロスヘッドスピード5mm/minにてJCRS203-1996により(株)ボールドウィン製UCT-5Tを用いて測定した。さらに、光学顕微鏡(Nikon Eclipse600POL)を用いて破壊源の観察を行った。また、加工面の表面粗さを加工方向に平行な方向について表面粗さ測定機((株)東京精密製サーフコム)を用いて測定した。

3. 結果及び考察

表2にそれぞれの研削条件で作製した試験片の曲げ強度および標準偏差を示す。#200の砥石を用いた場合には強度の低下が見られたが#325、#600、#800を用いた場合には切り込み深さによる強度への影響は見られず、砥粒のサイズの影響も見られなかった。しかし、図1に示すワイブルプロッ

表2 曲げ試験結果

研削条件	平均曲げ強さ (MPa)	標準偏差 (MPa)
800_2	247	27
800_5	244	18
800_15	237	18
600_2	237	14
600_5	242	16
600_15	244	19
325_2	245	23
325_5	248	20
325_15	237	20
200_2	211	14

トに見られるように、強度の分布において切り込み深さや砥石粒度により違いが見られた。特に200.2においては途中に傾きが変わる点があり、高強度を示すグループと強度の低いグループにおいて破壊の原因が異なっていると考えられる。光学顕微鏡による観察で見られた代表的な破壊源を図2に示す。aは釉と素地の界面近傍、bは釉中の粗

大な気泡、cは釉表面の気泡、dは試験片角、eは研削面に現れた気泡、fは加工面素地である。切断や研削に関係ない破壊源はa、b、cである。d、e、fについては、研削面が破壊起点となっている。eの破壊起点についてはどのような加工条件であっても、出現することはあり、これを取り除くことは難しい。また、この実験においては荒研削の研削量を800 μ mと厚く削りとったため、小林ら²⁾の報告にあるような切断時の影響と見られるおおきなクラックは観察されなかったと考えられる。図3に示すように加工を行った面を研削方向に平行な方向で表面粗さを測定すると、砥石粒度が粗いほど、切り込み深さが大きいほど平均粗さ(Ra)及び最大高さ(Rmax)が大きくなっていった。このことは破壊起点fの原因になると考えられる。破壊起点の分類を行った図4においても、Ra及びRmaxが大きくなる#325と#200の砥石を使うとd、e、fの破壊源が増加していることがわかる。特に

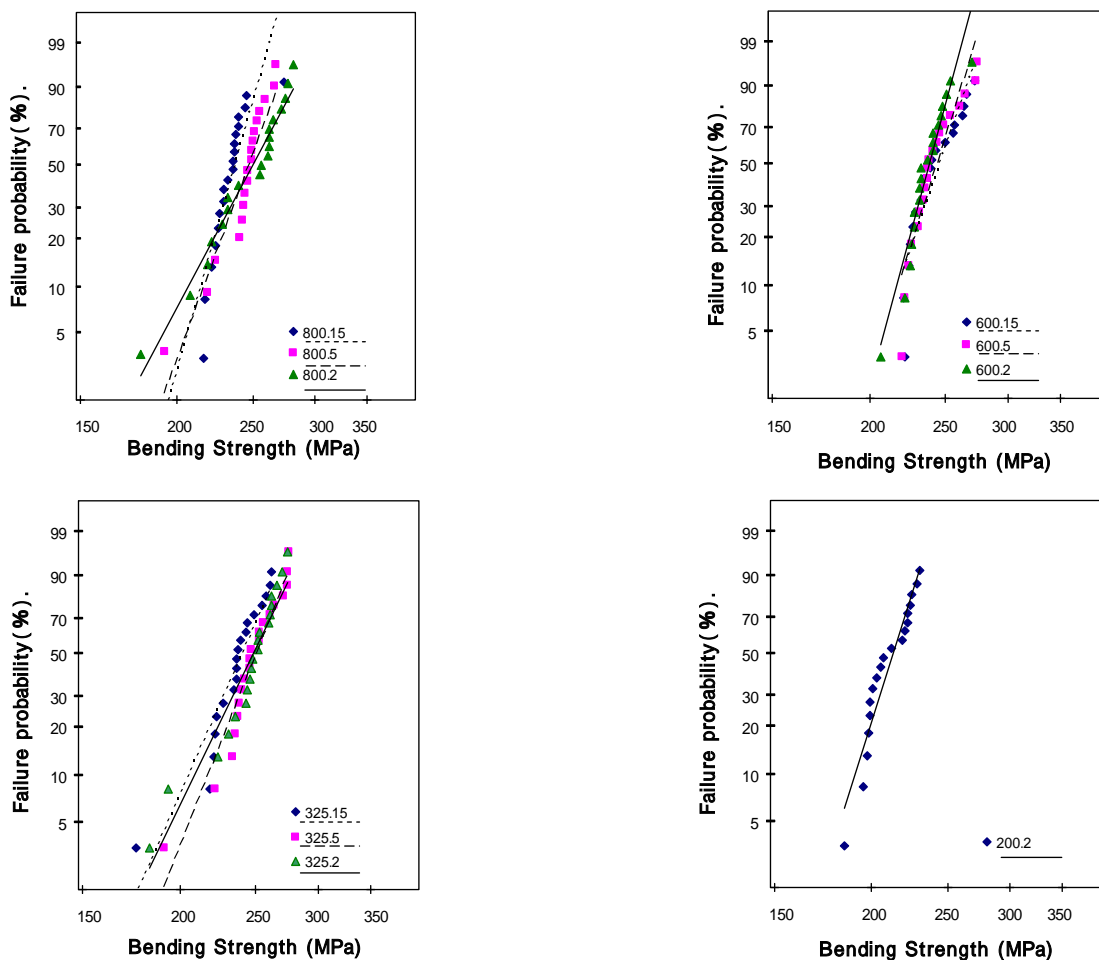


図1 曲げ試験結果のワイブルプロット

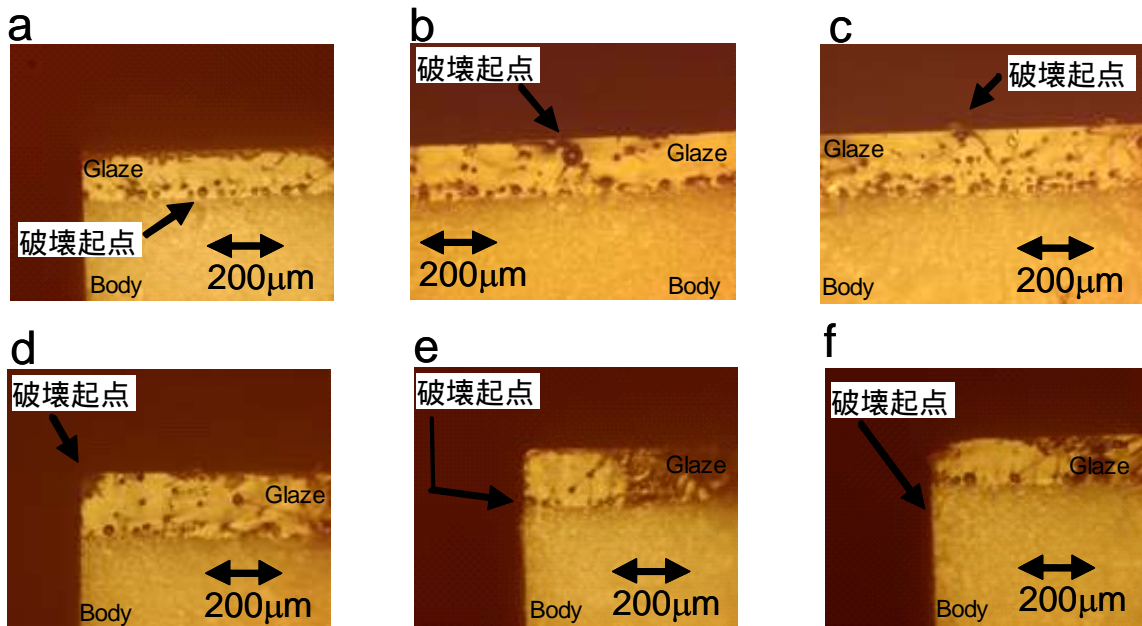


図2 破壊源の写真

#200 の砥石を用いた場合には試料の角の欠け破壊源になることが多い。粗い砥石で加工することで、釉層に強い力がかかるためと考えられる。今回用いた強化磁器皿においては加工の影響が大きく見られたのは#200 を用いた場合のみであったが、曲げ強度の数値に影響が見られない場合においても、切り込み深さが大きいと破壊が試験片固有の原因ではなく、研削に関係して起こる可能性が大きくなると考えられる。

4. ま と め

陶磁器の曲げ試験において製品からの切り出しにより、試験片を作製して曲げ試験を行う場合、最も強度に影響を及ぼす引っ張り面はファインセラミックスの曲げ試験片とは異なり、加工を施さない釉面である。そのため(a)、(b)、(c)のように

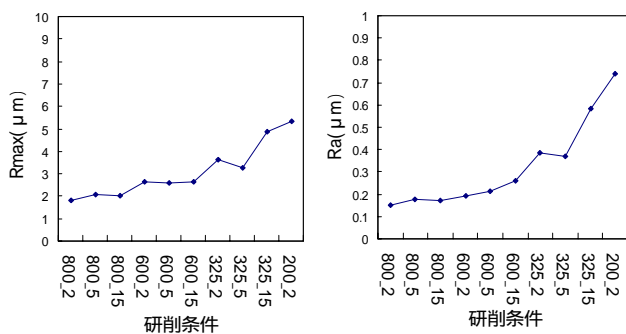


図3 加工面の表面粗さ

釉面状が破壊起点となることが本来の破壊形態である。しかし、砥石の粒度が粗い場合には加工面 (=側面) における傷が破壊起点になっていることが多く見受けられる。従って、安定した曲げ強度を得るためには#325 以上の研削砥石を選定する必要があると考えられる。

【参考文献】

- 1) 材料強度の統計的性質, 材料強度確率モデル研究会編, 株式会社養賢堂 (1992)
- 2) 小林雄一, 平井敏夫, 大平修, 磯山博文, 加藤悦郎 Journal of Ceramic Society of Japan 104[7]604-609(1996)

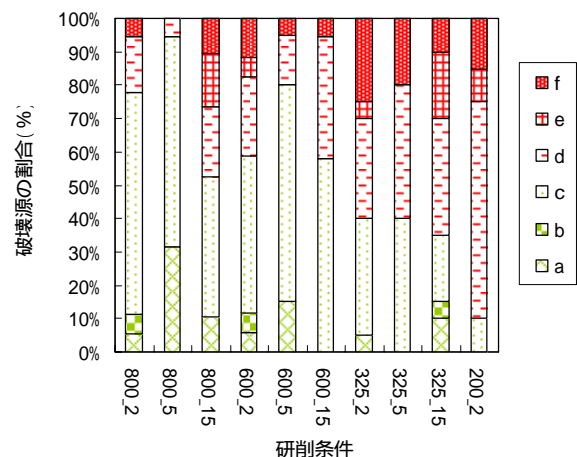


図4 各条件での破壊源の割合

虹彩釉の高度化と製品化研究(第1報)

虹彩釉を活用した、偲ぶ装置「厨子」の提案

鶴見栄三、尾石友弘

Advanced Development of Luster Crystal Glaze and Ceramics Manufacturing (I)
Products Design of ZUSHI(Small Cabinet for Memorial) with Luster Crystal Glaze

Eizo TSURUMI and Tomohiro OISHI

美濃焼は価格と品質面の競争力を持つ輸入製品の急増に直面して、厳しい経営環境に置かれている。このような現状を打開するため美濃焼の高付加価値化の視点から、当所で開発した虹彩結晶釉の活用を検討した。戦後、欧米化した生活様式のもとで、大量消費時代を先導してきた団塊世代をターゲットに、過ぎ去ったヒト・モノ・コトを偲ぶ装置として「厨子」の提案試作を行った。

1. 緒言

量産地である美濃焼は、輸入製品の急増から厳しい経営環境に置かれている。このような現状を打開するためには、製品の高付加価値化が重要と考えた。個性的な釉調からその活用方法が課題となっている、当所が開発した虹彩結晶釉に着目して、戦後流入した欧米の生活文化を教科書に大量消費時代を先導し、60歳定年を期にいま退職を迎えた団塊世代に向け、来し方を偲ぶ生活用具の提案として「厨子」の試作を行った。

2. 製品企画

2-1 試作テーマの設定

当所が開発した虹彩結晶釉¹⁾は、晶出する結晶が多辺形で、最大30mm程度の大きさを持ち虹彩を放つ。従来にはない華やかで個性的な釉薬ではあるが、そのためにどのような陶磁器製品にも違和感なく使用できるとは言い難く、その活用方法が課題となっている。

黄金や宝石、ガラスなど、古来より人類は光を想起させるものに対して、特別な感情を抱いてきた。図1に示す法隆寺蔵「玉虫厨子」²⁾や正倉院蔵「螺鈿紫檀五絃琵琶」³⁾などはその事例である。前者は追想対象に敬意を表す手段として、透かし金具の下に青緑色に輝く玉虫の羽根を敷き詰め、仏殿様の厨子を荘厳したものである。後者は貴人の調度に相応しい雰囲気醸すため、貝殻の真珠層を薄片にして器体に貼り込んだものである。両

者ともに得難いものの象徴として、輝きに対する特別な関心を見ることができる。

そこで、光りモノ：虹彩結晶釉を活かす試作テーマとして、「過ぎ去ったヒト・モノ・コトを偲ぶ装置としての厨子」を設定した。「偲ぶ」とは過去を心静かに懐かしく思い返すことを意味するが、それはまた、行く末に心を馳せることと表裏一体のものであると考えた。また、厨子とは仏像や舍利、経巻を安置するための、両開きの扉を備えた仏具のことで、今日の仏壇の原型と言われる。しかし、ここで設定した厨子は、仏具の枠をこえた偲ぶ装置としての新しい厨子である。

2-2 団塊世代の「偲ぶ」対象

団塊世代は総人口に占める割合の大きさとともに、親世代までとは異なる価値観や生活様式において、社会に及ぼす影響が大きいと言われる。敗戦を期に欧米の文化や価値観が流入し、その下で育った最初の世代が団塊の世代である。生まれ育った地方から切り離され、都市近郊で新たな生活基盤を築いた彼らの親世代(戦中派)は、産業界やマスメディアが仕掛ける、消費を前提とした欧米寄りの生活洋式に馴染むしかなかった。従って、彼らが青春を謳歌し消費の担い手となった1960年代から70年代、アメリカの若者文化の表層的な模倣こそが価値を持ち、伝統的価値観や生活文化は時代遅れとみなされ軽視された。

わが国は無宗教であると言われるが、団塊世代の成長過程における時代背景や生活実態から考え



図1 玉虫厨子、螺鈿紫檀五絃琵琶

れば、戦前の「家」を核とし先祖霊を祀る信仰のカタチがそこには皆無であり、宗教的文化の刷り込みが無かったことは確かである。しかし、親世代を見送る事態に直面したり、自らも行く末に心を馳せる年齢となった今日、青春時代の価値観や生活様式について再検討を迫られている。即ち、心の問題として人の生死をどの様に位置付けて対処するか。さらに、数多のモノやコトとの関係で成り立つ日常生活をいかに考え、対処するかである。近年、愛玩動物の死により発症するペットロス症候群が見聞されるが、従来にはない関係性を示す事例として注目される。また、物質的豊かさの中で生きてきた団塊世代にとって、身体化された記憶⁴⁾や偏愛趣味の対象である時計や文具、鞆などのモノや、身体の記憶そのものの各種スポーツ、レジャーなどのコトは、その関係性において近い人と同様な理解と対処を求めている。即ち、偲ぶ対象はかつてのヒトに留まらず、モノやコトにまで拡大しているとも考えられる。

2 - 3 仏壇の意味と課題

前述した「玉虫厨子」は仏壇の原型⁵⁾で、寺院の内陣を小型化した家の中の仏堂と言われる。歴史的には 686 年、国家統一の観点から発せられた天武天皇の詔勅が始まりである。しかし、これは都の有力者や地方豪族に対してのもので、一般庶民に仏壇が普及するのは江戸時代以降である。その背景には幕府による宗門改めの強要があり、その証明が仏壇であった。当時、寺院側は宗派の仏像を祀ることを庶民に求めたが、庶民が祀ったのは以前から各家で祀っていた先祖霊であった。先

祖霊は祭壇で祀られていたため、仏壇を受容することに対する抵抗感はなかったと言われる。

こうして、仏壇は先祖霊の依代として永続する家系の象徴となった。「家」制度の下で第一の価値観は家系の永続であり、先祖が子孫に影響を与えんとする信仰心が、仏壇の需要を支えていた。しかし、高度経済成長期に働き手として若年層が都市に吸収された結果、「家」は崩壊し仏壇はその必然性を低下させた。祀るべき対象が不在の都市部では需要は生まれず、保有率も低くなっている。また、地域社会が崩壊するとともに、地位の象徴として豪華なものを求める必要がなくなったことも需要低迷の一因である。

農業に立脚した村落共同体が崩壊寸前の現在、先祖霊に対する意識は変化せざるを得ない。団塊世代にとって先祖とは、自分の記憶に残る祖父母までとする調査結果もある。従って、従来の永続する縦の關係に替わる、個人的に近いヒト・モノ・コトを重視する、横の關係が顕在化してきていると考えられる。また、居住空間がかつての日本家屋に比べて、狭くかつ洋風化した結果、伝統的な黄金に輝く仏壇は寸法や様式面で違和感が強くなっている。

名古屋市中区大須は仏壇製造販売業が集積し、路面店が軒を並べている。前述の状況を反映して、洋風化した生活のなかでの使用を想定した、家具感覚の仏壇コーナーが各所で見られる。価格は伝統的工芸品(国指定名古屋仏壇)が数百万円と仮定すれば、一般的な家具感覚の仏壇はその 1/10 程度の設定である。団塊世代の生活実態を勘案すれば、小型化やデザインの簡素化、低価格化は不可欠と考えられる。また、宗派固有の様式から脱却した無宗教性も、デザイン構想上の要点と考えた。

3 . 試 作

3 - 1 偲ぶ装置「厨子」の具体化

仏壇の現代化は、伝統的な仏壇から見れば斬新な発想の「一般家具と同じ様な感覚」を要点に開発・商品化されている。このため和風や洋風など、多様なインテリア様式に調和できるように製品展開がされている。そこで、偲ぶ装置「厨子」の具体化では、下記の要点からデザインを行った。

- 1)偲ぶ心を受け止める簡素なカタチ：東大寺三月堂北面⁶⁾にみる奈良時代建築の形姿
- 2)原型「厨子」への回帰：家具にはない精神性の



図2 東大寺三月堂北面

表出、4 畳半/整理ダンスの上でも使える寸法

発泡プラスチック材で原寸大の厨子モデルを製作し、形状や寸法を検討して製作図面を作成した。本体は木質系で製作することを構想したが、小口面の処理や接合部分の仕口など高度な専門的知識と加工技術が要求されるため、木童工房(株)の協力を得ることにした。この試作で最も重要な虹彩結晶釉の活用は、タイル(47×93×6mm)を貼り込んだ金属パネル(1mm厚のアルミニウム板に変成シリコーン樹脂接着剤で接着)を内側壁面に装着することにした。これは作業性および手入れの簡便性、従来の褐色や瑠璃色の他に多色化できた虹彩結晶釉を活用して、季節に合わせて模様替えを行うなど、これらを検討した結果である。また、両開き扉の前面を彫り込み、上記接着剤を使用してタイルを象嵌処理した。図2に東大寺三月堂北面を示す。

3 - 2 試作

厨子本体の木質系素材は、日本人にとって文化的に特別な意味をもち、香りも良好な桜材を選択した。また、偲ぶ対象に花やお香などを手向けることへの対応と、試作品全体に占める焼物の割合を高める視点から、伝統的な仏壇に付属する用具(花瓶、燭台、香炉、茶湯器、仏飯器)を参考に、花をイメージしてこれらを生計、製作した。図3に5種類の用具を示す。



図4 偲ぶ装置「厨子」



図3 花瓶、香炉、燭台、茶湯器、仏飯器

虹彩の発現は、タイル面への光りの入射角度、即ち見る角度に大きく左右される。そこで、内部空間を効果的に光らせ荘厳さを演出するため、照明具の装備を検討した。しかし、基本構想で仏壇の原点回帰を述べたことや、照明具が内部空間に突出して美観を損なうため、自然採光に任せることとした。図4に厨子を示す。

4 . ま と め

虹彩結晶釉の個性的な釉調を活用する一提案として、虹彩結晶釉タイルにより荘厳した厨子の試作ができた。異業種との協働作業では焼物に対する斬新な提案もあり、有益であった。厨子軽量化と剥離防止のため、タイルの薄造りが必要である。

謝辞：構想検討および試作において、的確な助言と技術提供をいただいた木童工房(株)関西春樹社長ならびに、仏壇に係わる調査資料をご恵送いただいた、財団法人 伝統的工芸品産業振興協会 指導調査部 佐々木千雅子さんに感謝します。

【参考文献】

- 1) 尾石友弘ら, 岐阜県セラミックス技術研究所研究報告, 33(2005)
- 2) 小学館, 原色日本の美術 2 法隆寺(1977)
- 3) 小学館, 原色日本の美術 4 正倉院(1977)
- 4) 野田正彰, 人と「もの」をめぐる精神分析, INAX 出版, 道具の心理学, 6-12(1999)
- 5) 財団法人 伝統的工芸品産業振興協会, 平成 15 年度伝統的工芸品産地調査・診断事業報告書 産地特別調査診断-仏壇-, 7-24, 150-152(2004)
- 6) 小学館, 原色日本の美術 3 奈良の寺院と天平彫刻(1977)

虹彩釉の高度化と製品化研究(第2報)

新虹彩結晶釉の結晶成長と構造的性質

立石賢司・鶴見栄三・林亜希美・尾石友弘・茨木靖浩

Advanced Development of Luster Crystal Glaze and Ceramics Manufacturing (II) -Crystal Growth and Structural Properties of New Luster Crystal Glaze-

Kenji TATEISHI, Eizo TSURUMI, Akemi HAYASHI, Tomohiro OISHI and Yasuhiro IBARAKI

新虹彩結晶の構造的性質について、X線回折、光学顕微鏡、原子間力顕微鏡観測により調べた。X線回折法により鉄虹彩結晶釉中では、 CaWO_4 およびCa-Feスピネルがそれぞれc軸、(111)配向しており、白虹彩結晶釉中では CaWO_4 がc軸配向していることが分かった。また結晶側面にはステップが観測されたことから、結晶成長は層成長により進行していると考えられる。

1. 緒言

日本では古くから織部釉、志野釉、天目釉といった釉薬が作られ陶磁器を美しく飾ってきた。釉薬の中でもはっきりと結晶の模様がわかるものは結晶釉と呼ばれている。当研究所では、従来の結晶釉とは明らかに異なる多角形で、万華鏡のごとく光り輝く結晶釉の作製技術を確立させ、新虹彩結晶釉と命名した。この技術は、鉄釉や石灰亜鉛釉に特殊なタングステン化合物を添加することで釉表面に0.02~30mm程度の結晶を析出させるものである¹⁾。これまで結晶を析出させることに成功しているが、結晶の組成や成長過程などの構造的性質についてはまだ良く分かっていない。そこで本研究では、X線回折法、光学顕微鏡、原子間力顕微鏡により新虹彩結晶釉の構造的性質について調べた。

2. 実験方法

新虹彩結晶の析出には、 SiO_2 、 Al_2O_3 、 CaO 、 K_2O および Na_2O からなる基礎釉薬にタングステン化合物と Fe_2O_3 (以降、鉄虹彩結晶釉と呼ぶ)または ZnO (以降、白虹彩結晶釉と呼ぶ)を種々の割合で混合した釉薬を用いた。これらの釉薬を磁器素地に施釉し、1200~1300で焼成、1000~1100で一定時間保持して結晶成長させた。

結晶相の同定には釉層の粉末X線回折を用いた。結晶の構造的性質の測定には、光学顕微鏡、結晶表面を直接観測するX線回折、原子間力顕微鏡を

用いた。

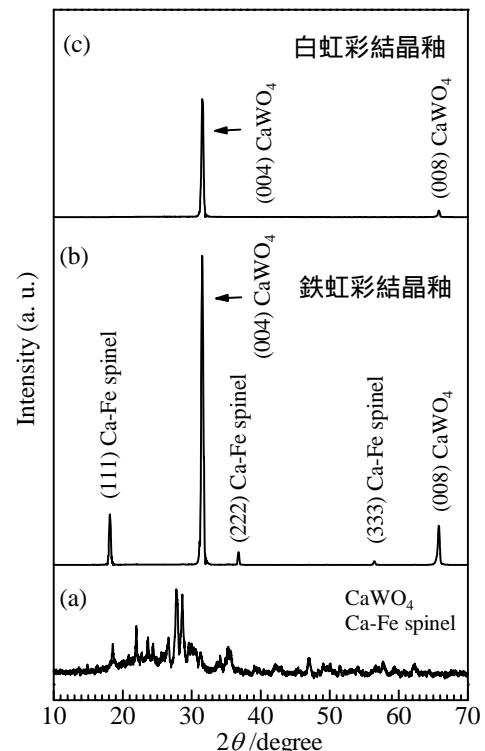


図1 新虹彩結晶釉のX線回折図形。(a)鉄虹彩結晶釉の釉層部分の粉末、(b)鉄虹彩結晶釉の結晶部分、(c)白虹彩結晶釉の結晶部分

3. 結果及び考察

図 1(a)に鉄虹彩結晶釉の釉層のみを削りとり粉末状にした試料の粉末 X 線回折図形を示す。回折図形には CaWO_4 および Ca-Fe スピネルと一致する回折ピークが観測された。図 1(b)は鉄虹彩結晶釉表面の結晶部分を直接測定した X 線回折図形である。この回折図形には CaWO_4 の(004)および(008)反射が、 Ca-Fe スピネルの(111)、(222)および(333)反射が観測された。従って結晶成長過程において CaWO_4 は c 軸配向、 Ca-Fe スピネルは(111)面が配向していることが分かった。図 1(c)は白虹彩結晶釉表面の結晶部分の X 線回折図形である。白虹彩結晶釉においても CaWO_4 の(004)および(008)反射が観測され、これらが c 軸配向していることが分かった。

光学顕微鏡観察による結晶の形状を図 2 に示す。析出する結晶の形状は様々で、樹枝状(a)、星形状(b~d)などがある。結晶側面にはステップ(e, f)が観測され、結晶成長は層成長により進行していることが予測できる。図 3 にステップ部分の原子間力顕微鏡写真、図 4 に矢印で示す 2 点を通る直線上の高さ方向のデータを示す。各ステップの間隔は $2.8 \sim 5.3 \mu\text{m}$ 、高さは $44 \sim 155 \text{nm}$ 程度であることが分かった。

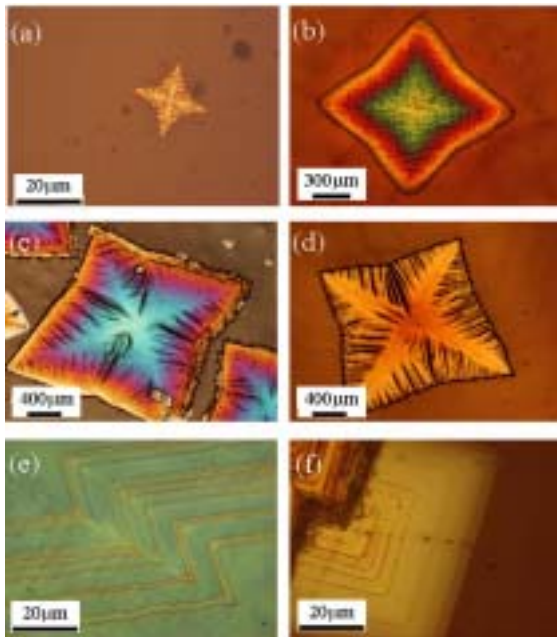


図 2 虹彩結晶釉の顕微鏡写真. 鉄虹彩結晶釉 (a~c, e, f)、白虹彩結晶釉(d)

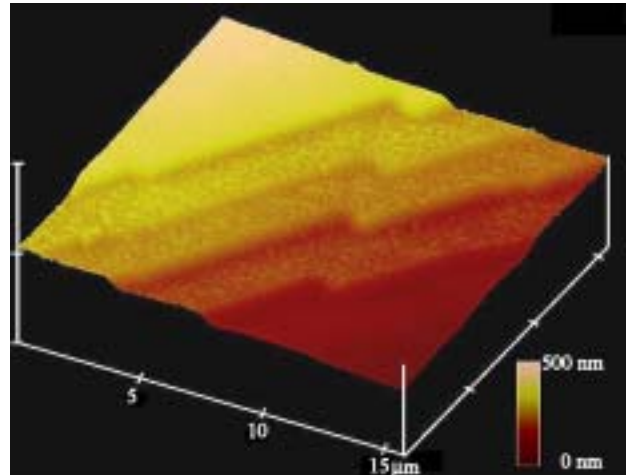


図 3 鉄虹彩結晶釉の結晶表面の原子間力顕微鏡写真

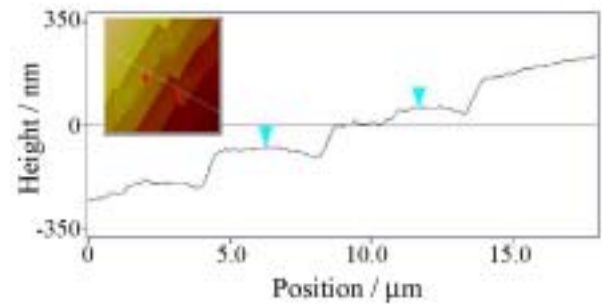


図 4 鉄虹彩結晶のステップ間隔

4. ま と め

鉄および白虹彩結晶を作製し、結晶部分の構造的性質について調べた。虹彩結晶の結晶成長は、 CaWO_4 が c 軸配向し、ステップ間隔 $2.8 \sim 5.3 \mu\text{m}$ 、高さ $44 \sim 155 \text{nm}$ の層成長により進行していると考えられた。

【参考文献】

- 1) T. Oishi, *Bulletin of The Ceramic Society of Japan*, **41** (2006) 388-391.

2 1世紀東濃地域ブランド商品の開発

-蛍の器と、位牌の製品試作-

小稲彩人・林亜希美・立石賢司

Development of Artistic Ceramic Designs for Mino-pottery in 21st.Centuries

-The trial manufacture of a breeding bowl for firefly and a mortuary tablet-

Ayato KOINE, Akemi HAYASHI and Kenji TATEISHI

美濃焼陶磁器業界の現状を変えるためには、生活スタイルの多様化したニーズに対応した新しい企画、また特徴のある製品開発が求められている。また海外で製造が困難な素材や技術を用いた製品を、国内のみならず海外へ輸出する事も視野に入れなくてはならない。

そこで、今年度は高いインテリア性を備えた蛍の飼育器を試作し、実際に蛍の幼虫を飼育した。さらにペット用の位牌の試作を行った。

1. 緒言

現在、美濃焼は国内での販売不振や諸外国製品の影響もあり低迷している。この状況を変えるためにも、従来と異なる考え方で付加価値の高い美濃焼の新しいブランド創設が必要である。

今年度は近年ペット市場が拡大していることに着目し、室内で飼うペットに焦点を当てた。その中で蛍は川などに住む昆虫であるが、自宅で飼育して成虫となった蛍が、自宅内できれいに光る光景を想定し、蛍の器の試作を行い、実際に幼虫の飼育を行った。また当研究所の虹彩結晶釉を利用したペット用位牌の試作を行った。

2. 開発コンセプト

近年、マンション等の住居専有面積は大きくなっており、多様化した生活スタイルの中にとけ込む陶磁器のインテリア製品と、ペット関連商品が高額化し拡大しているペット市場を関連づけた製品開発を試みた。

試作した蛍の器は、幼虫の段階から飼育する楽しさと、蛍が室内で光るのを楽しむことができる。また、普段は花器としても寄せ植えなどにも使用出来る外観を備え、美濃焼の特徴を持った原料、釉を活かし住宅のインテリアに合うよう検討した。

位牌は当所において開発された虹彩結晶釉とインクジェット技術による絵付け技法を用い、縦長の形状で重みを感じる成形を行った。

3. 試作

3-1 蛍の器

蛍の器図1は、外側の低い円筒の器に、小さい器を内側に置く形状とし、外側の器には水、内側の器には土を入れ、植物を植え、濃色で落ち着いたインテリアに合うよう、 MnO_2 80%、 Fe_2O_3 20%の割合で混合した絵具で絵付けし、黄瀬戸釉を施した。成虫になった時逃げないように網で覆った。外側の器のサイズは両手で抱える事が可能な320mmとした(図2)。内側の器は幼虫が蛹になる際登りやすい高さとし内側に傾斜を付けた。



図1 蛍の器全景

3 - 2 ペット用位牌

ペット用位牌（図3）はペットの世代交代が早い事が予想されることから、同時に複数並べる事ができるように、比較的小さなサイズ縦100mm×横70mm（図4）とした。加飾のインクジェット印刷は、気に入ったオリジナルの画像を一点から印刷可能で個々のニーズに対応する事ができるようにした。さらに、黒の虹彩結晶釉を掛け分けて透明釉部分に印刷を行い、高級感のある試作とした。

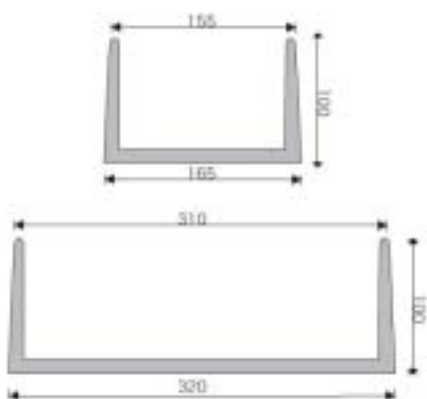


図2 蛭の器図面と試作品

4 . 蛭の飼育

外側の器には砂利を薄く敷き、水をはり、水槽用ポンプで水をゆっくり循環させ、内側の器に植物を植えた。3日に1度外側の器の水を交換した。

蛭のエサとしてカワニナを入れ、カワニナのエサはキャベツとした。この中に蛭の幼虫を5匹放し、この状態で5月中旬から7月初旬まで飼育を行った。

その結果、4匹の幼虫が僅かな網の隙間から器外へ出るなどしてしまい、1匹だけが土の中で蛹になった事を確認したが、成虫にはならなかった。

成虫に育てるには、土中の湿度と室内の湿度を均一に保つ事が必要であると想定される。



図3 ペット用位牌

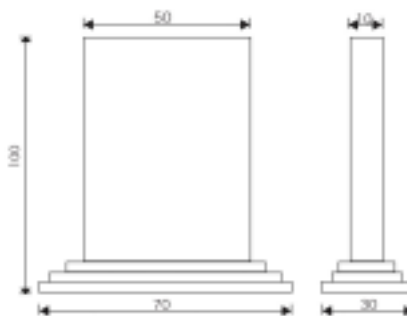


図4 位牌図面

5 . まとめ

今回蛭の器の試作と観察、位牌の試作を行った。現在、ペット関連業界は年々市場が拡大している。美濃焼業界において、本開発の様な従来型陶磁器製品以外の提案はあまりされておらず、ゆえに付加価値を感じやすく、今後新しい美濃焼のブランド製品として期待される。

蛭の器では水量不足、網の形状、ポンプなどの問題点が多く見付き、今後の検討課題である。また前述したように湿度の調整も今後の課題である。

ペット位牌では、インクジェット印刷を利用し、個々のニーズに対応した陶磁器の位牌を製作することが出来た。虹彩結晶釉は位牌に適した艶と模様が現れる釉であることが分かった。

セラミックス製品のライフサイクル・デザイン研究(第1報)

持続可能産地形成に向けた資源効率向上のための美濃焼製品の開発

長谷川善一・水野正敏・倉知一正・有限責任中間法人グリーンライフ21

Life Cycle Design Study in Ceramics (I)
- Development of Mino ware for improvement of Eco-efficiency -

Yoshikazu HASEGAWA, Masatoshi MIZUNO, Kazumasa KURACHI and GREEN LIFE 21

環境問題が企業活動の成否に係わる必須の要素になる中、21世紀社会の支持を獲得し、かつ持続可能な産地形成をはかるためには、産地製品のエコプロダクツ化が条件となる。そのため本研究では飲食器類の全ライフサイクルにおける環境負荷低減を具現する製品設計を課題に取り組んだ。その結果、製造・流通・使用の各ステージにおいて消費するエネルギー・資源と排出物の削減をはかるセラミックス製品の設計要因の策定、ならびに使用後の廃棄物減量をはかるエンドオブライフ・システムとしてリターナブル&リサイクルを考慮した容器(飲食器類)の製品試作を行った。一部製品については流通現場にてその有用性を検証した。

1. 緒言

京都議定書の発効にともなう温室効果ガス抑制のための企業排出量公表制度の施行や環境税導入の議論、廃棄物の処理費高騰と埋立地の逼迫及び拡大生産者責任とCSR等、産業活動の維持・発展のためには「環境課題解決」と「利潤拡大」の両立が重要な鍵となる。一方、安価な海外製品の台頭や原油価格の高騰で生産現場をとりまく状況は非常に厳しい。これらの解決には、拡大を続けるグリーン製品購入市場参入を視野に 製品の全ライフサイクルにおける環境負荷低減と使用者に有用な価値をもたらすエコプロダクツの設計・開発、及び 製造時の省エネルギー・省資源による二酸化炭素排出量とコストを削減する製品開発が課題となる。

本研究は 〃の課題対応による飲食器類の資源効率向上を目的とするものであり、環境配慮製品の設計・開発を第1報で述べ、製造時の省エネルギー・省資源を達成する廃食器粉砕物の高配合化素地作製研究を第2報で述べる。

2. 実験方法

2-1 研究のフロー

環境配慮設計と高配合素地作製の関係を図1に示す。一年目については、廃食器粉砕物を高配合した資源循環型素地の作製研究(第2報)及び環

境配慮製品開発における企画ならびに考慮すべき製品のライフサイクルステージにおける設計要因・条件の策定と具体設計(一次試作含む)を行い、二年目は高配合素地適合釉薬の開発及び素地・釉薬・環境配慮設計を統合した製品試作と環境負荷面の定量評価を行う。

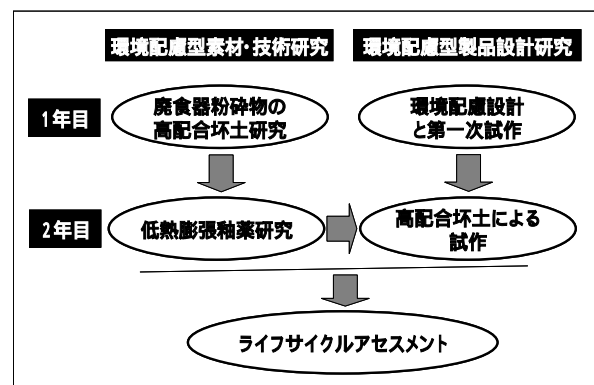


図1 研究のフロー

2-2 環境配慮製品の設計

1) 製品の環境配慮企画

製品の環境負荷低減には、製品のライフサイクルの初期ステージである製品企画・設計段階での環境配慮が最も効力を発揮する。製品企画では環境側面における重要な製品改善点として、使用後に廃棄される製品のリサイクル(高配合素地)

製造ステージで最大の環境負荷要因である焼成エネルギーの削減、有害な金属酸化物使用の排除、全ライフサイクルで環境影響が最大の使用ステージでの負荷低減（長寿命性や省エネルギー等）を設定した。

については、現在美濃焼業界グループが進める廃食器粉砕物 20% 配合の高配合化であり、これによって現状より低温焼成が可能になり(第 2 報)の化石系燃料消費による焼成エネルギーと二酸化炭素排出量の削減がうながせる。の有害な金属酸化物の排除、の使用ステージの環境負荷低減は製品設計で工夫を要する条件となる。

2) 製品の環境配慮設計の視点

顧客が食器類に要求する一般的な機能・物性(製品に不可欠なフェーズ)のクリアを前提に、環境配慮設計をおこなう上で考慮すべき視点を表 1 に示す。製造ステージでは、低影響材料を使用の上、製品質量を減らし且つ製品強度を増し、歩留まりを向上させ、無害な材で安全に作る形状設計、省資源・省エネルギーの視点から製造工程の簡略化等の工程の最適化が必要となる。流通ステージでは、運搬における積載効率の向上と破損品を減らす設計、輸送・包装・保管のコストを削減する設計等が条件となる。使用ステージでは、資源効率の向上に係わる丈夫さ、使用上の汎用性(和、洋、中華等)と多様な使途、収納性(保管)易洗浄に役立つ釉薬調達や形状設計が条件となり、易保守性の組み込みにより製品寿命が延び更に資源効率が向上する。廃棄ステージでは、易分別を促す材料表示や同一材での製造、また使用済み食器類のエンドオブライフ・システムの導入も省資源・省エネルギーの視点から重要となる。

表 1 食器類における環境配慮設計の視点

視点	資源有効利用	省エネルギー化	有害物質削減
製造	使用材料の削減と製品強度向上 再生材料の利用 生産性の向上	製造エネルギー削減(水・電気・ガス等) 製造工程簡略 生産性の向上	工程内での有害物質使用削減 安全な材料調達
流通	梱包剤の削減 再生材の使用	積載効率向上	クリーンな輸送手段
使用	消耗品消費削減 廃液・排水削減 長期間の使用と使用頻度の向上 易保守性	消費する電気・ガス・水の削減	排水がきれい 廃水、廃液が少ない
廃棄	材料分別容易 分解性向上 再生・再使用性	分解が容易 製品・部品の再利用	大気、土壌を害しない

(社)産業環境管理協会「エコデザインの基礎講座資料」より編集

3) 概念設計

以上をまとめると「作りやすく・使いやすく・戻しやすく、安全」な器ということになり、図 2 にその概念図を示す。

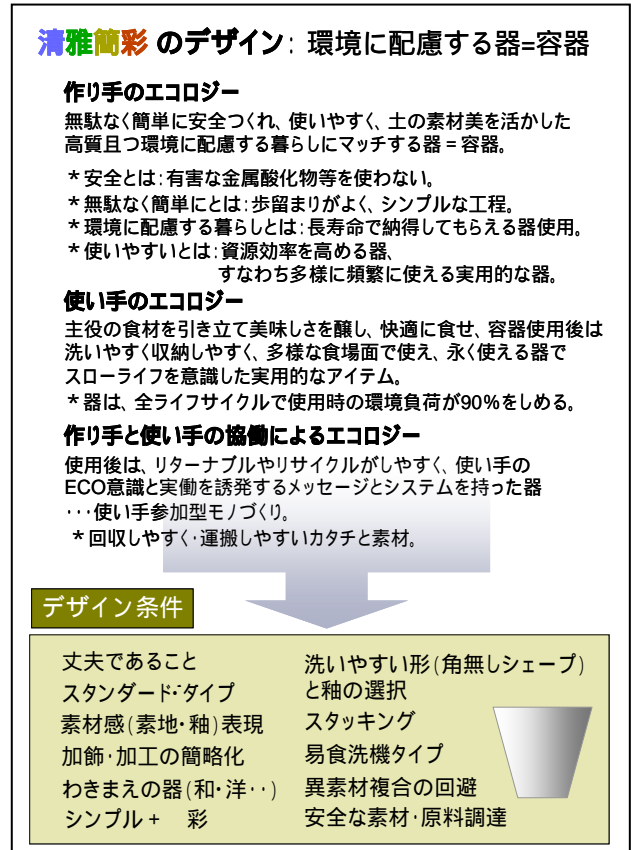


図 2 環境配慮型飲食器類の概念設計

3. 結果及び考察

3-1 環境配慮製品の設計要因の策定

環境配慮製品設計(製品企画と概念設計)のプロセスを踏まえた飲食器類の詳細な設計図(図 3. 飲食器類の具体的設計 部分)と策定した設計要因を以下に述べる。

の玉縁は衝撃に対する強度を増し、製品の損傷を低減し、長寿命化に役立つ。形状はスタッキングを可能にすることにより家庭や店内での保管効率や製品の動脈・静脈物流時の積載効率を増す。同じの表面処理は肌理の細かい光沢釉薬を施すことにより食器類の洗浄性を高める。外観の凹面彫刻は使用材料の削減と製品に審美性を醸し、製品の高質感を増し、永い生活使用のモチベーションにつながる。の隅の処理であるが、角にアールを付けることにより洗浄時の汚れの落とし易さにつながる。は食洗器使用時に高台に溜ま

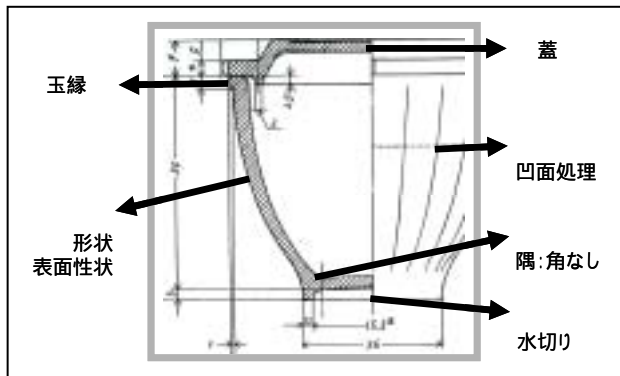


図3 飲食器類の具体設計

る水を排除するための水切り（カット）であり、洗浄後の乾燥を速める効果がある。の蓋を付けることにより、レンジや冷蔵庫における消耗材の消費削減につながり、スモールディッシュとしての汎用性を合わせ持つ。また蓋の縁と水切りを各々4ヶ所カットすることにより、業務用容器として使用する際に紐が掛かりやすく、ラッピングの効率に役立つ。形状の総体的な設計はスタンダードを基本とする。これは作り易さにつながり生産性の向上に役立ち、また使用時の用途の多様性や汎用性につながり使用頻度が増す。加飾は極力避け、工程の簡略化をはかると共に着色では環境への影響指標¹⁾が低い鉄系顔料の選定・使用を基本にする。用いる素地は低影響材料を選定する。

3 - 2 環境配慮製品の設計

1) 試作

試作は、プリンやケーキ菓子用の食器兼容器を2種（210cc & 100cc）に蓋兼ディッシュ（径75mm）を1種作製した。グリーンライフ21・プロジェクト参加企業が製作し、素地は同プロジェクトにおいて製造される使用済み廃食器の粉砕物（セルベン）を20%配合した坯土を用いた。釉薬は産地内で通常に使用される白磁釉と鉄系の飴釉を用いた（写真1）。

2) 試作品の評価

設計及び試作によって得る全ライフサイクルにおける環境負荷低減の定量化は次年度のLCA手法による評価となる。しかし製造者のコメントとして白磁と鉄系釉薬使用による安全面ならびに製造効率や積載面で良好な結果が得られ、製造工程の複雑化の回避による低コスト化が実現できた。使用ステージでは、スイーツ用リターナブル容器として実際に関西地区の流通現場にて実験販売し



写真1 . 飲食器類の試作

たが、関係者のコメントでは顧客のリサイクル製品に対する反応、パティシエのデザインやクオリティーに対する評価、また製品用途の多様性（スープやデザート等の食器として活用）、収納・保管面、洗浄面において問題はないという結果であった。廃棄ステージにおけるリターナブルならびにリサイクルとしての評価は本格的な販売活動を待つことになるが、絵付け・加飾がなく単一素材製品であるため何ら問題はなく、むしろ今後の消費者に対する製品情報のパブリシティやコミュニケーションが課題になる。

4.まとめ

製品設計上の環境配慮に加え、更なる資源効率向上のため、5回程度の容器使用（繰り返し使用）を設定したリターナブルシステムを流通現場にて訴求した。実際には回収、クリーニング、物流のためのエネルギー消費の定量的評価が環境側面からの良否を決するが、第2報の廃食器粉砕物の高配合化素地の作製研究とあわせ、一層の環境負荷低減が可能になるものである。

謝辞：本研究にあたって、実験販売等で（株）左近クリエイションには多大なご支援をいただきました。心より感謝いたします。

【参考文献】

- 1)（社）未踏科学技術協会、エコマテリアル研究会編“LCAのすべて”、工業調査会、49-51（1999）

セラミックス製品のライフサイクル・デザイン研究(第2報)

廃食器粉砕物の高配合化素地作製試験

水野正敏・長谷川善一・倉知一正

Life Cycle Design Study in Ceramics(II) - Preparation Test of Porcelain Bodies with Recycle Powder -

Masatoshi MIZUNO, Yoshikazu HASEGAWA and Kazumasa KURACHI

粘土 30mass%、廃食器粉砕物 70mass%の素地を作製し、廃食器粉砕物の粒度が焼成性状に及ぼす影響について検討した。その結果、平均粒径が 6 μ m 程度の廃食器粉砕物を使用すれば、1200 で磁器化し、120MPa 以上の曲げ強度を有する焼成素地が得られることがわかった。

1. 緒言

廃食器粉砕物(以下、リサイクル粉末と記す)を再原料化する場合、焼成素地の構成相等の特質を活かした素地設計が必要である。すなわち、リサイクル粉末は、粉砕粒子の一つ一つが融剤的作用と骨材的作用を微視レベルで併せもった原料である。このことは、粘土-長石-石英の3元系と同様な効果が、粘土-リサイクル粉末の2元系で得られることを示唆する。そこで、我々は粘土 10mass%、リサイクル粉末 90mass%からなる素地を作製し、この素地が 1100 の低温で磁器化し、さらに曲げ強度も 100MPa 以上を示すことを報告した¹⁾。しかし、この配合では成形性に難があり、実用に即するためには粘土を増やす必要がある。

本研究では粘土 30mass%、リサイクル粉末 70mass%の素地を作製し、リサイクル粉末の粒度が焼成性状に及ぼす影響について調べた。

2. 実験方法

出発原料としてリサイクル粉末及び粗粒石英を含有しない原蛙目粘土(水簸特級)を用いた。これらの化学組成を表1に示す。リサイクル粉末は図1に示すように結晶相としてムライト、石英を含有し、その割合は 13、12mass%(粉末 X 線回折による定量分析)であり、残りの 75mass%をガラス相が

占める。リサイクル粉末は多種の陶磁器製品を粗粉砕した後、ボールミルによって湿式粉砕(一部の粉砕物については水簸処理)して得た粒度の異なる4種の粉末を用いた。図2にこれら粉末の粒度分布曲線を示す。ここで、平均粒径は P1、P2、P3、P4 それぞれ 2.4、4.5、6.8、13.5 μ m である。

配合組成はリサイクル粉末 70mass%、原蛙目粘土 30mass%と固定し、リサイクル粉末(P1~P4)毎に、両者を水及び適量の分散剤(SN ディスパーサント 5040:サンノプロ製)とともにポットミルで3時間混合した。得られたスラリーを真空脱気した後、鑄込み成形によって 50mm x 50mm x 6mm t の角板の成形体を作製した。これらは電気炉を用いて 100 /h で昇温し、所定温度で1時間保持後炉内放冷する条件で酸化焼成した。

焼成素地の吸水率及びかさ密度を真空脱気によるアルキメデス法により測定した。強度は焼成素地を約 8mm 幅に切断した試験片を用いて、3点曲げ試験により測定した。

表1 使用原料の化学組成

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	K ₂ O	Na ₂ O	Ig.Loss
リサイクル	71.1	20.6	0.60	0.21	0.63	0.42	3.45	1.19	0.62
原蛙目粘土	47.6	35.3	1.39	0.80	0.17	0.26	0.50	0.08	13.56

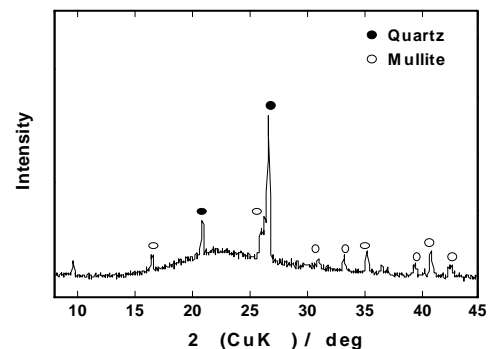


図1 リサイクル粉末のX線回折図形

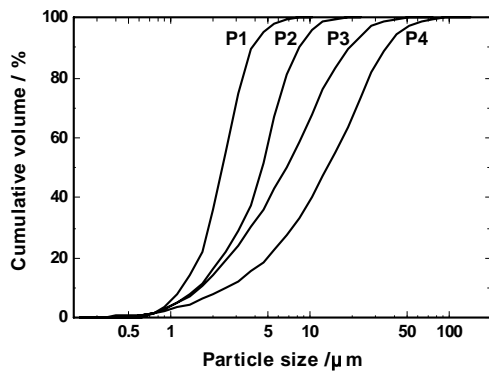


図2 リサイクル粉末の粒度分布曲線

3. 結果及び考察

図3に焼成温度に対するリサイクル素地のかさ密度の変化を示す。図中のB1、B2、B3、B4は、リサイクル粉末P1、P2、P3、P4をそれぞれ使用した素地である。B1素地の密度は1200で2.46g/cm³の最大値を示した後、温度上昇とともに緩やかに減少した。B2とB3素地の密度は焼成温度に対してほぼ同じように変化し、1250でいずれも2.42g/cm³の最大値を示した。B4素地の密度は1300においても2.32g/cm³と低く、密度はまだ上昇する傾向を示した。また、これらの素地の吸水率がほぼ0%になる温度は、B1で1150、B2及びB3で1200、B4で1250であった。

これらの結果は、使用したリサイクル粉末の粒径が大きくなるに従って焼結温度が上昇することを示している。既に報告したように、平均粒径約6μmのリサイクル粉末を90mass%、原蛙目粘土を10mass%配合した素地(以下90%素地と記す)では、1100で吸水率がほぼ0%、1150でかさ密度の最

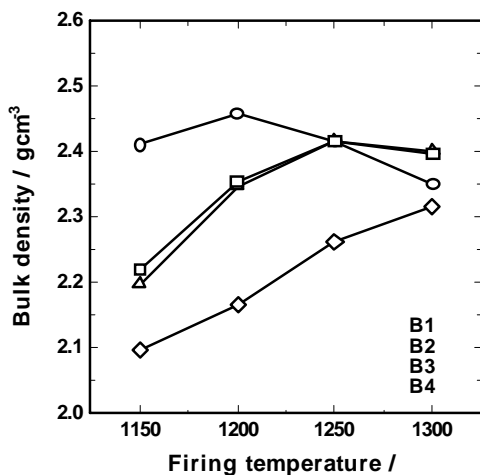


図3 焼成温度に対するかさ密度の変化

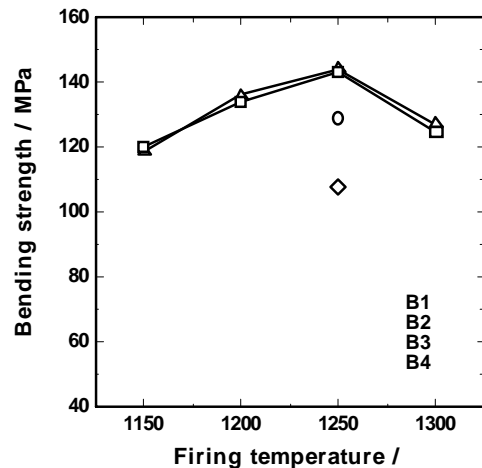


図4 焼成温度に対する曲げ強度の変化

大値2.45g/cm³を示した。これらの温度は、本実験におけるB3素地(90%素地と平均粒径がほぼ同じ)の温度よりも100低かった。

これらのことから、粘土-リサイクル粉末の2元系素地の焼結温度は、リサイクル粉末の粒度及び配合量の影響を受けることがわかった。

図4に焼成温度に対するリサイクル素地の曲げ強度の変化を示す。B2及びB3素地ともに、1150~1300の温度範囲において120MPa以上の曲げ強度を示し、特に1250では約140MPaの非常に高い値を示した。密度が減少中であるB1及び密度が増加中であるB4の1250においても、曲げ強度は129、108MPaの値を示した。市販磁器の無軸曲げ強度は約50~90MPa²⁾であり、本実験のリサイクル素地はこれら以上の強度が発現したことになる。

4. まとめ

リサイクル粉末を70mass%配合した素地において、リサイクル粉末の平均粒径を6μm程度にまですれば、1200で磁器化し、120MPa以上の曲げ強度を有する焼成素地が作製できることがわかった。

【参考文献】

- 1) 長谷川善一, 水野正敏, セラミックデータブック2004, 32, p76-79(2004)
- 2) 小林雄一, 大平修, 大橋康男, 加藤悦朗, セラミックス論文誌, 99, p495-502(1991)

飲食器加飾用インクジェットノズルの開発研究

柘植英明・横山久範・安達直己

鮮明度が高く安定した吐出が可能な無機顔料インク用の2流体ノズルの開発を目指し、今年度はバイモルフ型 piezo 素子によりバルブ開閉制御を行う2流体ノズルの設計を行った。ノズル本体については、エアーがインク経路へ逆流することなくインクを吐出できることを確認した。現在、バルブの開閉を行うためのニードルバルブの作製を行っており、今後ノズル本体に組み込んでニードルバルブ開閉によるインク吐出試験を行う予定である。

1. 緒言

当研究所では、平成14年からカップや皿にインクジェット印刷により直接絵付けができる加飾システムの構築を行ってきたが、画質については実用化のレベルに至っていない。その主な原因としては、ノズルの性能（制御性、安定性、解像度）等に問題があるために、安定して加飾を行うことができないことによる。そこで本研究では、従来のノズルよりも鮮明で安定した加飾を行うことができる新たな2流体ノズルの開発を目指している。本年度は、バイモルフ型 piezo 素子によってバルブ開閉制御を行う2流体ノズルの試作に取り組んだので、その概要を報告する。

2. 試作ノズルの概要

2-1 試作ノズルの構造

電磁ソレノイドは駆動力が弱いために、インクの沈降等に弱く、開閉制御が不能になることが多く、安定した加飾を長時間行うことはできない。そこで、バルブの開閉駆動に電磁ソレノイドより駆動力が大きい、バイモルフ型 piezo 素子を使用することにした。バイモルフ型 piezo 素子は図1に示すように板状の形状をしており、先端の変形量は素子の形状と電圧等に左右されるが、先端では0.5mm程度の変形量があるため、ノズルの開閉には十分利用可能である。

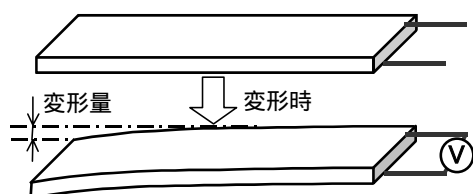


図1 バイモルフ型 piezo 素子

2-2 試作ノズルの制御方法

図2にシステム構成の概略図を示す。制御パソコンに装備した D/A 変換ボードから 0~6.6V の電圧を出力し、piezo 駆動アンプへの入力とする。piezo 駆動アンプでは、この入力に比例した 0~200V の電圧を出力して piezo 素子を駆動する。

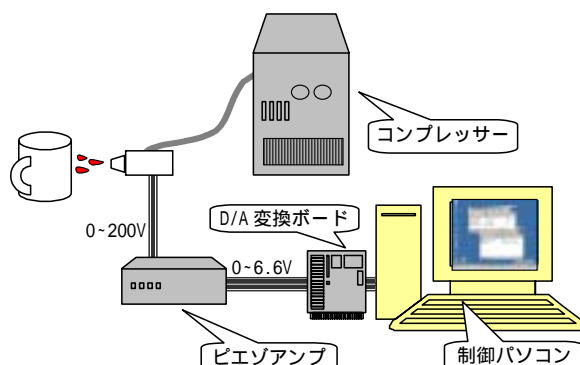


図2 システム構成の概略

3. 結果及び考察

試作したノズル本体について、エアーがインク経路へ逆流することなくインクを吐出できることを確認した。現在、バルブの開閉を行うためのニードルバルブの作製を行っており、作製後にノズル本体に組み込んでニードルバルブ開閉によるインク吐出試験を行う予定である

4. まとめ

バイモルフ型 piezo 素子を用いた2流体ノズルの設計・試作を行った。今後、ニードルバルブの作製および加飾ロボット取り付け用治具の作製等を行い、バイモルフ型 piezo 素子を用いた2流体ノズルの階調制御性能や応答性等を把握し、加飾ロボットに適用可能であるか検討を行っていく予定である。

擬似 Web3D による陶磁器製品意匠評価システムの開発

岩田靖三・柘植英明・小稲彩人

擬似 Web3D 技術を用いた陶磁器製品の表示部を搭載する意匠評価システムを開発することで、より洗練された製品開発を目指した意匠設計支援方法を提案する。その第一段階として、Web ブラウザを通して製品画像の回転・移動・拡大縮小などの操作を対話的に行うことの出来る表示部を作成した。又、所内イントラネット上に設置した Web サーバへ作成した擬似 Web3D データを配置した後、実際にクライアント PC から接続して Web ブラウザ上に表示させて、操作が可能であることを確認した。

1. 緒言

近年、情報発信の手段として Web 上に製品を掲載する機会が増加している。その中には、単なる静止画像だけではなく、製品を Web ブラウザ上で回転・移動・拡大縮小させて表示したり、アニメーションとして動画を表示したりすることも可能な Web サイトがある。これらの技術は「Web3D」と呼ばれ、この技術を用いて情報を提供している Web サイトも頻繁に目にするようになった。

実際に Web3D 技術を用いるには、3次元空間における形状データ(3D データ)が必要である。一方、通常流通している陶磁器製品のなかで、設計段階において積極的に 3D データを導入して評価を行い、最終段階において 3D データに基づいて製品を製作するという工程をたどって製作された製品は非常に限られている。3D データが最初から存在していない場合、陶磁器製品を Web3D として表示させるためには、2次元の設計図面や出来上がった製品を基にして、新たに 3D データを作成する必要がある。この作業には、高額なアプリケーションソフトウェアや計測装置、更に多くの労力を必要とするので、比較的商品単価が低く、規模の小さい陶磁器メーカーにとって、これらの機器の導入を決定してデータを作成することは容易でない。

しかし最近になって、3D データを必要としなくても Web3D 技術と似通った操作を可能とする、「擬似 Web3D(Web2.5D)」とも呼べる技術が開発された。擬似 Web3D はこれまでの Web3D と異なり、周囲から撮影した複数枚の実写画像を用いることによってデータを作成するので、視覚的な質感をそのまま表現することができる。

本研究では、この技術を用いた陶磁器製品の表

示部を搭載する意匠評価システムを開発することによって、より洗練された製品開発を目指した意匠設計支援方法を提案することを目的とする。

2. システム開発内容

システム内容を図 1 に示す。クライアント PC から Web サーバに対して閲覧の要求をした時、これに応じて、擬似 Web3D 表示部・製品紹介部・意向調査部の 3 つの主要部分から構成される画面を Web ブラウザ上に表示するように応答するシステムの開発をする。

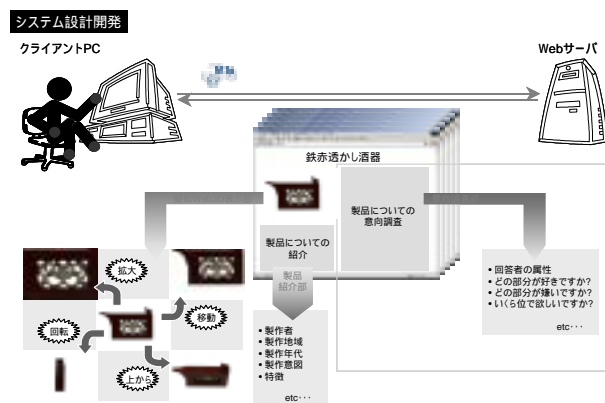
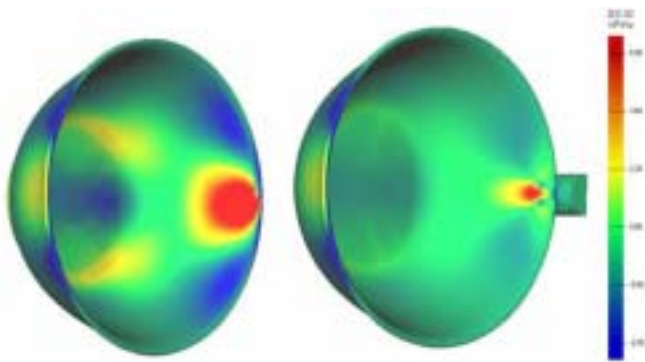


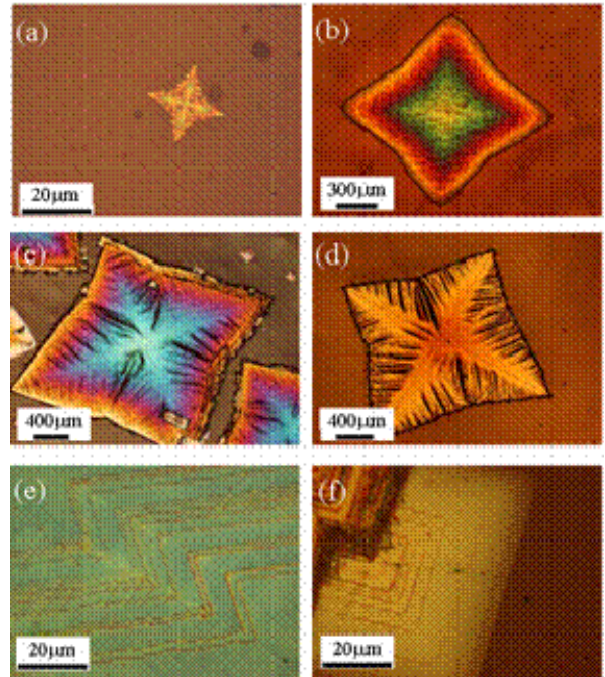
図 1 意匠評価システムの概要

3. 結果及び考察

実際に通信を伴う確認作業を行った。まず始めに、擬似 Web3D データを組み込んだファイルを開発用 PC から所内イントラネット上に設置し、Web サーバへアップロードした。その後、クライアント PC から Web サーバへ接続して Web ブラウザ上で閲覧したところ、マウスによる回転・移動・拡大縮小などの操作が可能であることを確認した。



P25 図1 荷重面モデル(左)とハンマーアセンブリモデル(右)の比較



P33 図2 虹彩結晶釉の顕微鏡写真
鉄虹彩結晶釉(a~c, e, f)
白虹彩結晶釉(d)



P31 図3 花瓶、香炉、燭台、茶湯器、仏飯器



P35 図2 蛭の器



P31 図4 偲ぶ装置「厨子」