

氏 名 渡辺隆

学位（専攻分野） 博士（工学）

学位記番号 総研大乙第 183 号

学位授与の日付 平成 20 年 3 月 19 日

学位授与の要件 学位規則第 6 条第 2 項該当

学位論文題目 核融合技術応用に基づく陶磁器焼成過程の研究

|        |        |                |
|--------|--------|----------------|
| 論文審査委員 | 主 査 教授 | 野田 信明          |
|        | 教授     | 佐藤 元泰          |
|        | 准教授    | 佐藤 国憲          |
|        | 教授     | 高山 定次          |
|        | 准教授    | 永田 和宏（東京工業大学）  |
|        | 教授     | 小澤 正邦（名古屋工業大学） |

## 論文内容の要旨

本論文は伝統的な陶磁器焼成の手法と、誘電体中の電磁波伝搬・減衰による加熱過程解明及び微視的な熱伝導過程の研究成果を結合して開発された新技術に関する成果をまとめたものである。マイクロ波加熱による陶磁器焼成過程のその場観察により、陶磁器の短時間焼成を実証した。核融合研究で培われたエネルギーの注入と閉じこめ研究とのアナロジーにより、マイクロ波焼成の原理となるマイクロ波選択加熱の観察と迅速焼成のメカニズムを解明した。マイクロ波焼成法は、短時間・省エネルギー・低コストの焼成と品質の向上、CO<sub>2</sub>排出量削減が期待でき、環境問題への対応と陶磁器産業が抱える様々な課題に対応できることを明らかにした。マイクロ波焼成過程の解明に基づき、環境負荷低減につながる短時間・均質加熱焼成プロセスの最適化、実用可能な工業炉開発、また、陶磁器の循環再生原料を使用した低温焼成技術の開発とその焼成メカニズムの解明で成果を得た。結果として循環型環境社会に対応できる環境負荷低減型の焼成技術に見通しがつき、マイクロ波の選択加熱を利用する新たな材料開発の可能性を開いた。

第1章で研究の背景と目的を述べた後、第2章では陶磁器のマイクロ波焼成の理論的考察と焼成過程のその場観察について記述した。この部分はマイクロ波焼成の技術開発の基礎について述べており、マイクロ波焼成と在来型の焼成の違いを学術的に研究した結果をまとめている。

マイクロ波により物質は自己発熱をすることが知られている。陶磁器のマイクロ波焼成では焼結物内部まで直接にマイクロ波エネルギーを投入でき、その誘電損失として熱エネルギーに変換され自己発熱し焼成できることと、その自己発熱は体積型発熱であることを理論的に考察した。さらにその実証のために、マイクロ波シングルモードキャビティとCCDカメラ付き顕微鏡を組合せ、その場観察を行うための高温型の顕微鏡観察方法を案出した。これを使って、マイクロ波による焼成過程を調べ、従来の熱伝導型加熱の赤外炉焼成過程と比較して、従来の熱伝導による磁器焼成とは異なる体積型の自己発熱により陶磁器がマイクロ波により短時間で焼成できることを実証した。

第3章では陶磁器のマイクロ波焼成の実証実験について述べている。第2章で行ったマイクロ波焼成の理論的考察を基に、実地応用を目的として実験を行った。マイクロ波焼成は2時間で1320℃までの昇温を達成し陶磁器を焼成することが可能であった。様々な素地(きじ)と伝統的釉薬から量産用陶磁器釉薬について、従来ガス炉と同等に焼成することができた。焼成歪みは従来ガス炉焼成より小さくなる良好な結果を得た。また、上絵付け・イングレーズ・下絵付けの絵付け焼成も可能であり、鉛・カドミウムの溶出はなく、金・プラチナの焼成も可能であった。炉内の温度分布は、従来ガス炉に比較して6℃と小さくなり(従来ガス炉;38℃)、還元焰焼成時の雰囲気のみならず均一に焼成が

できた。さらに、生素地および施釉直後の吸水した製品の乾燥および焼成ヒートカーブを設定し、短時間で乾燥・焼成できることも確認ができた。

第4章～第5章ではマイクロ波焼成を工業的に可能とするマイクロ波-ガス複合炉の開発をについて述べる。複合炉では、酸化焰焼成も還元焰焼成のいずれの場合も従来ガス炉と同等の焼成ができた。従来ガス炉での酸化焰焼成では10.5時間以上、還元焰焼成では11時間以上の焼成時間を要したが、それぞれ4時間への短縮が可能であった。炉内温度分布は36℃以内（従来ガス炉は50℃）となり、雰囲気のみも見られず、均質な焼成が可能であった。「短時間・省エネルギー・均熱・均質・低燃費」の経済性の高い工業炉としての実証ができた。さらに、複合炉の実用的な可能性を拡大する実践的な評価を行った。強制冷却試験では、1320℃まで4時間（キープ1時間を含む）の焼成においても6時間の強制冷却が可能であり、4時間焼成-6時間冷却の10時間焼成サイクルにより1日2回の焼成が可能であることが確認できた。10時間焼成サイクルでは、焼成品に欠点の発生はなく、均一な発色と釉薬の溶けが得られ良好な品質の製品を焼成することができた。

大物焼成試験では、マイクロ波による自己発熱とガス燃焼による雰囲気温度の制御により均質加熱が可能となった。大物の焼成時間は、従来ガス炉の1/4以下の2時間～9時間であった。窯詰め状況が及ぼす製品への影響についても調べ、磁器製品について積載間隔を最適化し、3.5時間の短時間焼成を実現した。歪みの発生はなく、裏底部の釉薬は綺麗に溶け、正常に焼き上げることができた。従来ガス炉で熱が廻りきらずに発生する歪みや、裏底部の釉薬の溶けの問題発生にも対応できることが確認できた。

第6章ではマイクロ波焼成によるエネルギー評価と環境負荷の定量的検討を行った。開発した炉について消費エネルギーの測定および焼成コストの算出とCO<sub>2</sub>排出量の算出を行い、マイクロ波焼成が環境負荷の少ない焼成技術であることを証明した。マイクロ波炉焼成では従来ガス炉焼成と比較し消費エネルギーは1/5、焼成コストは1/2となった。また、マイクロ波-ガス複合炉では、消費エネルギーは1/4、焼成コストは1/3であることが確認できた。陶磁器のマイクロ波焼成とマイクロ波-ガス複合炉焼成における環境負荷の定量（LCA）を行った結果、従来ガス炉焼成に比べCO<sub>2</sub>排出量はそれぞれ1/3以下となり、マイクロ波焼成が環境負荷の小さい焼成技術であることを実証できた。

第7章ではマイクロ波による環境負荷低減材料の開発と選択加熱の観察による迅速焼成のメカニズムの解明について述べている。一度焼成した磁器は、焼成前の生原料よりマイクロ波による発熱特性に優れているので、焼成した磁器を粉砕して原料に使用することにより、通常の焼成温度より230℃低い1050℃で低温焼成が可能になった。陶磁器廃材の再利用により、CO<sub>2</sub>排出量と使用原料を低減できる循環型環境社会に向けた材料と焼成技術の開発を行うことが

できた。

同じ成分の陶磁器材料でも一度焼成するとマイクロ波吸収が大幅に強くなる。その機構を学理的に検証した。陶磁器の原料には、長石の微細分が含まれている。長石は鉱物結晶であるが、焼結すると熔融してガラス化する。同じ成分であっても結晶状態とガラス化後では、電磁波の吸収に大きな差が出ることを、長石微粒子またはガラス微粒子を混合した試験片をそれぞれ作製し、マイクロ波による加熱速度の差を測定することによって検証した。また、ガラス微粒子と磁器成分を混合した試験片を作成し、加熱される状況を顕微鏡と分光分析装置を組み合わせた精密サーモグラフィ装置を使ってその場観察した。ガラス粒子が選択的に加熱され、粒子サイズ程度のホットスポットを形成する。ホットスポットの温度がガラスの融点を超えれば、周辺の粒子中に液相となって拡散する。全粒子の温度が均一でなくても、液相焼結が進行し低温で迅速な焼成が可能となる。本実験は、誘電体に微視的なスケールで熱的非平衡が存在することを実証した世界で最初の実験である。この現象を使うことにより、マイクロ波による新たな材料創成に道を開く研究として評価されている。

## 論文の審査結果の要旨

核融合研究で培われた高出力マイクロ波技術およびエネルギー閉じ込め研究と地域の主要産業である陶磁器・セラミック技術との融合により、マイクロ波焼成に関する新しい技術シーズが生まれた。焼成体を囲む断熱壁内面に同等の吸収特性をもつ薄い層を配置する熱障壁の概念を導入し、焼成体の表面における熱平衡を実現するものである。この技術シーズを基にして、平成13年に地域新生コンソーシアム研究開発事業が開始された。渡辺氏は土岐市立陶磁器試験場の中核メンバーとしてこれに参画し、マイクロ波による陶磁器焼成技術の確立とその実用化に大きく貢献した。本論文はその事業において同氏が中心になって進めたマイクロ波陶磁器焼成法と焼成炉開発に関わる研究の成果、及びコンソーシアム終了後の16年以降に同氏が進めた再生素地利用によるマイクロ波焼成研究の成果をまとめたものである。

従来の陶磁器焼成が焼成体の外部から熱を加え、内部への熱伝達によって材料の変化をもたらすのに対し、マイクロ波焼成は電磁波のエネルギーが焼成体内部に分布する誘電物質に吸収され、マクロ的に均一な内部からの加熱による焼成法である。内部におけるマイクロ波吸収はミクロ的には不均一となるが、本研究の特徴の一つはデジタル顕微鏡導入によるその場観測の手法をとり、マイクロ波吸収と焼結過程をミクロな観察で裏付けたところにある。マイクロ波加熱を応用することで、焼結過程を従来加熱法の1/5の時間に短縮し、省エネルギー効果を実証した。

実用的なマイクロ波焼成炉開発に関しては、焼成過程の制御と最適化、絵付け製品の焼成試験、従来法による製品との比較研究を6種類の陶磁器素地、30種類の釉薬について系統的に行っている。その結果従来法に比較して焼成歪みが小さく、絵付けについても従来法と同等以上の質が得られることを示すとともに、焼成時間の短縮とエネルギー消費量の大幅な抑制を実証した。さらに工業的規模の生産炉開発、大型製品焼成、強制冷却法開発を実施し、マイクロ波焼成炉の工業的基盤確立に成功している。論文ではさらに省エネルギー効果及びCO<sub>2</sub>抑制効果の定量的分析を行い、マイクロ波焼結法が従来法に比して環境負荷を大きく低減できる新しい手法であることを明らかにしている。核融合研究で培われた高出力マイクロ波技術およびエネルギー閉じ込め研究と地域の主要産業である陶磁器・セラミック技術との融合により、マイクロ波焼成の実用化へ道が現実的に切開かれたことになる。本論文の第2章～第6章は以上の成果をわかりやすくまとめている。

渡辺氏は、使用後廃棄された材料を再利用する「資源循環型陶磁器焼成」へのマイクロ波焼成法応用を着想し、16年以降その研究を進めてきている。一度焼成した陶磁器を粉碎した原料(再生素地と呼ぶ)の成分は、焼成過程を経ない生素地と全く同一である。にもかかわらず、マイクロ波を用いると、再生素地は生素地に較べて迅速に加熱できることを同氏は発見し、その原因を明らかにする実験を行った。陶磁器素地中には、長石と呼ばれるアルミナシリカ系の化合物結晶が含まれているが、1150℃以上に加熱するとこの長石が熔融しナトリウム・カリウムを含むソーダガラスになる。光学顕微鏡と2次元分光器を組み合わせた複合型の計測装置を使うことにより、ガラス相中に10-100ミクロンの微少な加熱コアが発生し、ミクロスケールの熱非平衡過程を生じることを見出した。すなわちこのアルカリ金属を含むガラス相のマイクロ波吸収率が長石という結晶に比較して大き

く、マイクロ波焼成がより効果的に働き、従来加熱法と比較して 200℃ほど低い温度で焼成が可能になる。これは廃棄された陶磁器材再利用をマイクロ波利用でさらに効率的に行う道を開いたことになる。本論分の第7章にはこの成果が記述されている。

これらの研究で検証されたマイクロ波電磁界と物質中の電子・イオンとの直接相互作用、成分別の加熱選択制による微視的非平衡という特質は、陶磁器のみならず、あらゆる材料のマイクロ波加熱に適用可能な基礎的現象であり、その理解と工学的応用に道を開いたことは極めて高く評価できる。

以上に述べたように、本論文はマイクロ波陶磁器焼成研究の成果を包括的にまとめたものとなっており、学術、工学応用の両面において高い価値を持ち、学位論文にふさわしいものと評価する。