

核融合技術応用に基づく陶磁器焼成過程の研究

渡 辺 隆

博士（工学）

総合研究大学院大学
物理科学研究科
核融合科学専攻

平成19年度
(2007)

The studies for sintering process of ceramics by the application of fusion engineering

Abstract

In this study, a new process of ceramics sintering was developed by combining “Traditional ceramics sintering technique” and “Research on physics of electromagnetic wave propagation in dielectric substance, its heating process due to absorption, and microscopic thermal conduction process in micron scale”. Theoretical consideration was given to the fact that ceramics could be sintered by volumetric self-heating under microwave irradiation, followed by substantiation of rapid sintering of ceramics by In-situ observation of sintering process by microwave, using a newly devised high temperature microscope. The process of selective heating, which was the principle of microwave sintering, was observed to investigate the mechanism of rapid sintering by applying analogy of research results on injection and confinement of energy fields cultivated through nuclear fusion research. Microwave sintering of ceramics was conducted using the principle. In microwave sintering of ceramics, an improved sintering quality at a shorter sintering time, with lower energy consumption, and at lower cost can be expected, as compared to traditional sintering methods. It is also expected that it leads to reduced environmental load by decreasing the CO₂ emission, leading to possible solutions for various problems of ceramics industry and environment.

In this study, the following agenda were examined.

- Analysis of sintering process of ceramics by microwave
- Development of rapid and uniform sintering process to decrease environmental load
- Development of industrial furnace for practical use
- Development of the technique for the low-temperature sintering using the recycled porcelain
- Analysis of the mechanism of the low-temperature sintering

The environmentally friendly sintering technology that was compatible with a sustainable recycling society could be developed in the microwave sintering of ceramics. It was concluded that a new material could be developed by utilizing the selective heating by microwave.

Key words

Microwave, Ceramics, Sintering, Selective Heating, Industrialization, Environmentally-friendly, Recycling

要 旨

本研究は、「伝統的な陶磁器焼成の手法」と「誘電体中の電磁波伝搬とその減衰による加熱過程の解明、ミクロンスケールの微視的な熱伝導過程の物理学的研究」を結合して、新しい陶磁器焼成技術を開発したものである。陶磁器材料がマイクロ波にて自己発熱し焼成できる理論的考察を行い、マイクロ波加熱による高温型顕微鏡を案出し焼成過程のその場観察により、陶磁器が短時間で焼成できることを実証した。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って、マイクロ波による陶磁器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、その原理を使って陶磁器のマイクロ波焼成を行った。マイクロ波による陶磁器焼成は、短時間・省エネルギー・低コストの焼成と焼成品質の向上が期待できる焼成方法であり、あわせて CO₂ 排出量を削減して環境負荷を低減させることが期待でき、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検討した。

本研究では、マイクロ波による陶磁器焼成のプロセスの解明に基づき、環境負荷を低減できる短時間・均質加熱焼成プロセスの開発と、実用可能な工業炉の開発をし、また、マイクロ波焼成による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をすることを目的とし、以下の 1～5 の検討を行った。陶磁器のマイクロ波焼成において持続可能な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の開発をすることができ、また、マイクロ波の選択加熱を利用した新たな材料開発が可能である結論を得た。

1. 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（第 2 章）

本章は、陶磁器の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であり、マイクロ波焼成の技術開発の基礎となる部分である。

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成物内部まで直接にマイクロ波エネルギーを投入できる。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。さらにこれを実証するために、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、焼成過程の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検証した。

2. 陶磁器のマイクロ波焼成の実証実験（第 3 章）

第 2 章で行ったマイクロ波焼成の理論的考察を基に、実地の応用をするための実験を行った。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・イングレース・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。

3. 陶磁器焼成用マイクロ波生産炉の開発（第4章～第5章）

第二章で得られたマイクロ波焼成技術を基に、マイクロ波焼成を工業的に可能とするマイクロ波とガス炉を複合させたマイクロ波－ガス複合炉の開発を行った。

マイクロ波－ガス複合炉では、酸化焰焼成も還元焰焼成も陶磁器を4時間で、従来ガス炉と同等に焼成できた。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に比べ、短時間焼成が可能であった。また、炉内温度分布は還元焰4時間焼成で36℃となり実用範囲内であり、雰囲気のみならず見られなかった。従来ガス炉の50℃に比べ、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、マイクロ波－ガス複合炉の生産現場で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、投入するマイクロ波エネルギーとガスエネルギー量を調整して、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を行うことができ、均質加熱が可能となった。花瓶・大型罫子・風呂桶などの大物の焼成が可能であった。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、磁器製品について積載間隔を詰めた方法で窯詰めをして、3.5時間の短時間焼成をした。歪みの発生はなく裏底部の釉薬は綺麗に溶け、問題なく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。

4. 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（第6章）

開発したマイクロ波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CO₂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て、マイクロ波の迅速焼成により、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

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CO₂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。

5. 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（第7章）

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、CO₂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。

そして、同じ成分の陶磁器材料でも一度焼成すると、なぜマイクロ波吸収が大幅に強くなるのか、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、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、ソーダガラス微粒子を混合した試験片を作成し、マイクロ波により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。ソーダガラスを混合した試験片では、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ことが確認できた。このホットスポットの温度がガラスの融点を超えれば、マイクロ波の吸収が小さく温度が低い周辺の粒子中にガラスが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。マイクロ波加熱が在来の加熱の熱源の置き換えではないことを実験的に証明したものである。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。

用語解説

陶磁器 と 素地^{きじ}

粘土・珪石・長石を原料とし $\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$ を主成分に、 $\text{Na} \cdot \text{Ca} \cdot \text{K} \cdot \text{Mg}$ などのアルカリ溶融成分と $\text{Fe} \cdot \text{Ti}$ などの微量成分より構成され、 $1200 \sim 1350^\circ\text{C}$ で焼成できるように調合された本体を素地と呼び、素地にガラス質の釉薬を施した材料。食器・磚子・衛生陶器・タイル・絶縁部品などの製品に使用される。白色で透光感がありたたくと清音がするものを磁器、有色でたたくと鈍い音がするものを陶器と大別される。

釉薬 伝統的釉薬・量産用釉薬

釉薬は、素地と同じ材料により構成され、素地とは比率を変えて SiO_2 主体のガラス質に調整される。調合により、光沢状のガラス面・結晶状のマット面、顔料の添加により色付けがされる。表面保護・意匠の創造・吸水止めのために施釉される。

古代中国・安土桃山時代以来の陶器用釉薬を伝統釉と呼び、現代の工業生産品で使用する釉薬を量産用釉薬と区別した。

焼 成

陶磁器材料の主成分 $\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$ の融点より低い温度で粒子を反応・結合する加熱工程をいう。焼成により長石と珪石はガラスとなり、粘土はムライトとなる。最終的にはガラス層がムライトと溶け残った珪石の隙間を埋めてボディを焼き締める反応をいう。主にガス炉が使用される。

焼成温度 焼成パターン

陶器は $1200 \sim 1280^\circ\text{C}$ 、磁器は $1250 \sim 1350^\circ\text{C}$ で焼成する。工業では12時間から36時間の焼成を行う。

酸化焰焼成 還元焰焼成

ガス炉焼成を行う場合に、燃焼させるガス流量と空気量を調整して、酸素リッチで焼成する場合を酸化焰焼成という。 950°C 以上の温度で、供給する空気量に比べガス量を過多にして不完全燃焼をさせCOガスを発生させながら焼成する方法を還元焰焼成という。素地・釉薬中に含まれる鉄・銅等の金属酸化物中の酸素を燃焼（COガスの CO_2 化）のために奪い取ることで、金属酸化物の発色をコントロールするために行う操作。酸化焰焼成では発色が安定するが、還元焰焼成では還元濃度がバラツキやすく発色が不安定となるが、焼き物に味わいが生まれる。また、酸化焰焼成は 1280°C 以上の高温焼成では温度が上昇しにくくなり、還元焰焼成では温度制御と還元濃度制御を同時に行う難しさがある。還元濃度（CO濃度）は、焼成中の炉の中より雰囲気ガスをアルミナ製パイプで吸引し測定した。1～6%で管理した。

絵付け 上絵付け・イングレーズ・下絵付け

加飾のための絵付けには上絵付け・イングレーズ・下絵付け技法がある。焼き上げた本体に加飾し700～800℃で再焼成する上絵付け、焼き上げた釉薬表面に絵付けをし1150～1240℃で再焼成することにより釉薬中(glaze)に絵の具を沈み込ませる技法をイングレーズ、焼成前の素地表面に絵付けを行い釉薬を掛けて焼成する技法を下絵付けという。低温焼成の上絵付けでは顔料は鮮やかに発色するが、摩耗性や耐酸性に劣る。高温焼成では顔料の色数が限定されるが、耐摩耗性・耐酸性に問題がない。イングレーズでは無地の素地を在庫すれば、注文に応じて加飾を効率よく行える。上絵付けはガス燃焼の水分を嫌うために、電気炉焼成が用いられる。

鉛・カドミウム

食器には、食品衛生法で定められている鉛・カドミウムの耐酸試験がある。上絵付けを700～800℃の低温で焼成するために融点を下げるためと、光沢を良くするために鉛が使われる。また、発色材としてカドミウムが使われる。溶出を基準以下に抑えることが必要である。

金・プラチナ

絵付け用顔料として金属の酸化物が主に使用されるが、金・プラチナは金属そのままで使用されるため、マイクロ波の照射の影響を調べる必要がある。

大 物

一般的に陶磁器製品のサイズは、食器では直径φ300mm（厚み2～10mm）、罎子では30～80mm、タイルでは50～300mm以下であり、これ以上のサイズでは成形乾燥時の収縮による割れ・焼成時の熱膨張差による割れが発生しやすく難しくなる。

生の磁器・リサイクル磁器

第6章・第7章において、焼成前の磁器材料と焼成後の磁器材料を区別するために、焼成のために調合された焼成前の材料を“生の磁器”とし、その生の磁器を1250℃で酸化焼成し粉砕したパウダーを”リサイクル磁器”と定義して使用した。

本研究で取り上げた陶磁器製造時の外観性状の欠点

アワ	釉薬が過溶のために生じた釉薬中の気泡
ピンホール	釉薬面に現れた針で刺したような小さな穴、アワがはじけた跡
ジワ	釉薬面に極微のピンホールが無数に発生したもの
粗面	ジワより大きな窪みが無数に発生したもの
貫入	釉薬のヒビ割れ
結晶	釉薬中の成分が肉眼で見分けられる程度の大きさの結晶になって析出したもの
火色	焼き物の表面にほの赤く現れた斑紋

目 次

要旨	I
目次	VII
第1章 概要	
1-1 研究の背景	1
1-2 従来の研究	2
1-3 マイクロ波焼成技術の概要	4
1-4 研究の目的と概要	5
1-5 マイクロ波焼成を行う陶磁器の評価について	6
参考文献	9
第2章 マイクロ波による陶磁器焼成の理論的考察と検証	
要旨	14
2-1 マイクロ波焼成における巨視的な熱平衡と微視的な熱非平衡	14
2-2 マイクロ波による焼成の理論的考察	15
2-3 陶磁器のマイクロ波焼成	17
2-4 マイクロ波による陶磁器焼成の微視的観察	19
2-4-1 マイクロ波による陶磁器焼成の微視的観察の意義	19
2-4-2 実験方法	20
2-4-3 マイクロ波焼成の温度特定方法	22
2-4-4 結果と考察	23
2-4-5 結論	27
2-5 マイクロ波焼成と従来焼成の比較	32
2-5-1 実験方法	32
2-5-2 結果と考察	33
2-5-3 結論	36
2-6 総括	36
参考文献	37
第3章 陶磁器のマイクロ波焼成の実証試験	
要旨	39
3-1 緒言	39
3-2 陶磁器の焼成時間と焼成温度	40

3-2-1	焼成サンプルの準備	40
3-2-1-1	石膏型の製作	40
3-2-1-2	サンプルの成形と素焼き	40
3-2-1-3	メーカーサンプルの選定	41
3-2-1-4	釉薬の調整	41
3-2-1-5	従来ガス炉によるサンプルの焼成	42
3-2-1-5-1	従来ガス炉による焼成	42
3-2-1-5-2	メーカーガス炉による焼成	43
3-2-2	マイクロ波焼成における焼成時間と温度の最適条件の検討	43
3-2-2-1	マイクロ波炉の構造	43
3-2-2-2	マイクロ波炉内の温度測定	44
3-2-2-3	棚板の選定	45
3-2-2-4	ヒートカーブの設定	46
3-2-2-5	炉内温度分布の測定	48
3-3	陶磁器素地と釉薬の焼成	49
3-3-1	マイクロ波炉による陶磁器サンプルの焼成	49
3-3-1-1	伝統釉サンプルの焼成温度	49
3-3-1-2	メーカーサンプルの焼成温度	49
3-3-1-3	マイクロ波焼成品の評価	50
3-3-1-3-1	伝統釉サンプルの外観性状	50
3-3-1-3-2	メーカーサンプルの外観性状	50
3-3-1-4	釉薬の調整試験	57
3-3-1-4-1	透明釉	57
3-3-1-4-2	織部釉	57
3-3-1-4-3	白マット釉	58
3-3-1-4-4	イラボ釉	58
3-3-1-4-5	志野釉	59
3-3-2	焼成品質の評価	59
3-3-2-1	焼成歪みの評価（真円度の測定）	59
3-3-2-2	吸水率の評価（磁器・陶器素地）	62
3-3-2-3	マイクロ波吸収特性と陶磁器の焼き締まり	62
3-3-2-4	耐熱性試験	64
3-3-2-4-1	スポーリング試験	64
3-3-2-4-2	線熱膨張係数	64
3-3-2-5	曲げ強度	64
3-3-3	陶磁器素地焼成に関する水分の影響	65

3-3-3-1	製品中の水分量によるマイクロ波焼成の影響	65
3-3-3-2	生素地乾燥（素焼き）パターン	66
3-4	絵付製品の焼成	68
3-4-1	上絵付の焼成	68
3-4-1-1	有鉛・有カドミウム絵具の試験	69
3-4-1-1-1	有鉛・有カドミウム絵具の発色試験	69
3-4-1-1-2	焼成温度と鉛・カドミウムの溶出量の関係	70
3-4-1-1-3	鉛・カドミウムの単色絵具による溶出試験	70
3-4-1-2	無鉛・無カドミウム絵具の発色試験	71
3-4-1-3	和絵具の発色試験	71
3-4-1-4	金・プラチナの発色試験	72
3-4-1-5	重ね焼き試験	73
3-4-2	イングレーズの焼成	74
3-4-2-1	焼成温度と外観性状および鉛・カドミウムの溶出量の関係	74
3-4-2-2	単色絵具による鉛・カドミウムの溶出試験	75
3-4-2-3	カラーチャートの発色試験	76
3-4-3	下絵付の焼成	77
3-5	マイクロ波焼成の評価	77
3-5-1	還元焰焼成の検討	77
3-5-1-1	還元焰焼成における CO ガス濃度測定と分布の把握	77
3-5-1-2	還元焰焼成の検討	78
3-5-1-2-1	LPG 燃焼による還元方法における打ち込みガス量の測定	78
3-5-1-2-2	CO 混合ガスによる還元方法の検討	79
3-5-1-3	CO 混合ガスによる還元焰焼成に対する結論	79
3-5-2	マイクロ波吸収特性の評価	79
3-5-2-1	陶磁器素地のマイクロ波吸収特性の評価	79
3-5-2-2	棚板のマイクロ波吸収特性の評価	80
3-6	総括	81
	参考文献	83

第4章 陶磁器焼成用マイクロ波生産炉の開発

	要旨	85
4-1	緒言	85
4-2	マイクロ波ーガス複合炉の開発	86
4-2-1	マイクロ波ーガス複合炉のコンセプト	86
4-2-2	マイクロ波ーガス複合炉の仕様	86

4-2-3	マイクロ波ーガス複合炉の設計	87
4-2-4	マイクロ波ーガス複合炉の熱計算	87
4-2-5	発振器の検定	87
4-2-5-1	反射波	87
4-2-5-2	発振器の発熱	88
4-2-6	マイクロ波ーガス複合炉の構造評価	88
4-2-6-1	マイクロ波漏洩	88
4-2-6-2	耐久性	88
4-2-7	棚板の選定	89
4-3	マイクロ波ーガス複合炉による陶磁器の焼成	91
4-3-1	陶磁器素地と釉薬の焼成	91
4-3-1-1	焼成サンプルの選定	91
4-3-1-2	伝統釉サンプルの外観性状	92
4-3-1-3	メーカーサンプルの外観性状	92
4-3-1-4	メーカーの従来ガス炉との焼成結果比較	98
4-3-2	下絵付けの発色	99
4-3-3	焼成品の品質	99
4-3-3-1	吸水率	99
4-3-3-2	耐熱性 スポーリング試験	100
4-3-3-3	耐熱性 線熱膨張係数	100
4-3-3-4	曲げ強度	100
4-4	マイクロ波ーガス複合炉における焼成評価	101
4-4-1	ヒートカーブと温度分布	101
4-4-2	焼成雰囲気分布	102
4-4-3	マイクロ波ーガス複合炉におけるマイクロ波の効果	103
4-5	マイクロ波連続炉による陶磁器の焼成試験	104
4-5-1	マイクロ波連続炉の仕様	104
4-5-2	マイクロ波連続炉の焼成サンプル	104
4-5-3	ヒートカーブの設定と焼成温度	104
4-5-4	マイクロ波連続炉による陶磁器の焼成	108
4-5-4-1	釉薬と素地の外観性状（伝統釉サンプルとメーカーサンプル）	108
4-5-4-2	耐熱性 スポーリング試験	109
4-6	総括	109
	参考文献	110

第5章 マイクロ波ーガス複合炉の活用

要旨	111
5-1 緒言	111
5-2 マイクロ波ーガス複合炉の強制冷却試験	113
5-2-1 焼成サンプル	113
5-2-2 窯詰めと焼成重量	113
5-2-3 焼成パターンと焼成温度	113
5-2-4 冷却結果と考察	114
5-2-5 結論	116
5-3 マイクロ波ーガス複合炉による大物焼成試験	116
5-3-1 大物焼成の内部温度と表面温度測定	116
5-3-1-1 焼成サンプルと温度測定	116
5-3-1-2 焼成パターン	117
5-3-1-3 内部温度と表面温度測定の結果と考察	117
5-3-2 大物の焼成試験	118
5-3-2-1 焼成サンプル	118
5-3-2-2 サンプルの窯詰め	119
5-3-2-3 焼成パターン	119
5-3-2-4 サンプルの焼成結果	119
5-3-2-5 焼成後の炉の状況	121
5-3-2-6 結論	122
5-4 窯詰め状況が及ぼす製品への影響	122
5-4-1 焼成サンプル	122
5-4-2 窯詰めと焼成重量	122
5-4-3 焼成パターンと焼成温度	123
5-4-4 焼成結果	123
5-4-5 結論	124
5-5 総括	125
参考文献	126

第6章 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

要旨	127
6-1 緒言	127
6-2 陶磁器焼成の消費エネルギー量の測定と焼成コストの算出	128
6-2-1 マイクロ波炉による消費エネルギー量の測定と焼成コストの算出	128
6-2-2 マイクロ波炉による上絵付け焼成の消費エネルギー量の測定と焼成コストの算出	129
6-2-3 マイクロ波ーガス複合炉による消費エネルギー量と焼成コストの算出	130

6-3	マイクロ波焼成の環境負荷の定量－CO ₂ 排出量	132
6-3-1	マイクロ波炉による陶磁器焼成のCO ₂ 排出量	132
6-3-2	マイクロ波炉による上絵付け焼成のCO ₂ 排出量	133
6-3-3	マイクロ波－ガス複合炉による陶磁器焼成のCO ₂ 排出量	133
6-4	マイクロ波焼成炉のエネルギーバランスと省エネルギーの関係	134
6-5	CO ₂ 排出量を基にした環境負荷低減型の炉の設計指針	136
6-6	総括	136
	参考文献	137
第7章 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		
	要旨	138
7-1	緒言	138
7-2	マイクロ波による陶磁器の低温焼成	139
7-2-1	焼成サンプルと評価方法	139
7-2-2	マイクロ波による低温焼成	139
7-2-3	低温焼成の結果と考察	139
7-2-4	結論	141
7-3	選択加熱の観察による迅速焼成のメカニズムの解明の実験の原理	141
7-3-1	マイクロ波加熱におけるエネルギー吸収と輸送	141
7-3-2	その場観察による選択加熱の観察方法	141
7-3-3	マイクロ波加熱装置の概略	143
7-3-4	テストピースの選定	143
7-4	マイクロ波による磁器の迅速焼成へのリサイクル磁器とアルカリ金属の影響	143
7-4-1	磁器素地の発熱特性の測定	143
7-4-2	磁器構成材料と原料の発熱特性の測定	144
7-4-3	発熱特性へのナトリウムの影響	145
7-4-4	考察	146
7-4-5	結論	146
7-5	マイクロ波の選択加熱によるその場観察	146
7-5-1	その場観察による温度分布の測定	146
7-5-2	結論	151
7-6	総括	152
	参考文献	153
第8章 結論		
	謝辞	158

第1章 概 要

1-1 研究の背景

核融合科学研究所は、プラズマ加熱の研究で培ったマイクロ波技術を活かし、地元の伝統である陶磁器産業と産学連携研究を推進している。

核融合と陶磁器産業は、全く異質に見える分野である。しかし、これを熱というキーワードで考えると両者の間には、物理学的な本質に於いて、共通の基盤が見えてくる。プラズマという電離気体と陶磁器という固体は、温度、密度を全く異にしているが、その加熱過程を支配しているものは熱エネルギーであり、熱伝導方程式によって記述することが出来る。マイクロ波加熱という手段を導入したとき、電磁界のエネルギーが物質中の電子と結合して、最終的に熱に変わるという点で、共通である。電磁波エネルギーの物質中の電子への結合から熱化のメカニズムに関しても、プラズマ加熱に於ける電磁界と電子・イオンの相互作用とのアナロジーによって、固体・結晶という原子間・分子間に強い拘束力をうける物質中の原子・電子と電磁界の作用として解明する試みがなされている。高温状態からの熱の損失、つまり熱放散過程は、熱伝導・熱伝達および赤外線輻射という同じ物理現象として理解することが出来る。特に、1100℃をこえる陶磁器では、熱放散は輻射が支配的であり、その測定手段、時間スケールにおいても、核融合の周辺プラズマからの輻射測定の研究手法と成果を有効に活用することが可能である。

本研究は、「伝統的な陶磁器焼成の手法」と「誘電体中の電磁波伝搬とその減衰による加熱過程の解明、ミクロンスケールの微視的な熱伝導過程の物理学的研究」を結合して、新しい陶磁器焼成技術を開発したものである。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って、マイクロ波による陶磁器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、その原理を使って、陶磁器の短時間・省エネルギー・低コスト焼成と品質の向上、また、CO₂排出量を抑制し環境負荷を低減する実用化技術の開発、さらに、陶磁器の循環再生原料によるマイクロ波焼成の特徴を活用して低温焼成技術へ発展させ、持続可能な循環型環境社会に対応できる環境負荷低減型の材料と焼成技術の体系を生み出したものである。

21世紀に入り人類は、産業経済の発展の代償として、持続可能な循環型環境社会への課題を解決させなければならない、新しく大きな問題を抱えることとなった。これを受けて京都議定書⁽¹⁾が制定された。オホーツク海の海水面積の減少や動植物の生息域の移動等温暖化による自然環境等への影響が既に現れつつあるとされている。⁽²⁾エルニーニョに代表される異常気象が生活にも影響をおよぼし始め、地球規模での環境問題が顕在化するようになった。そのために、地球温暖化防止のためCO₂排出量を抑制する技術開発が必要とされている。

また、世界経済の重心が先進国から人口の多い新たな国へと移行しつつあり、石油・ガスを中心とするエネルギーについて産出国と消費国とのバランス関係も大きく変わり、エネル

ギー価格の高騰も産業経済へ大きな影響を及ぼしている。⁽³⁾ この結果、日本は、エネルギー輸入国であるためエネルギー単価により製品価格が直撃を受けている。また、中国を初めてする東南アジアからの安価な製品の輸入により従来製造業が圧迫を受けている。これらの結果、産業維持に深刻な問題を抱えるようになってきた。

一方消費者からは、食文化の発展によりユーザーニーズが多様化し、他品種小ロット生産と短納期対応も求められる重要な品質になってきた。従来、大きな窯で限られた品種を効率よく大量生産してきたメーカーには変革も求められ、低コストで陶磁器を効率よく焼成する技術開発が必要とされている。

また、第二次産業のとりわけ中小・零細企業での労働環境の改善も社会問題となり、20数時間の焼成が必要な陶磁器産業では、後継者の問題まで発展している。

地球環境問題とエネルギー問題を解決するには従来技術の改善だけでは限界があり、従来の技術とは異質な技術で、質的に異なる先端的な科学技術に基づいた新規な技術を見いださなければ解決にならない。安全な社会を作ることができる科学技術によるイノベーションによって、日本の持続型産業の礎を築き、人々の生活を豊かにする製品の創出と日本の産業維持・発展を図らなければならない状況にある。

日本の陶磁器の主要生産地である美濃地方は、豊富な原料資源と安土桃山時代に登り窯を導入し、志野・織部に代表される釉薬の新技术を開発した経験の蓄積が、優れた技術と製品を作り出してきた。^(4~6) 従来の薪・重油・ガスを使った焼成に、マイクロ波という新たな科学技術により、社会に必要な製品と生活・社会環境に必要な製造技術を生み出す必要性が産地としての責任と求められている。環境問題への対応・生産コストの削減・顧客を満足させる品質と付加価値の創出・労働環境の改善・販売流通革命等の様々な課題が求められる中で、研究成果の社会的使用を実証することは不可欠であり、美濃地方の陶磁器産業で最適な過程を実証的に試みるべきである。

マイクロ波による陶磁器焼成では、従来の焼成方法と比較して焼成時間を大幅に短縮できるために、CO₂排出量・消費エネルギーおよび焼成コストの軽減が可能となり、製品の短納期化も可能となる。さらに、マイクロ波による均質加熱により、焼成”ムラ”の防止・焼成歪みの改善などの従来製品の品質向上が可能である。循環材料による焼成温度の低温化も可能である。マイクロ波による陶磁器焼成は、陶磁器産業が抱える諸問題を解決する技術の一翼と期待できる。

1-2 従来の研究

セラミックスの焼成方法は電気・ガス・高周波加熱が実用的に用いられ、^(7~8) 材料開発・製品開発・生産に適応されてきた。この従来の焼成方法に対し、セラミックスにマイクロ波を用いた焼結は1970年代後半より試みられ、^(9~11) フェライト⁽¹²⁾・アルミナ・ジルコニア^(13~14)等の酸化物系セラミックスの焼結が研究された。自己発熱により熱効率が高く、

短時間加熱・温度制御が容易な点が着目され、組織の微細化・均一化^(15~16)・緻密化^(17~18)・強度の向上・焼成温度の低温化・薄膜の改質⁽¹⁹⁾等の特徴が見いだされてきた。⁽²⁰⁾誘電体が加熱されるとき単位体積あたりに吸収されるマイクロ波パワーがその電界強度の2乗ならびに周波数に比例するため⁽²¹⁾、2.45GHzのマイクロ波に比べ、28GHzのミリ波ではセラミックスへの吸収の度合いは10倍以上良くなる。また、波長が短いミリ波では高温になっても ϵ_r が大きく変化しないため⁽²²⁾サーマルランナウェイ（温度制御不能な急速な局部加熱）を避けることができる。また、周波数が高いと炉内の電界の均一性を向上させることもできる。そのため、加熱制御に有利であり28GHzのセラミックス焼成から研究が行われてきた。

セラミックスの焼成事例として代表的な構造材料の酸化物・非酸化物の研究がなされてきた。28GHzのジャイラトロンを発振器に使用し、ミリ波により Al_2O_3 の緻密化・温度の低下が認められ、^(23~26)また、電気炉焼成に比べ高い曲げ強度を示す報告⁽²⁷⁾もなされている。また、従来焼成より200~300℃低い温度で数キロの Al_2O_3 の円柱を歪みなく焼結した研究も報告されている。⁽²⁸⁾28GHzにたいし、2.45GHzでの Al_2O_3 焼結の研究もされており、28GHzと同様に緻密化や温度の低下^(29~30)が認められ、また、大口径の気孔や気孔分布が電気炉焼成と異なる⁽³¹⁾ことも明らかになっている。マイクロ波焼結による強度向上は、気孔径分布が小さくなり⁽³¹⁾結晶粒界の改善⁽³²⁾によると考えられている。⁽³³⁾

非酸化物の Si_3N_4 の焼結においては、 Yb_2O_3 を焼結助剤とすることにより高温強度の向上^(34~35)が図られている。ミリ波焼結によりマイクロ波吸収の良い酸化物助剤 $\text{Yb}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ により低温焼成で強度向上^(36~37)が図られている。その他、炭化ホウ素⁽³⁸⁾・酸化物超伝導材⁽³⁹⁾の焼結も試みられた。

機能性材料では、ペロブスカイト型高誘電体の SrTiO_3 や $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3$ 薄膜について電気炉焼成よりも200℃低い456℃でアニーリングされた報告もある。^(40~42)その他、層状導電性酸化物の合成⁽⁴³⁾や半導体のアニーリング⁽⁴⁴⁾・C/C繊維強化材の固化⁽⁴⁵⁾・PZT圧電材料の特性改善^(46~47)などが試みられている。

しかし、等温断熱壁の概念がなかったために、マイクロ波焼成は実用化に至っていなかった。焼結物の表面からの熱放散があり、中が高く外が低い温度勾配が生じるために、サーマルランナウェイによる局所的な加熱や変形・割れ等の焼成の不均一性の問題があった。⁽⁴⁸⁾焼成の不均一はマイクロ波の炉内不均一に起因すると考えられ、近年は、センチ波（5~18GHz）、ミリ波（28~84GHz）とより波長を短くすることでマイクロ波吸収効率と、キャビティー内および試料内の電磁界の強度分布を一様化する研究に推移してきた。この動きからもわかるように、波長の長い2.45GHz帯のマイクロ波による均一加熱は難しいと考えられていた。

2000年、核融合科学研究所の佐藤・高山らは、電界の均一性にのみ注目してきたこれまでの方法に対し、「焼成体の表面からの熱の出入りこそ、不均一な焼成の原因である」ことに着目し、炉内の等温状態を実現するために、焼成体をそれと同じ程度にマイクロ波を吸収する

壁で囲み、熱平衡を実現しながら昇温する等温熱障壁（サセプター）を考案した。⁽⁴⁹⁾ この発明により、マイクロ波焼成の実用化の道が開かれた。従来の炉は、外部にある熱源から焼成体に熱を与え焼成体の温度を上げる「外部加熱」である。マイクロ波加熱は焼成体全体でマイクロ波を吸収して発熱する「内部加熱」である。焼成体の温度を上げるという目的は同じでも、焼成体そのものが熱源になるマイクロ波炉では、表面からの熱損失をいかにして防ぐかが、基本的命題であることに着目した発明である。

以上のようにセラミックスのマイクロ波焼成の研究報告は多数見られるが、セラミックスの中で陶磁器焼成の工業化を目指した実用化研究の報告はなされておらず、その考察と検証の必要がある。

1-3 マイクロ波焼成技術の概要

マイクロ波焼成の基本原理は、焼成体の内部まで直接にマイクロ波を投入し、その誘電損失としてマイクロ波が熱エネルギーに変換され自己発熱し焼成できることである。マイクロ波焼成炉の構造の基本は、焼成体の断熱と電磁界分布の均一化を図る点にある。⁽⁵⁰⁾

焼成体の断熱については、ステンレス鋼などでできた密閉炉体の内側に断熱材を貼り、焼成体を入れてマイクロ波を照射する。このとき焼成体と同等に同じ温度で昇温する薄い層を断熱材の内壁に配することにより、炉内を均熱に昇温する仕組みである。焼成体の表面で放熱・熱伝達・熱伝導が釣り合い、炉内温度分布を均一にすることができる。（図 1-1）^(51~52)

また、電磁界の均一化については、安価な 2.45GHz のマグネトロンを使い、スターラーという金属製の翼を回転させて、定在波の山と谷の位置を移動させることにより炉体内で電界強度を均一にさせ、焼成体に均一にマイクロ波エネルギーを与える仕組みである。

マイクロ波の選択加熱により、比誘電率の高い焼成体と等温断熱壁は同等に昇温し、比誘電率の低いシリカ・アルミナを主成分とする断熱材は昇温しない構造となっている。また、焼成体は自己発熱により均質な発熱が得られ、熱歪みなく^(53~54) 昇温できるので、短時間昇温^(55~58)・省エネルギー焼成が可能となる。^(59~63)

マイクロ波焼成では、従来の輻射熱による熱伝導型の加熱と異なり、材料の自己発熱による加熱方法により、陶磁器の短時間・省エネルギー・低コスト焼成と品質の向上を追求することができる。また、CO₂排出量を抑制して環境負荷を低減することが期待できる。使用するマイクロ波は、家庭用の電子レンジで使用され普及している安価な 2.45GHz のマグネトロンを使用することができる。

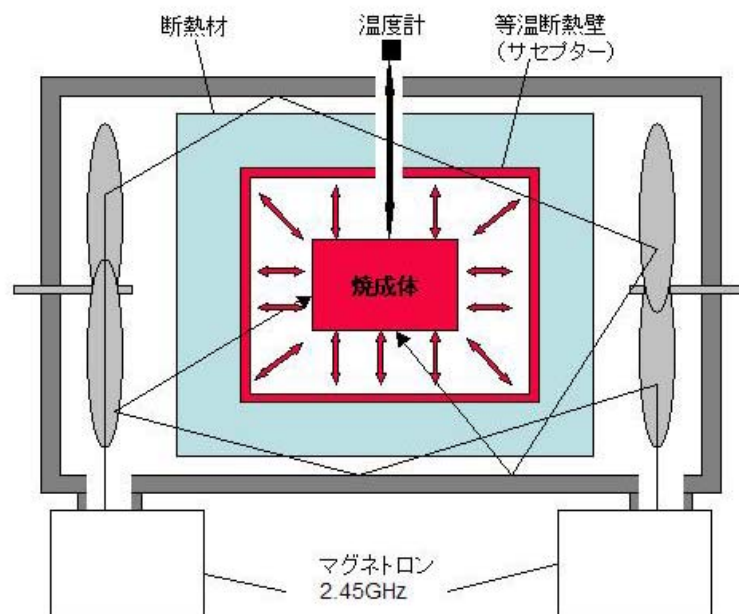


図 1-1 マイクロ波焼成の基本原理

1-4 研究の目的と概要

本研究の目的は、第一にマイクロ波加熱の等温断熱壁の概念を使って、省エネルギー効果による CO₂排出量の抑制と、マイクロ波焼成を工業化することにある。第二に、マイクロ波の選択加熱による新しい材料・陶磁器・セラミックスの開発の道を開くことにある。

本研究では、マイクロ波炉の使い分けを行い、第2章の試験ではシングルモードキャビティの定在波によるマイクロ波を使い、第3章～第6章の試験では進行波による炉を開発し使い、第7章では2つの炉を使い分けた。

まず、第2章で、マイクロ波による陶磁器焼成の自己発熱による体積型の加熱機構について理論的考察を行い、高温型の顕微鏡観察方法を考案し、マイクロ波による焼成過程を従来の熱伝導型加熱の赤外炉焼成と比較した。その場観察を行うことにより陶磁器が短時間で焼成できることを検証した。以後の章で、その実証試験を行った。

次に、第3章で、陶磁器をマイクロ波炉で短時間焼成を行った。製品自身が自己発熱するため、従来ガス炉焼成と同じ材料を使用しても風合い・発色・緻密度等の物性において、外部から加熱を行う従来ガス炉焼成法とは異なる結果を生じることが予想され、この機構原理を調べた。そこで、この原理による焼成方法の立証のために、酸化・還元磁器、伝統的陶磁器（織部、志野、黄瀬戸等）を種々の温度および雰囲気焼成した後、発色等の製品性状に及ぼす焼成条件の影響について従来のガス炉と比較し、陶磁器を対象としたマイクロ波焼成技術を開発した。また、陶磁器の上絵付け・イングレース・下絵付けなどの加飾技法について

も、従来焼成技術と比較を行った。

そして、第3章で得られたマイクロ波焼成技術を基に、第4章～第5章でマイクロ波焼成を工業的に可能とするマイクロ波とガス炉を複合させたマイクロ波－ガス複合炉の開発を行った。消費エネルギーおよび焼成コストのみならず設備コスト・メンテナンス性を備えた経済性の高い工業炉の実証を行った。生産現場に即した強制冷却試験や窯詰め方法、従来短時間焼成が困難であった大物焼成への応用を評価した。

第6章では、マイクロ波焼成の消費エネルギーと焼成コストおよび環境負荷（LCA）について評価を行い、マイクロ波焼成の評価を行った。マイクロ波による陶磁器焼成の環境負荷が小さいことを確認した。

第7章では、陶磁器の循環再生原料を使い、マイクロ波の選択加熱を活用した陶磁器の低温焼成技術について開発を行った。省エネルギー焼成技術・循環再生素材を開発し、陶磁器焼成の環境負荷をさらに減少させることができた。この低温焼成技術について、同じ成分の陶磁器材料を一度焼成すると、なぜマイクロ波吸収が大幅に強くなるのか、その機構を学理的に検証した。同じ成分であってもその構造が結晶状態とガラス状態と異なると、電磁波の吸収に大きな差が出ること、それぞれの加熱速度の差を測定することによって検証した。また、マイクロ波により加熱される状況を、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、その場観察をした。ソーダガラスとムライト・珪石粒子の陶磁器構成成分を混合しマイクロ波加熱を行うと、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ことが見出された。このホットスポットの温度がガラスの融点を超えれば、マイクロ波の吸収が小さく温度が低い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。

第8章では、マイクロ波による陶磁器焼成について各章で得られた結論について総括した。

本研究では、マイクロ波の自己発熱による陶磁器の加熱機構の理論的考察とその検証ができ、持続可能な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と材料の開発をすることができた。また、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世界で最初に実証した。マイクロ波加熱が在来の加熱の熱源の置き換えではないことを実験的に証明したものであり、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示した。

1-5 マイクロ波焼成を行う陶磁器の評価について

マイクロ波焼成をする陶磁器は従来ガス炉・電気炉で焼成されてきたが、マイクロ波焼成の評価のためにその成分・焼成機構・評価方法について解説を行う。

陶磁器は、粘土・珪石・長石を原料とし SiO_2 ・ Al_2O_3 を主成分に、 Na ・ Ca ・ K ・ Mg などのアルカリ溶融成分と Fe ・ Ti などの微量成分より構成⁽⁶⁴⁾される。1200～1350℃で焼成⁽⁶⁵⁾できるように調合された素地と、その表面にガラス質の釉薬⁽⁶⁶⁾を施すことによって焼成される材料である。食器・碇子・衛生陶器・タイル・絶縁部品などの製品に使用される。白色

で透光感がありたくと清音がするものを磁器^(67~69)、有色でたくと鈍い音がするものを陶器と大別されている。また、釉薬は、表面保護・意匠の創造・吸水止めのために施される。素地と同じ材料により構成されるが、素地とは比率を変えてSiO₂主体に調整され焼成するとガラス質となる。調合により、光沢状のガラス面・結晶状のマット面、顔料の添加により色付けがされる。⁽⁷⁰⁾用途別に、食器では一般素地⁽⁷¹⁾・耐熱素地⁽⁷²⁾・給食用強化素地⁽⁷³⁾、タイル⁽⁷⁴⁾では磁器・せつ器・陶器、磚子⁽⁷⁵⁾では強化素地に調合される。

焼成は素地を焼き締める工程であり、陶磁器生産では主にガス炉⁽⁷⁶⁾が使用されている。陶磁器材料の主成分SiO₂・Al₂O₃の融点より低い温度で粒子が反応・結合される。ガラス質の溶融成分が液相となり、固相との境界で反応生成物が液相中に溶融しながらムライトなどの鉱物を生成し、ガラス質とムライト・未反応の珪石でボディを焼き締める反応をいう。^(77~83)焼成温度・焼成パターンは、陶器では1200~1280℃、磁器では1250~1350℃で焼成する。工業では12時間から24時間の焼成をバッチ炉またはトンネル炉にて行う。炉内の上下の温度差を小さくするために、900~950℃でキープを入れるパターンが取り入れられ⁽⁸⁴⁾最高温度で1~2時間の温度保持が行われる。

焼成方法には酸化焰焼成・還元焰焼成がある。ガス炉焼成を行う場合に、燃焼させるガス流量と空気量を調整して、酸素リッチで焼成する場合を酸化焰焼成^(85~86)という。反応が起こる950℃以上の温度で、供給する空気量に比べガス量を過多にして不完全燃焼をさせ、COガスを発生させながら焼成する方法を還元焰焼成^(85~86)という。素地・釉薬中に含まれる鉄・銅等の金属酸化物中の酸素を燃焼(COガスのCO₂化)のために奪い取ることにより、金属酸化物の発色をコントロールするために行う操作となる。酸化焰焼成では発色が安定するが、還元焰焼成では還元濃度がバラツキやすく発色が不安定となるが、焼き物に味わいが生まれる。また、ベンチュリーバーナーによる酸化焰焼成は、燃焼ガスと一緒に大量の空気を送り込むために1280℃以上の高温焼成では温度が上昇しにくくなる。還元焰焼成では燃焼ガス量に比べ空気量が少ないために発熱効率が悪くなり、温度上昇制御と還元濃度制御を同時に行う難しさがある。ガス炉では酸化焰焼成は上下の温度差が大きくなりやすい難点もある。

製品の加飾のために絵付けが行われ、その技法には上絵付け⁽⁸⁷⁾・イングレーズ⁽⁸⁸⁾・下絵付け⁽⁸⁹⁾がある。焼き上げた本体に加飾し700~800℃で再焼成する上絵付け、焼き上げた釉薬表面に絵付けをし1150~1240℃で再焼成することにより釉薬中(glaze)に絵の具を沈み込ませる技法をイングレーズ、焼成前の素地表面に絵付けを行い釉薬を掛けて焼成する技法を下絵付けという。低温焼成の上絵付けでは顔料は鮮やかに発色するが、摩耗性や耐酸性に劣る。高温焼成では顔料の色数が限定されるが、耐摩耗性・耐酸性に問題がない。一貫した大量生産では下絵付けが採用され、イングレーズは無地の素地を在庫すれば注文に応じて効率よく加飾を行う場合に用いられる。上絵付けはガス燃焼の水分を嫌うために、電気炉焼成が用いられる。

上絵付け焼成では、700~800℃の低温で焼成するために、融点を下げるためと光沢を良く

するために鉛が使われる。⁽⁹⁰⁾ また、発色材の一つとしてカドミウム⁽⁹⁰⁾ が使われる。そのため、食器には食品衛生法で定められている鉛・カドミウムの耐酸試験⁽⁹¹⁾ があり、上絵付けでは溶出を基準以下に抑えることと、その評価が必要である。また、絵付け用顔料として金属の酸化物が主に使用される。金⁽⁹²⁾・プラチナは金属そのままで使用されるため、マイクロ波の照射の影響を調べる必要がある。

陶磁器の製品品質の評価には、発色・釉性状・色調・欠陥（割れ・切れ・貫入・変色・ピンホール等）⁽⁹³⁾・寸法・変形・吸水率⁽⁹⁴⁾・耐熱性⁽⁹⁵⁾・曲げ強度⁽⁹⁶⁾ などがある。

一般的に大量に生産される陶磁器製品のサイズは、食器では直径φ300mm（厚み2～10mm）、罫子では30～80mm、タイルでは50～300mm以下であり、これ以上のサイズでは成形乾燥時の収縮による割れ・焼成時の熱膨張差による割れが発生しやすく難くなる。そこで、マイクロ波焼成ではこれ以上の大物の焼成について焼成評価を行った。

参考文献

- (1) 外務省：気候変動に関する国際連合枠組条約の京都議定書 (1997)
- (2) 環境省：環境白書 (平成 16 年版), p.52 (2004)
- (3) 資源エネルギー庁：エネルギー白書 2005, 平成 16 年度の重要事項 1.エネルギー価格の高騰 (2005)
- (4) 美濃：古川庄作：カラー日本のやきもの 12 淡交社 p.81-95 (1974)
- (5) 小山富士夫 荒川豊藏：日本のやきもの 美濃, 淡交社, p.133 (1963)
- (6) 荒川豊藏：陶磁大系 第 11 巻 志野 黄瀬戸 黒織部, 平凡社, p.89 p104 (1972)
- (7) 越島哲夫：普及版マイクロ波加熱技術集成, エヌ・ティー・エス p.12(1994)
- (8) 日本セラミックマシナリー協会：セラミックマシナリーハンドブック, 日刊工業新聞社, P116-117 (2006)
- (9) 越島哲夫：普及版マイクロ波加熱技術集成, エヌ・ティー・エス p.111, p127 (1994)
- (10) Berteaud A.J. and Badot, J.C. : J.Microw. Power, Vol.11, p315 (1976)
- (11) Chiang, B and Hoyte, A. : Int.Microw.Power Inst.Symp., June, p28 (1978)
- (12) Krage, M.K. : Am. Ceram.Soc.Bull., Vol.60, p1232 (1981)
- (13) Araneta, J.C. and Brodwin, M.E. : Am. Soc.Fall Meeting, (1982)
- (14) Johnson, D.L. and Brodwin, M.E. : U.S.Army Res. Office, Grant No.DAAG29-80-K-0031, (1984)
- (15) Kimrey, H.D. et al : J Microw Power, Vol.21 , p81 (1986)
- (16) Meek, T.T. and Brodwin, M.E. : Ceram. Eng. Sci. Proc., Vol.8 p861 (1987)
- (17) Meek, T.T. Holcombe, C.E. and Dykes, N.L. : J. Mater. Sci. Lett., Vol.6, p1060 (1987)
- (18) Holcombe, C.E. Meek, T.T. and Dykes, N.L. : MRS Symp. Proc. Vol.124 p227 (1988)
- (19) マイクロ波応用技術研究会編：マイクロ波応用技術, 工業調査会, p133-136 (2004)
- (20) 福島英沖：豊田中央研究所 R&D レビュー, Vol24, No.4, p10 (1989)
- (21) 三宅正司：セラミックスの高速焼結技術, (株) ティー・アイ・シー, p4 (1998)
- (22) マイクロ波応用技術研究会編：マイクロ波応用技術, 工業調査会, p131 (2004)
- (23) M.A.Jannery and H.D.Kimrey : Diffusion-controlled processeion microwave-field oxide ceramics, Mater.Res.Soc.Symp.Proc., Vol.189, Nov, p215 (1991), Microwave Processing of Materials II , ed.by W.B.Snyder et al.
- (24) H.D.Kimrey, J.O.Kiggans, M.A.Janney and R.L.Beatty : Microwave sintering of zirconia-based alumina composites, Mater. Res. Soc. Symp. Proc., Vol.189, p243 (1991), Microwave Processing of Materials II , ed. by W.B.Snyder et al.
- (25) Varadan, V.K., et al : MRS Symp. Proc. Vol.124, p45 (1988)
- (26) 田代新二郎, 大井幸一, 岡田文明, : 昭和 58 年度電子通信学会総合全国大会講演論文集 p3-205 (1983)

- (2 7) 巻野勇喜雄, 三宅正司 : 電磁エネルギー加熱法による新材料創製の可能性, 粉体および粉末冶金, Vol.49, No.10, p871 (2002)
- (2 8) M.A.Jannery et al : Microwave Sintering of Alumina at 28GHz, Ceramic Powder Science, II, p919-924, American Ceramic Society, Westville, NJ (1988)
- (2 9) J.Samuels and J.R.Brandon : Effect of composition on the enhanced microwave sintering of alumina-based ceramics composites, J.Mater.Sci., Vol.27, No.12, P3259 (1992)
- (3 0) ZXie, J.Yang and Y.Huang : Densification and grain growth of alumina by microwave processing, Materials Letters, Vol.37 Nov, p215 (1998)
- (3 1) M.Willert-Porada : A microstructural approach to the origin of "microwave effects" in sintering of ceramics and composites, Ceramics Transaction, Vol.80, p153 (1997), Microwave Theory and Application in Materials Processing IV ed. by D.Clark et al.
- (3 2) J.Koike, S.Tashima, S.Wakiya, K.Murayama and Okikawa : Mechanical properties and microstructure of centrifugally compacted alumina and hot-isostatically-processed alumina, Mater. Sci. and Eng., Vol.A220, No.1, p26 (1996)
- (3 3) マイクロ波応用技術研究会編 : マイクロ波応用技術, 工業調査会, p134 (2004)
- (3 4) H.Park, H.E.Kim and K.Niihara : Microstructural evolution and mechanical properties of Si_3N_4 with Yb_2O_3 as a sintering additive, J.Am.Ceram.Soc., Vol.80, No.3, p75 (1997)
- (3 5) K.M.Lee, W.H.Lee, Y.H.Koh, J.J.Choi and H.E.Kim : Microstructural evolution and mechanical properties of gas-pressure-sintered Si_3N_4 with Yb_2O_3 as a sintering aid, J.Mater.Res., Vol.14, No.5, p1904 (1999)
- (3 6) 巻野勇喜雄, 三宅正司 : 電磁エネルギー加熱法による新材料創製の可能性, 粉体および粉末冶金, Vol.49, No.10, p871 (2002)
- (3 7) Phase Diagrams for Ceramists, Ed. by E.M.Levin, H.F.McMurdie & M.K.Rester, p132 (1975)
- (3 8) Katz, J.D. et al : MRS Symp. Proc.Vol.124, p219, (1988)
- (3 9) Baghurst, D.R., Chippindale, A.M. and Mingos, D.M.P. : Nature, 332-6162, p311 (1988)
- (4 0) S.Baba, K.Numata and S.Miyake : Characteristics of post-annealed SrTiO_3 thin films prepared by mirror-confinement-type ECR plasma sputtering, Sci. Technol. Adv Mater., Vol.1, p211 (2000)
- (4 1) S.Miyake, S.Baba, A.Niino and K.Numata : Surf. Coat. Technol., Vol.169-170, p27 (2003)
- (4 2) Ahmad, I., Chander, G.T. and Clark, D.E. : MRS Symp. Proc. Vol.124, p239, (1988)
- (4 3) 滝沢博胤, 伊藤雅春 : 層状導電性酸化物のミリ波プロセッシング, 第3回マイクロ波効果・応用シンポジウム講演要旨集, p58 (2003)
- (4 4) Yu.Bykov, A.G.Eremeev, N.A.Zharova, I.V.Plotnikov, M.N.Drozdov, Yu.N.Drozdov and V.D.Skupov : Diffusion phenomena in semiconductor structure undergoing microwave annealing, Proc. 9th Int. Conf. on Microwave and High Frequency Heating, Loughborough University, UK, p265 (2003)
- (4 5) C.Hunyar, L.Feher and M.Thumm : Experimental and simulation approach for the description of

- heating effects in millimeter-wave processed CFRP composites, Proc. 9th Int. Conf. on Microwave and High Frequency Heating, Loughborough University, UK, p437 (2003)
- (46) 富羽美帆, 打田聡, 滝沢博胤, : 28Ghz マイクロ波による酸化チタン膜の焼成と色素増感太陽電池への応用, “機能材料”, Vol.23, No.6, p58 (2003)
- (47) Harrison, W.B., Hanson, M.R.B. and Koepke, B.G.: MRS Symp. Proc. Vol.124, p279 (1988)
- (48) 越島哲夫: 普及版マイクロ波加熱技術集成, エヌ・ティー・エス p.166 (1994)
- (49) M.Sato, T.Mutou et al., “Insulation Blankets for Microwave Sintering of Traditional Ceramics”, Ceramic Transaction, 111, 277-285(2001)
- (50) 佐藤元泰, 平井敏夫, 水野正敏, 渡辺隆, 長島崇: 、マイクロ波工業炉の幕開け, 「工業加熱」 Vol40 No.3 p.26 (2003)
- (51) 佐藤元泰, 武藤敬, 居田勝巳, 下妻隆, 井上徳之, 江崎和弘, 高山定次, 水野正敏, 平井敏夫, 島田忠: 日本電磁波応用研究会第16回研究会予稿集, p18 (2000)
- (52) M.Sato et al.: Insulation Blankets of 2.45GHz Microwave Sintering of Traditional Ceramics, Proc. 2nd World Congress on Microwave & Radio Frequency Processing, MWP-CE-13, Florida, 2000
- (53) マイクロ波応用技術研究会編: マイクロ波応用技術, 工業調査会, p130 (2004)
- (54) M.Sato, T.Mutou et al., “Insulation Blankets for Microwave Sintering of Traditional Ceramics”, Ceramic Transaction, 111, 277-285(2001)
- (55) H. Fukushima, Y. Ishii, Y. Fukushima : Ultrahigh-speed heating of porous ceramics by microwave energy, Proc.of PACIFICHEM, 2005 Hawaii
- (56) M. Sato, H. Fukushima, et.al.: Experimental Investigation of Mechanism of Microwave Heating in Powder Metals, IRMMW2004/THz2004 Joint, Karlsruhe, Germany, 2004
- (57) H. Fukushima, “Microwave Heating System by Using Remote-Controlled Resonant Cavity”, Microwave 2004, p244-247, Takamatsu, 2004
- (58) H. Fukushima, “Rapid Heating by Single-Mode Cavity Controlled at 6GHz”, MAPEES04, 2004, Published from Elsevier Ltd
- (59) M.Sato, A.Matsubara, K.Kawahata, O.Motojima, T.Hayashi, S. Takayama, D.Agrawal, R.Roy,: Microscopically In-situ Investigation for Microwave Processing of Metals by Visible Light Spectroscopy, Proc. 11th International Conference on Microwave and High Frequency Heating, O-24, Sep.11-15, 2005 Italy
- (60) M. Sato, H. Fukushima, et.al.: Experimental Investigation of Mechanism of Microwave Heating in Powder Metals, IRMMW2004/THz2004 Joint, Karlsruhe, Germany, 2004
- (61) M.Sato, T. Mutoh, T. Shimotuma, K.Ida, T. Inoue, K.Esaki, O.Motojima, M.Fujiwara,S.Takayama, M. Mizuno, S. Obata, K.Ito, T.Hirai, T. Shimada: RECENT DEVELOPMENT of MICROWAVE KILNS for INDUSTRIES in JAPAN (Invited) American Ceramic Society "Microwave and radiofrequency Applications" (2003) 281-289
- (62) M. Sato "Modeling of microwave kilns with isothermal barrier walls", Conference Proceedings of

Progress in Electromagnetics Research Symposium (PIERS)", 2003

- (63) M. Sato, A. Matsubara: "Microwave Magnetism Selective Heating • In-Situ Measurement of Microscopic Isothermal Process", Submitted to Phy. Rev. Letter, on Nov. 2005
- (64) 窯業読本編集委員会：セラミック化学，日本セラミックス協会，技報堂出版，p108 (1974)
- (65) 日本セラミックス協会：セラミック工学ハンドブック，技報堂出版，p1482 (1989)
- (66) 高嶋廣夫：実践陶磁器の科学，内田老鶴圃，p84 (1996)
- (67) 功刀雅長，加藤悦郎，長坂克巳：無機材料，共立出版社，p110-115 (1980)
- (68) 日本セラミックス協会：セラミック工学ハンドブック，技報堂出版，p1482 (1989)
- (69) 素木洋一：工業用陶磁器，技報堂出版，p8(1978)
- (70) 高嶋廣夫：実践陶磁器の科学，内田老鶴圃，p90 (1996)
- (71) 高嶋廣夫：実践陶磁器の科学，内田老鶴圃，p146-152 (1996)
- (72) 高嶋廣夫：実践陶磁器の科学，内田老鶴圃，p207-218 (1996)
- (73) 小林雄一，大平修，大橋康男，加藤悦郎、：アルミナ強化磁器素地の強度とワイブル分布，窯業協会誌，Vol.95，p887-892 (1987)
- (74) 高嶋廣夫：実践陶磁器の科学，内田老鶴圃，p190-206 (1996)
- (75) 高嶋廣夫：実践陶磁器の科学，内田老鶴圃，p179-189 (1996)
- (76) 日本セラミックマシナリー協会：セラミックマシナリーハンドブック，日刊工業新聞，p 116(2006)
- (77) 窯業読本編集委員会：セラミック化学，日本セラミックス協会，技報堂出版，p97 (1974)
- (78) 浜野健也：ファインセラミックスハンドブック，朝倉書店，p62 (1984)
- (79) 窯業読本編集委員会：セラミック化学，日本セラミックス協会，技報堂出版，p91 (1974)
- (80) 高嶋廣夫：実践磁器の科学，内田老鶴圃，p39 -52(1996)
- (81) 素木洋一：工業用陶磁器，技報堂出版，p188-194 (1993)
- (82) 柳田博明 et al：モダンセラミックサイエンス，技報堂出版，p137-144 (1985)
- (83) マイクロ波応用技術研究会編：マイクロ波応用技術，工業調査会，p121 (2004)
- (84) 宮川愛太郎：陶磁器，共立出版，p158 (1959)
- (85) 日本セラミックス協会：セラミック工学ハンドブック，技報堂出版，p176-180 (1989)
- (86) 長坂克巳：やきものアラカルト (I)，裳華房，p78-81 (1994)
- (87) 日本セラミックス協会：セラミック工学ハンドブック，技報堂出版，p1520 (1989)
- (88) 大西政太郎：陶芸の伝統技法，理工学社，p4-42 (1978)
- (89) 大西政太郎：陶芸の伝統技法，理工学社，p4-37-41 (1978)
- (90) 高嶋廣夫：実践陶磁器の科学，内田老鶴圃，p113-120 (1996)
- (91) 厚生労働省：食品衛生法 (1986)
- (92) 日本セラミックマシナリー協会：セラミックマシナリーハンドブック，日刊工業新聞，p 179(2006)
- (93) (財) 日本陶磁器検査協会：陶磁器欠点防止技術第4集 陶磁器における欠点の発生原因

とその対策，総合通信社，p.80-94 (1976)

(94) 吸水セラミックス編集委員会講座小委員会：セラミックスのキャラクターゼーション，
日本セラミックス協会，技報堂出版，p2-3 (1987)

(95) 耐熱日本規格協会：JIS-S2400 陶磁器製耐熱食器の熱衝撃試験法 (1991)

(96) 強度日本セラミックス協会：JCRS203-1996 給食用磁器食器の曲げ強さ試験方法 (1996)

第2章 マイクロ波による陶磁器焼成の理論的考察と検証

本章は、陶磁器の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であり、マイクロ波焼成の技術開発の基礎となる部分である。

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成物内部まで直接にマイクロ波エネルギーを投入できる。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。さらにこれを実証するために、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、焼成過程の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検証した。

2-1 マイクロ波焼成における巨視的な熱平衡と微視的な熱非平衡

マイクロ波加熱は、従来の熱伝導型の加熱とは異なり、マイクロ波が焼成体の内部に浸透し、材料の誘電損失による自己発熱により加熱され均質な焼成が行われる。⁽¹⁾ また、マイクロ波焼成では、図2-1に示すように巨視的には温度勾配がなく熱平衡を保ちながら焼成できる。しかし、焼成体が誘電損失の異なる微細な材料や液層・固層の組合せよりなれば、微視的には熱非平衡の状態で熱の伝導を行いながら焼成が行われる。^(2~5)

それに対し、従来の熱伝導型の焼成では巨視的には熱は非平衡であるが、微視的には熱平衡が保たれながら焼成が行われる。

マイクロ波焼成を評価するにあたっては、巨視的な熱平衡と微視的な熱非平衡についての両面で検討を行うことが重要である。

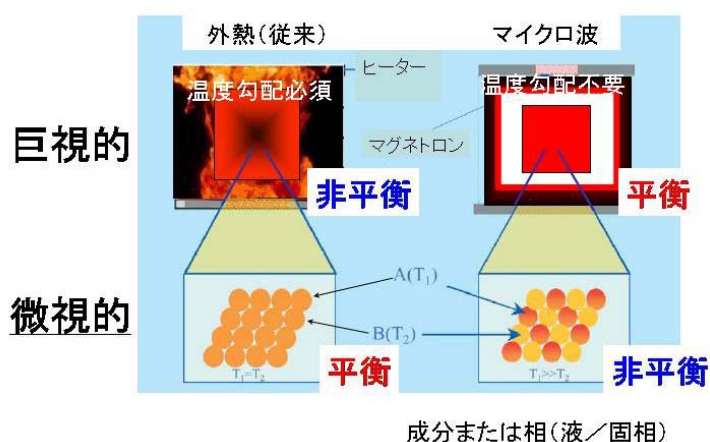


図 2-1 マイクロ波加熱と従来加熱の違い

2-2 マイクロ波による焼成の理論的考察

マイクロ波は波長が 1m～1cm (周波数 300MHz～30GHz) の電磁波の総称で、その利用は、通信やレーダーに始まり、加熱作用については家庭用の電子レンジをはじめ、工業的には食品・木材・ゴム・樹脂などの幅広い分野で加熱・乾燥のエネルギーとして実用されている。また、熱伝導による外部加熱に比べ熱効率がよく、短時間で加熱できる等の特徴を活かしたセラミックスの焼成や接合にも応用しようとする研究も行われてきた。

マイクロ波加熱の原理については、以下のように考えられている。マイクロ波を電氣的に絶縁された誘電体に照射すると誘電体中に伝搬し体積的に吸収されることは、誘電損失として知られている。誘電体中の電気双極子にマイクロ波の電界を加えると電界の方向に分極を起こす。その周波数に対応して誘電分極の方向が入れ替わる。この時、誘電分極の変化が電界の変化に追従できなくなって位相のずれ（遅れ）が生ずる。この電界の変化による激しい振動や回転の摩擦熱のために誘電体が自己発熱をする。

マイクロ波による加熱について熱伝導方程式により理論的考察をする。マイクロ波のような体積発熱型の昇温では、以下の 2 つの条件が満たされなければならない。

- ① 被焼成体内部での入熱の一様性
- ② 焼成体の表面での熱流の平衡

第一の条件を満たすためには、マイクロ波が誘電体中を透過するとき、電波のエネルギーが誘電体に吸収されて熱に変わり、その電力密度が半分になる深さを半減深度と呼び、(1) 式で表される。⁽⁶⁾

$$D_{1/2} \doteq 3.22 \times 10^7 / f \sqrt{\epsilon_r} \tan \delta \quad (\text{m}) \gg L \quad \dots \dots \dots (1)$$

ここで、 f 、 ϵ 、 $\tan \delta$ は、周波数、誘電率、誘電正接である。また、電界は空間的に一様、少なくとも時間平均で一様でなければならない。マイクロ波のような体積加熱型の焼成においては、マイクロ波が被焼成体の内部に浸透し、均一に加熱されることが重要となるので、マイクロ波の焼成体中での減衰長 $D_{1/2}$ が被焼成体の厚さ (L) に比べ十分に大きいことが必要である。

次に、被焼成体が適当な距離を置いて、誘電体層の断熱壁で囲まれていると仮定すると、熱伝導方程式は (2) (3) 式で表される。⁽⁷⁾

$$\begin{aligned} \delta \theta_1 / \delta t = & k_1 (\delta^2 \theta_1 / \delta x^2 + \delta^2 \theta_1 / \delta y^2 + \delta^2 \theta_1 / \delta z^2) \\ & + \sigma (\theta_2^4 - \theta_1^4) + 2 \pi f E^2 \epsilon_0 \epsilon_1 \tan \delta_1 / (c_1 \rho_1) \\ & \dots \dots \dots (2) \end{aligned}$$

$$\delta \theta_n / \delta t = k_n (\delta^2 \theta_n / \delta x^2 + \delta^2 \theta_n / \delta y^2 + \delta^2 \theta_n / \delta z^2) + \sigma (\theta_1^4 - \theta_2^4) + 2 \pi f E^2 \epsilon_0 \epsilon_n \tan \delta_n / (c_n \rho_n) \dots \dots \dots (3)$$

ここで、 θ 、 k 、 σ 、 E 、 c 、 ρ は温度、温度伝導率、ステファンボルツマン常数、電界強度、比熱、密度で、添え字1は焼成体、 $n = 2, 3 \dots$ は多層の断熱壁で、添え字2は最内壁を表す。

被焼成体と断熱壁が等温となり理想的な断熱状態では、 $\theta_1 = \theta_2$ である。被焼成体の表面で放射・熱伝導、熱伝達による熱の出入りはゼロとなり、内部から表面に向かう熱束流が発生しなくなり、(2)式の第一項・第二項はゼロとなる。焼成体に関する熱伝導方程式は(2)式は(2')のように簡略化される。

$$\delta \theta_1 / \delta t = 2 \pi f E^2 \epsilon_0 \epsilon_1 \tan \delta_1 / (c_1 \rho_1) \dots \dots (2')$$

また、誘電体に吸収され内部で熱に変わるマイクロ波吸収電力密度 $P^{(7)}$ は(4)式で表される。⁽⁶⁾

$$P_{rf} = 2 \pi f E^2 \epsilon_0 \dots \dots \dots (4)$$

誘電損失は、

$$\epsilon_0 = \epsilon_r \tan \delta \dots \dots \dots (5)$$

と表され、 ϵ_r は比誘電率である。物質により決まる値でマイクロ波加熱をする上で非常に重要な値となり、この値により自己発熱の大きさが異なり、温度・周波数によって変化をする。

マイクロ波電力密度(4)式を(2')に代入することにより、マイクロ波による体積加熱型の熱伝導方程式は、

$$\delta \theta_1 / \delta t = P_{rf} \epsilon_1 \tan \delta_1 / (c_1 \rho_1) \dots \dots \dots (6)$$

と表すことができる。

次に断熱壁に関して、等温熱障壁となるマイクロ波の吸収の条件を求める。 k 、 c 、 ρ は温度 θ に関して変化しないと仮定して、(3)式を解いてゆく。壁は長方形であるが、簡単のために、 x を厚さ方向(外側に向かう方向)とする面に関し、十分に広いと仮定して、一次元近似を用いる。

焼成体と等温熱障壁の内側表面で熱平衡が成立しているから、内側表面($x = 0$)で境界

条件は、

$$\delta \theta_2 / \delta x = 0 \quad (x=0) \quad \dots \dots \dots (7)$$

$$\delta \theta_2 / \delta t = \delta \theta_1 / \delta t \quad (x=0) \quad \dots \dots \dots (8)$$

である。

直近の内側から外に向かう（逃げる）熱流があるから $x > 0$ において、

$$\delta \theta_2 / \delta x < 0$$

である。この条件で、(3) 式を積分して温度分布と必要な熱量を計算する。ここでは、マイクロ波は焼成体と最内壁だけで吸収があり、最内壁が十分に薄く、その内部で温度勾配が無視できる場合について考える。最内壁の条件は、

$$P_{rf}(\epsilon_1 \tan \delta_1) / c_1 \rho_1 = P_{rf}(\epsilon_2 \tan \delta_2) / c_2 \rho_2 - P_{loss} \quad \dots \dots (9)$$

と表すことができる。ここで、 P_{loss} は最内壁から外側の断熱体に逃げる熱エネルギーである。 P_{loss} が十分小さいならば、

$$(\epsilon_1 \tan \delta_1) / c_1 \rho_1 = (\epsilon_2 \tan \delta_2) / c_2 \rho_2 \quad \dots \dots \dots (9')$$

焼成体を囲む断熱体は、被焼成体と等価なマイクロ波吸収率を持った材料でなければならないことを示している。つまり最も簡単な方法は、被焼成体を同じ材料で囲むことである。

2-3 陶磁器のマイクロ波焼成

陶磁器のマイクロ波焼成を検討するにあたり、工業加熱用として電波法で使用が指定されている ISM (Industrial Scientific Medical) 周波数帯 (表 2-1) の中から、(1) 式にてマイクロ波の浸透深さが深くなる周波数の低い、かつ、安価で汎用性の高い 2.45GHz のマイクロ波にて考察を行った。

表 2-1 電波法に指定されているマイクロ波周波数

ISM 周波数帯	備考
0.915±0.025GHz	西半球のみ
2.45±0.05GHz	—
5.80±0.075GHz	—
24.125±0.125GHz	—

陶磁器のマイクロ波焼成を行うためには、マイクロ波が焼成体内部に透過しエネルギーが均一に熱に変わることが望ましい。一般に、陶磁器の厚みは食器で 2～10mm、磚子では 20～50mm、その他大物でも 100mm 以下である。式（1）より、陶磁器材料と半減深度についてまとめると表 2-2 となる。また、2.45GHz での各物質の比誘電率と誘電正接とマイクロ波の浸透深さの関係を図示すると図 2-2 となる。水の浸透深さは 0.1m と小さいがマイクロ波の吸収は極めて良く、一方、テフロンなどは比誘電率と誘電正接共に小さいためマイクロ波を透過し、ほとんど加熱されない。陶磁器材料の誘電正接と比誘電率の値は図の斜線範囲にある。マイクロ波は浸透し、かつ、工業的にマイクロ波にて加熱が行われている材料の近傍にあるので誘電損失による自己発熱が可能である。そこで、焼成しようとする陶磁器の最大厚みが 100mm であればマイクロ波は陶磁器を十分に透過し、（6）式により体積加熱型の自己発熱が期待でき、熱勾配のない均質な焼成が可能である。

表 2-2 陶磁器へのマイクロ波浸透深さ⁽⁸⁾

種類	被誘電率 ϵ_r	誘電正接 $\tan \delta$	浸透半減深さ mm
磁器	3.50	0.018	390
陶器白	3.35	0.021	340
陶器赤	3.53	0.019	370
透明釉	5.48	0.008	700

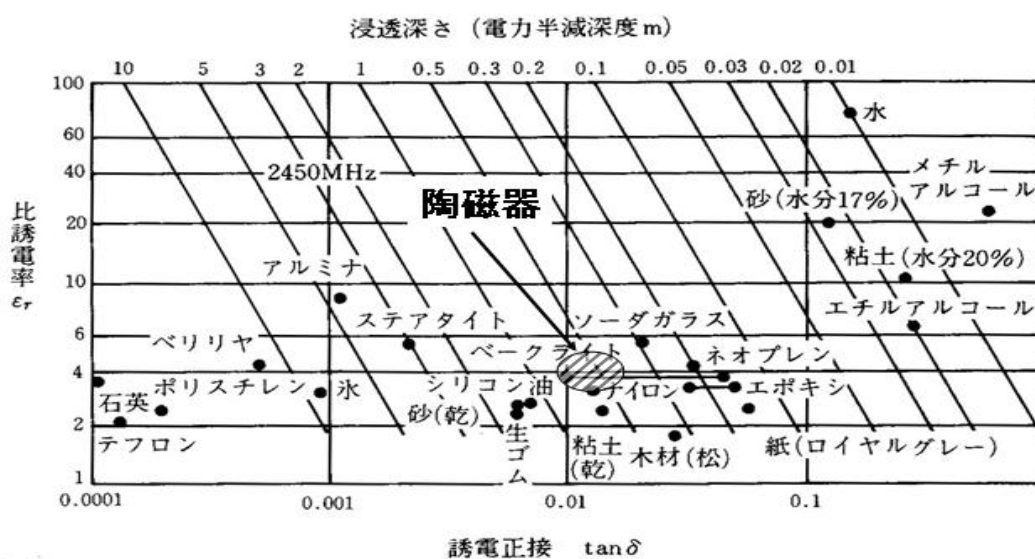


図 2-2 材料の誘電特性とマイクロ波の浸透深さの関係⁽⁹⁾

2-4 マイクロ波による陶磁器焼成の微視的観察

マイクロ波による陶磁器焼成の理論的考察を行い、その理論を検証するために陶磁器のマイクロ波焼成の焼成過程をその場観察した。マイクロ波高温顕微鏡を案出し、ビデオ画像により加熱過程の微視的な観察を行った。

2-4-1 マイクロ波による陶磁器焼成の微視的観察の意義

マイクロ波加熱は、従来の熱伝導型の加熱とは異なり、マイクロ波が焼成体の内部に浸透し、材料の誘電損失による自己発熱により加熱されることは既知のことである。⁽¹⁾ マイクロ波加熱により陶磁器の焼成が進行する状況を確認することは重要であり、確認をした報告はまだされていなかった。^(10~17)

陶磁器材料は粘土・珪石・長石・アルミナ等の誘電損失の異なる材料が、平均粒径 2~20 μm 程度の細かな粒子として配合されている。材料ごとに自己発熱が異なり、微視的に見れば焼成体内で温度の非平衡が発生⁽²⁾ していることが予想される。例えば、アルミナの誘電損失は 0.009⁽¹⁸⁾ であり加熱焼成が可能⁽¹⁹⁾⁽²⁰⁾ であるが、誘電損失が 0.0004⁽¹⁸⁾ と小さくほとんど発熱しない珪石⁽²¹⁾ との間では温度の非平衡が発生する。また、材料の粒径の大小により発熱特性が異なる⁽²²⁾ ことも予想される。

従って、従来の熱伝導型の加熱方法による焼成と、マイクロ波による自己発熱による体積型加熱による焼成が、同じであるのか、違いがあるのかを確認する必要がある。

また、陶磁器焼成過程の観察^(23~24) においては、名古屋工業技術試験所・瀬戸窯業技術センター・長崎県窯業試験場が開発した透視型ガス焼成炉システムによる陶磁器焼成の観察がある。しかし、これらは陶磁器全体について、釉薬が融ける様子や再結晶様子を巨視的に観察したものである。陶磁器材料がどのように焼成され変化するのかという微視的な観察は行われていなかった。

そこで、陶磁器の焼成過程の微視的な観察を行うために顕微鏡を用いることを考案した。シングルモードキャビティのマイクロ波焼成炉に CCD カメラ付きの顕微鏡と放射温度計を組合せ、焼成過程のその場観察を行いながら画像を保存できる仕組みとした。これまではマイクロ波による金属焼結の微視的観察の研究^(10~14) が行われてきた。陶磁器ではマイクロ波焼成と従来型の加熱方式による焼成状況の比較観察を行った。最初は、陶磁器の釉薬の織部・黄瀬戸の観察を行った。織部は銅による緑色の発色をし、黄瀬戸は鉄による黄色の発色をする釉薬で、色のはっきりする陶磁器の観察を行った。⁽²⁵⁾

従来の熱伝導型の焼成では、陶磁器は 1200~1350℃まで加熱され焼成される。その過程で、融点より低い温度で固体粒子が加熱によって固着し収縮して気孔の少ない緻密体となる。⁽²⁶⁾ 磁器素地の焼成温度と焼成体の寸法変化の関係⁽²⁷⁾ を図 2-3 に示す。この図のように室温から約 950℃まではわずかに膨張をするが寸法の変化はほとんどなく、約 950℃から焼成収縮が始まり約 1100℃を越えると急激に寸法収縮を起こし焼き締まりながら焼結する。この 1100℃

以上での過程で、微粒子の珪石・長石・粘土からなる成形体は、長石を主体とした熔融物が液相となり、珪石やカオリンの固相との境界に生じた反応生成物が液相中に溶解し、流動や拡散により移動し気孔を押しだしながら収縮が起こる。表面の凸部の表面エネルギーの大きな部分から、よりエネルギーの低い凹部や軽微な凸部へ移動し凝集を起こし新しい結晶相が形成される。⁽²⁸⁾ また、陶磁器の主成分であるムライトも生成される。^{(29) (30)} そして、1360℃以上でガラス化した素地がブローチング現象⁽³¹⁾として発泡と膨張を始める。^(32~37)

そこで、マイクロ波焼成における陶磁器の微視的観察を行うことにより、その焼成機構の確認と、従来の熱伝導型の焼成との比較を行うこととし、焼成の理論的考察の検証を行った。

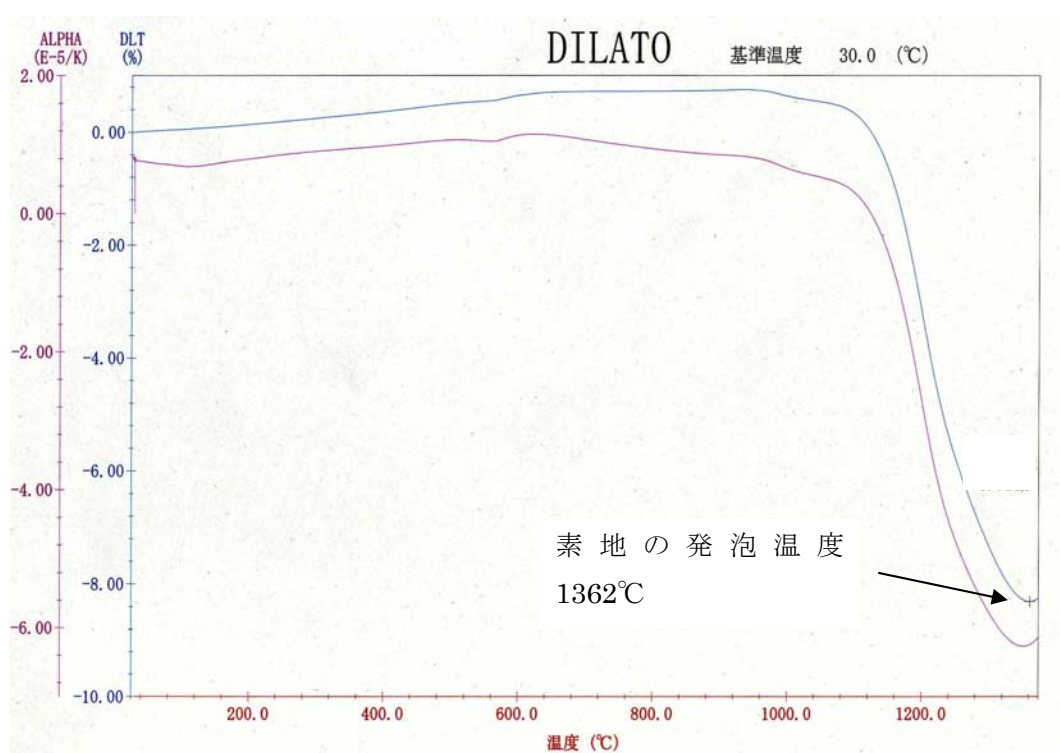


図 2-3 磁器素地の焼成における温度と焼成体寸法の関係

2-4-2 実験方法

図 2-4、2-5 に示すシングルモードキャビティを炉とし、マイクロ波加熱を行った。図 2-6、2-7 に示すアルミナシリカ質の断熱材を組み込み陶磁器サンプルを入れた。サンプルは、11mm × 11mm × 6mm の磁器および陶器白素地の素焼きを用いた。サンプルは図 2-8 に示すキャビティの電界最大点に設置し、磁器サンプルは $4000\text{V} \times 200\text{mA} = 80\text{W}$ にて加熱し、陶器白素地は $4000\text{V} \times 500\text{mA} = 200\text{W}$ にて加熱を行った。加熱中の状況を CCD カメラ付き顕微鏡（キーエンス；VHX200、200 倍レンズ）にて VHS ビデオ画像に保存しながら観察を行った。また、同時に、放射温度計⁽³⁸⁾による温度測定とマイクロ波投入パワーと反射波パワーをパワ

一モニターにて測定し、投入パワーと反射波パワーの差を焼成体への吸収パワーとして計測した。

サンプルを断熱材容器に入れ加熱する際には、断熱材の内壁には焼成体と同様な発熱をする誘電体層で被覆する事が望ましい。⁽³⁹⁾ しかし、図 2-8 に示すように導波管内の電磁界の分布は、電界最大点の体積が小さく電界密度の差により内壁の誘電体層の発熱にバラツキが生じるために、断熱材の内壁には誘電体層の処理をしなかった。

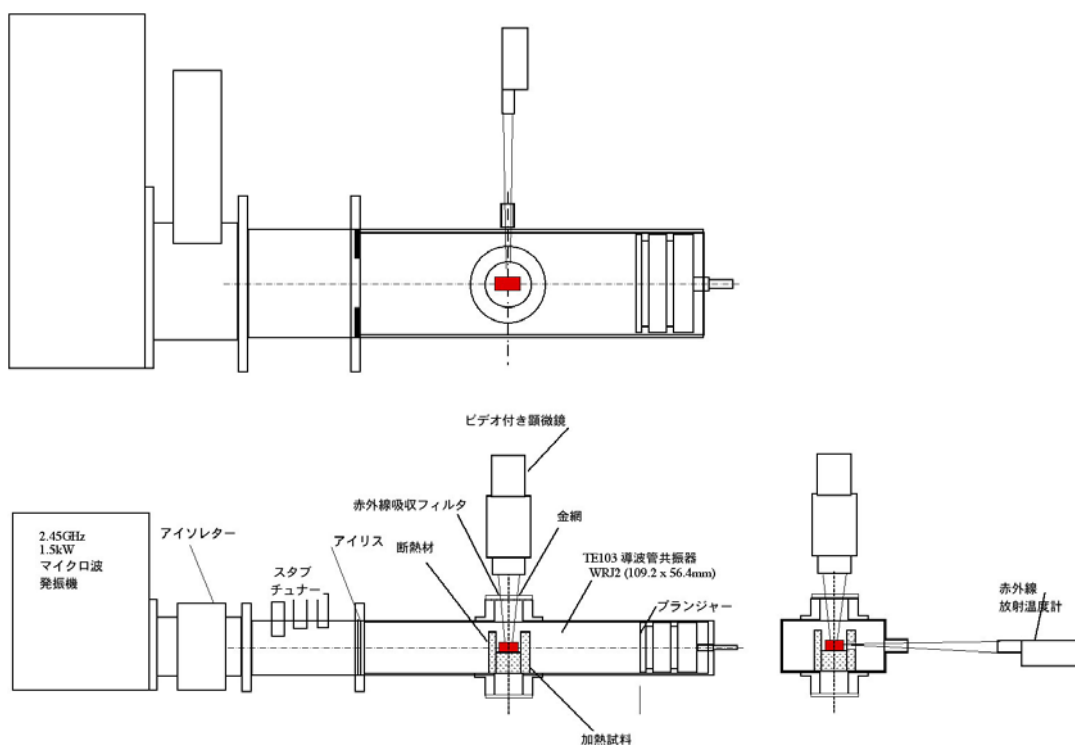


図 2-4 マイクロ波シングルモードキャビティと高温型顕微鏡装置図



図 2-5 マイクロ波シングルモードキャビティと高温型顕微鏡装置

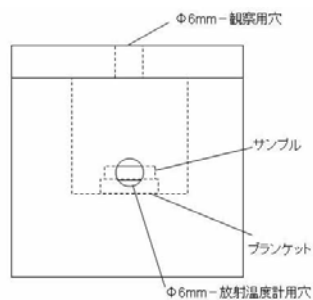


図 2-6 断熱材構造



図 2-7 断熱材の外観

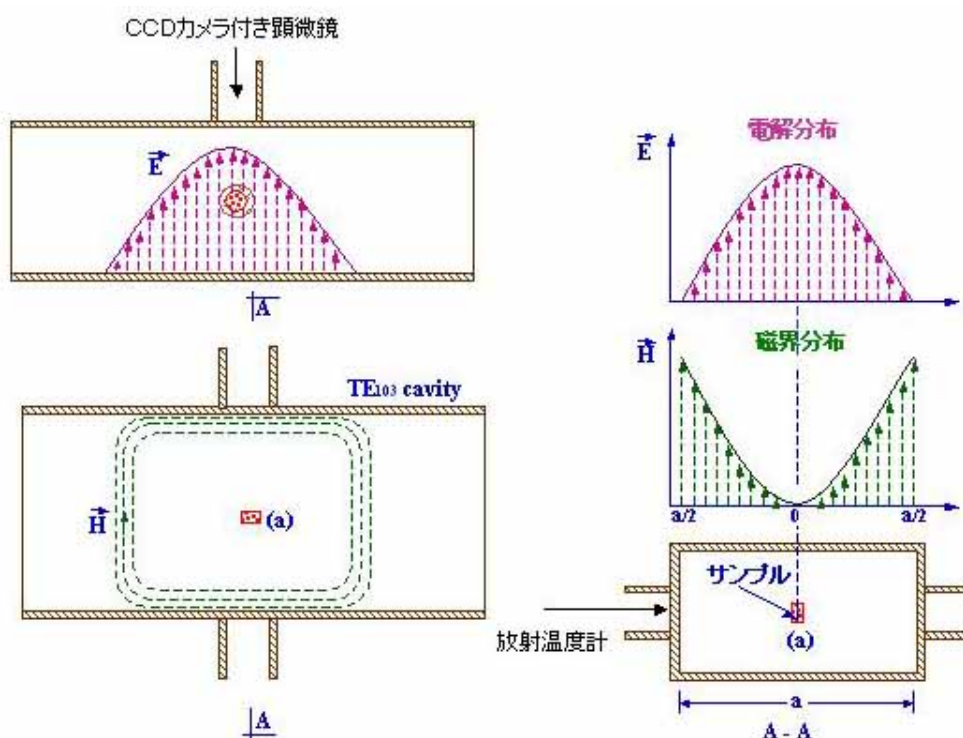


図 2-8 導波管内の電磁界の分布

2-4-3 マイクロ波焼成の温度特定方法

温度測定は、放射温度計の測定スポット径と断熱材との干渉があり正確な温度測定ができないため、以下の方法で温度補正を行った。

磁器は焼成すると焼成温度に応じた寸法変化をし、950℃から緩やかな収縮を始め 1100℃からは急激な収縮をし、約 1360℃で膨張と発泡を始める。そこで、磁器の焼成温度と収縮の関係を熱膨張測定機（MACSIENCE 社製 TD500）により測定し（図 2-3）、マイクロ波焼成の顕微鏡観察で得られた収縮の開始時間と発泡の始まった時間を、放射温度計で測定した時間と温度の関係に合わせ補正を行った。

2-4-4 結果と考察

磁器サンプルの焼成過程の温度およびマイクロ波投入パワーと吸収パワーの関係を図 2-9 に示す。また、磁器サンプルの焼成過程の写真を図 2-10 に示す。

顕微鏡観察では、マイクロ波にて加熱されたサンプルが、加熱 2 分 6 秒後に約 600℃に発熱し赤見がかかりはじめ、2 分 16 秒後には約 1000℃に達し、2 分 32 秒後には約 1300℃を越え、2 分 33 秒後には 1360℃以上に達し発泡が始まった。室温から約 950℃まではわずかに膨張をするが寸法の変化はほとんどなく、約 950℃から焼成収縮が始まり約 1100℃を越えると急激に寸法収縮を起こし焼き締まりながら焼結する。この過程で、微粒子の珪石・長石・粘土からなる成形体は、長石を主体とした溶融物が液層となり、石英やカオリンの固層との境界に生じた反応生成物が液層中に溶解し、流動や拡散により移動し気孔を押しだしながら収縮が起こる。また、陶磁器の主成分であるムライトも生成される。そして、約 1360℃以上でガラス化した素地がブローチング現象として膨張と発泡をした。磁器のマイクロ波焼成においては、2 分 13 秒後の約 950℃までは、寸法と気孔の状況に変化はみられず、2 分 16 秒後からは気孔の減少と気孔位置の寸法変化がみられ収縮が始まっている様子が確認できる。時間の経過に伴い温度は上昇し気孔が減少し焼結による磁器化している様子が確認できる。また、2 分 32 秒後には気孔はほぼなくなり、気孔位置の寸法変化においても収縮が確認できる。従来焼成法と同様な収縮率 6.7%を示した。

マイクロ波焼成では、温度の上昇と共に急激に昇温するようになり、高温になるほど昇温は急になった。これは、表 2-3 に示すように陶磁器の誘電損失が 750℃を越えると大きくなるため、温度上昇と共にマイクロ波を吸収し発熱が激しくなった。また、陶磁器の焼成では、1000℃を越えると磁器化が進みガラス質の液層が生成される⁽⁴⁰⁾ためにマイクロ波吸収がさらに大きくなるためである。そして、1360℃以上ではガラス化が激しくなり⁽⁴¹⁾ ⁽³¹⁾、さらに急激な温度上昇がみられた。

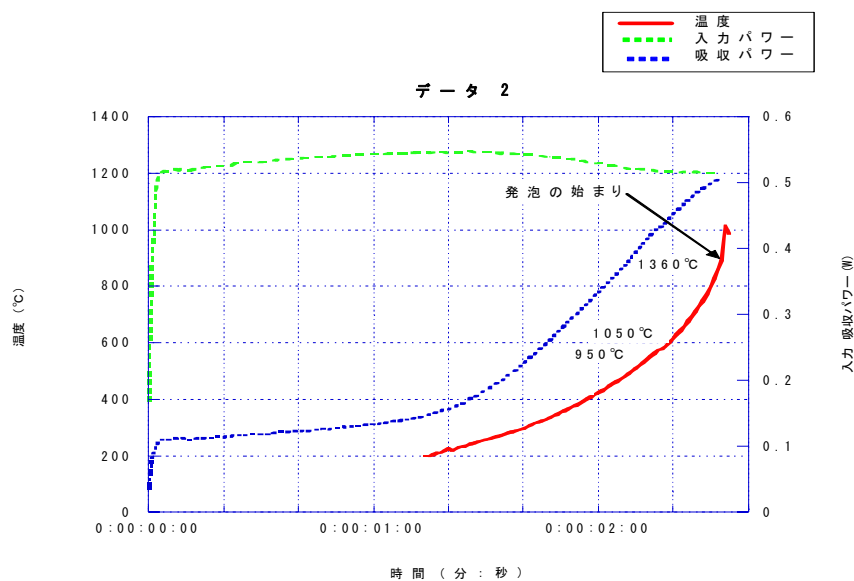
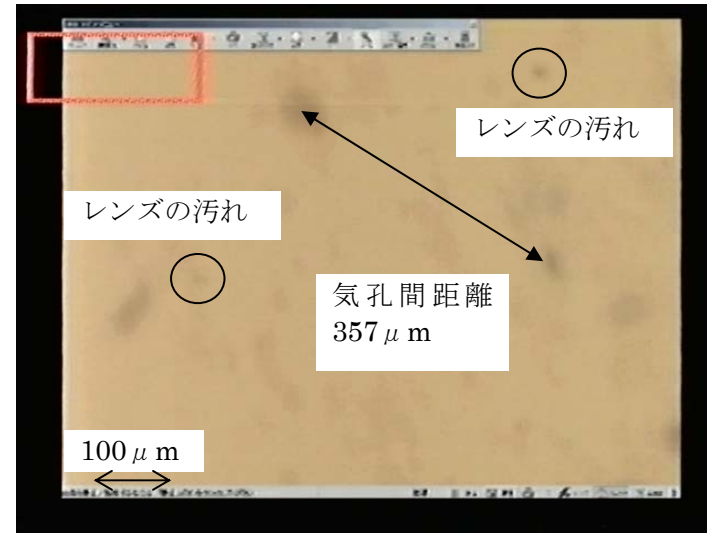


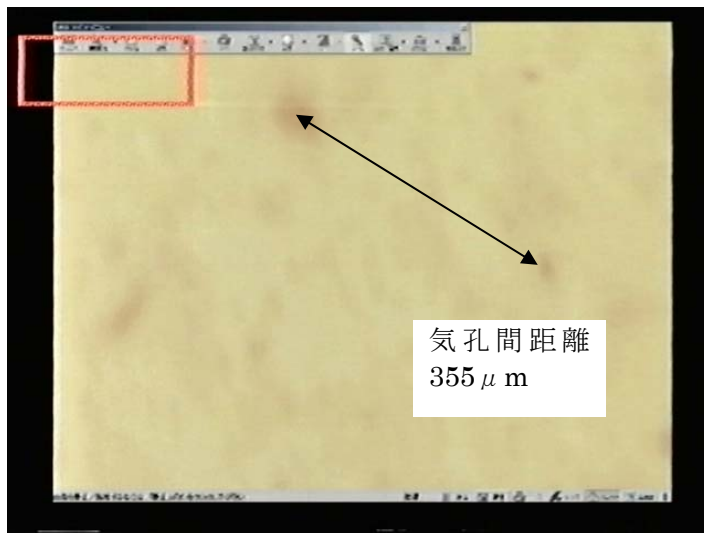
図 2-9 温度およびマイクロ波投入パワーと吸収パワーの関係



2 分 06 秒後 赤見がかかり始めた



2 分 13 秒後 ○印はレンズの汚れ

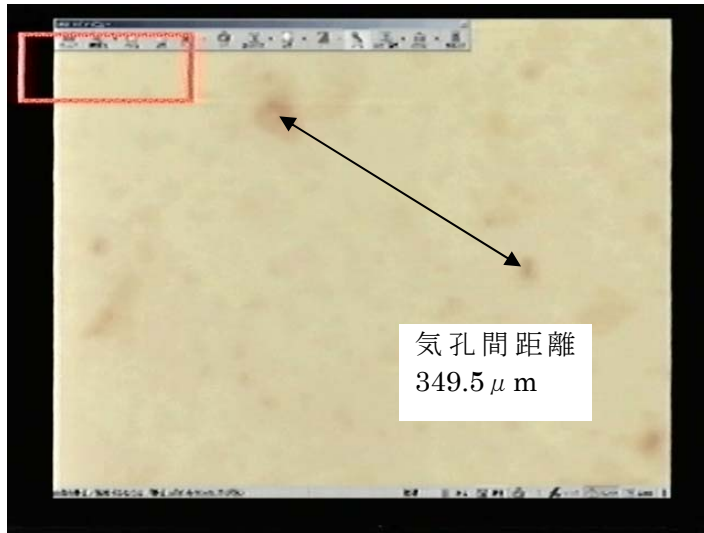


2 分 15 秒後 収縮が始まる

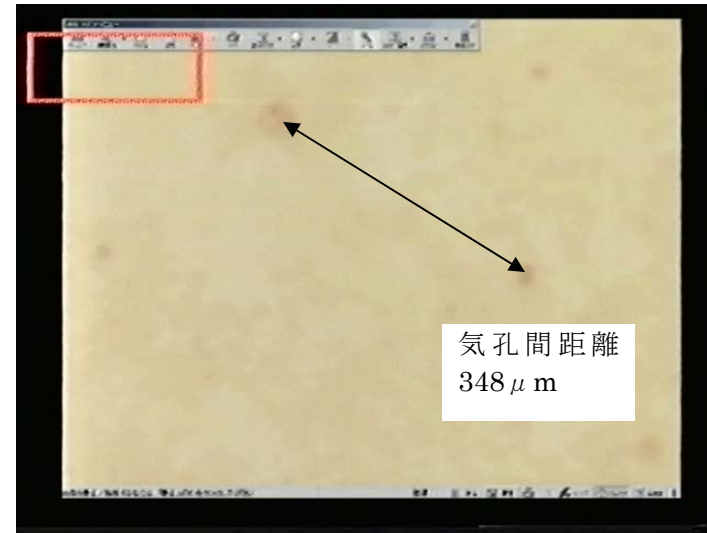


2 分 21 秒後 気孔がハッキリ見える

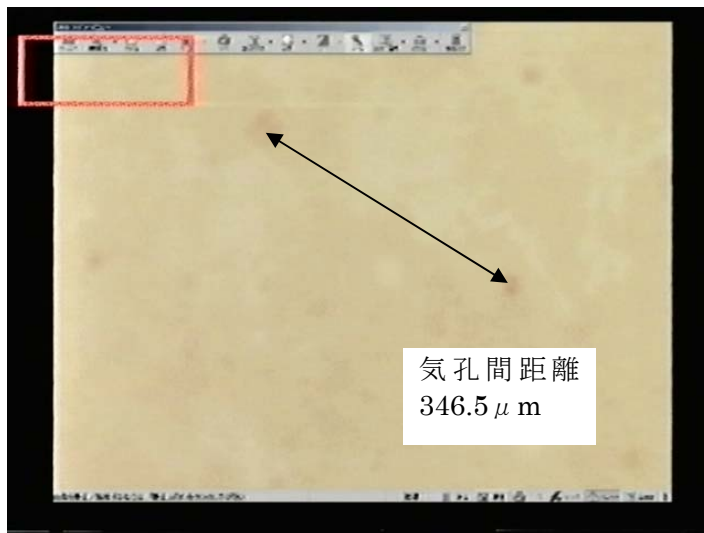
図 2-10-1 マイクロ波焼成による磁器の顕微鏡写真 磁器素地



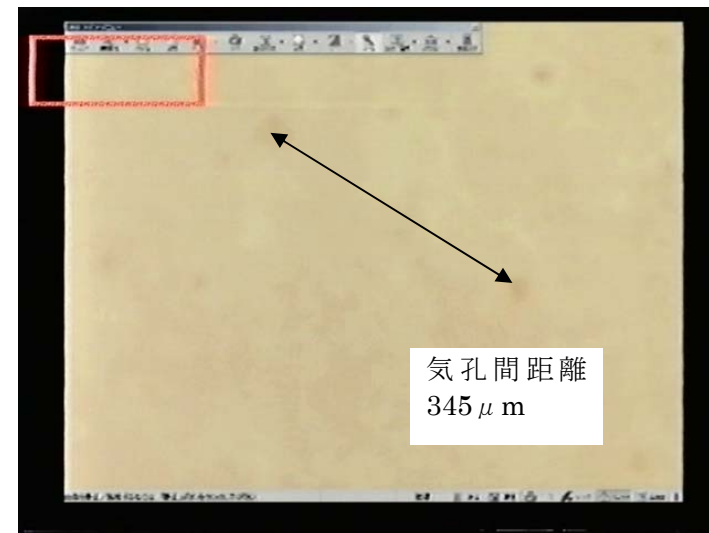
2分24秒後 気孔が消失し始める



2分26秒後

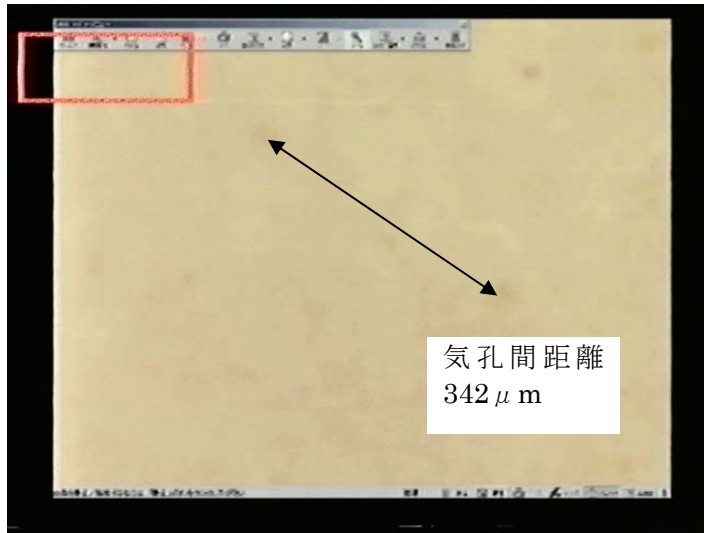


2分27秒後

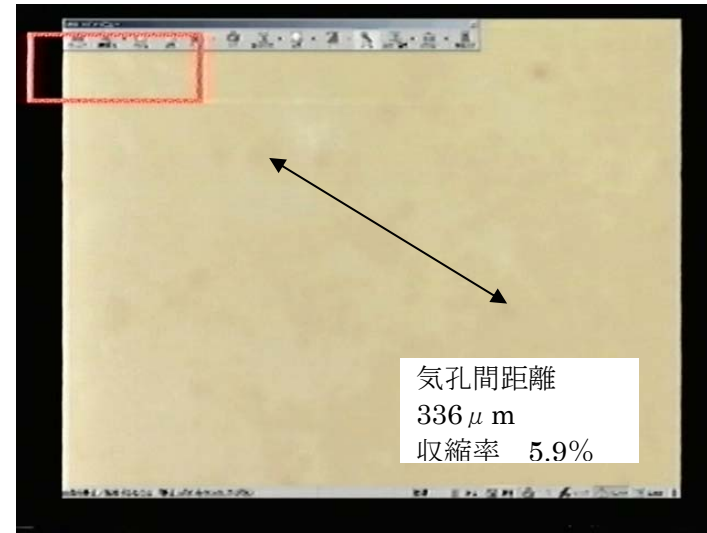


2分28秒後

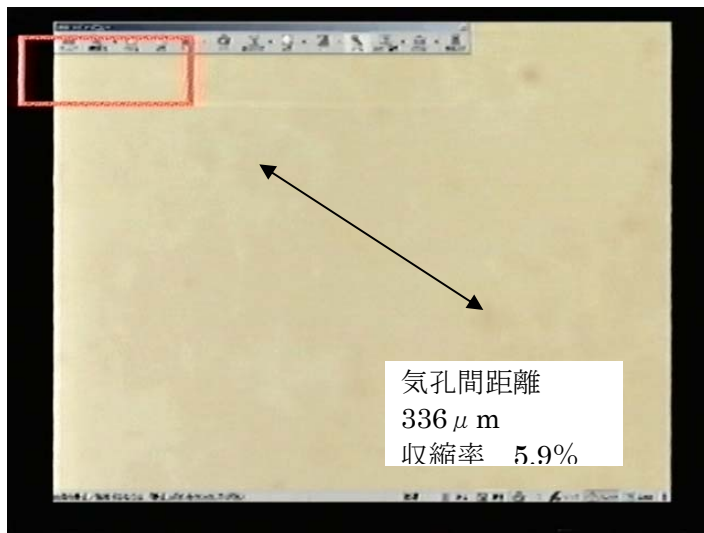
図 2-10-2 マイクロ波焼成による磁器の顕微鏡写真 磁器素地



2 分 29 秒後 気孔の減少



2 分 32 秒後



2 分 32 秒後 焼成完了



2 分 37 秒後 発泡 ○印はレンズの汚れ

図 2-10-3 マイクロ波焼成による磁器の顕微鏡写真 磁器素地

表 2-3 磁器素地の温度と誘電損失⁽⁸⁾

温度	室温	250℃	500℃	750℃	1000℃
誘電損失	0.063	0.024	0.042	0.068	0.267

焼成サンプルとその断面の写真を図 2-11 に示す。短時間焼成にもかかわらず、表面上面を除いてサンプルは内部まで均一に焼成でき、マイクロ波加熱では体積型の加熱であることが確認できた。サンプルの表面は発泡し溶けた。キャビティ内の電界強度が最大になるポイントに上面が最も近かったためと、また、底面はアルミナシリカ質のブランケットに熱が伝導し、側面は空気の上への流れで放熱しやすく、空気層をはさみ断熱材で覆われた上面のみ断熱性が高くなり温度が高くなった部分にマイクロ波が集中したためである。



図 2-11 焼成したサンプル（左）とその断面（右）

マイクロ波の加熱後 200℃までの温度上昇は、それ以降の温度上昇に比べ時間が長くなった。マイクロ波による加熱の熱伝導方程式（6）式の誘電損失について

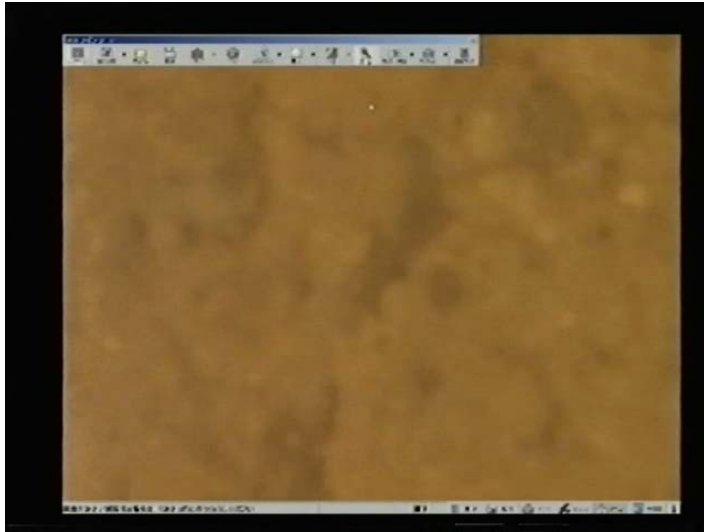
$$\delta \theta_1 / \delta t = P_{rf} \epsilon_{r1} \tan \delta_1 / (c_1 \rho_1) \quad \dots \dots (6)$$

磁器の誘電損失が表 2-3 に示すように温度に依存するために、低温では温度上昇に時間を要した。

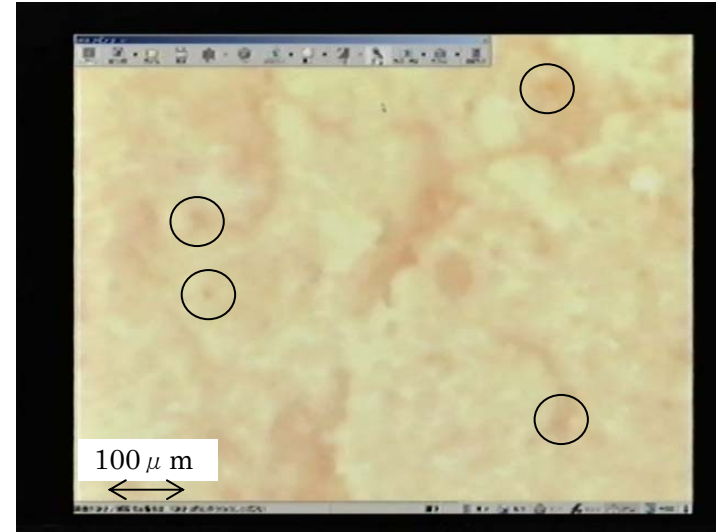
また、同様に陶器白土のマイクロ波焼成の微視的観察を行った。陶器白サンプルでは粒子が粗いために気孔が多く、粒子が溶けて気孔が消滅し収縮する焼成過程を確認することができた。焼成過程の写真を図 2-12 に示す。

2-4-5 結論

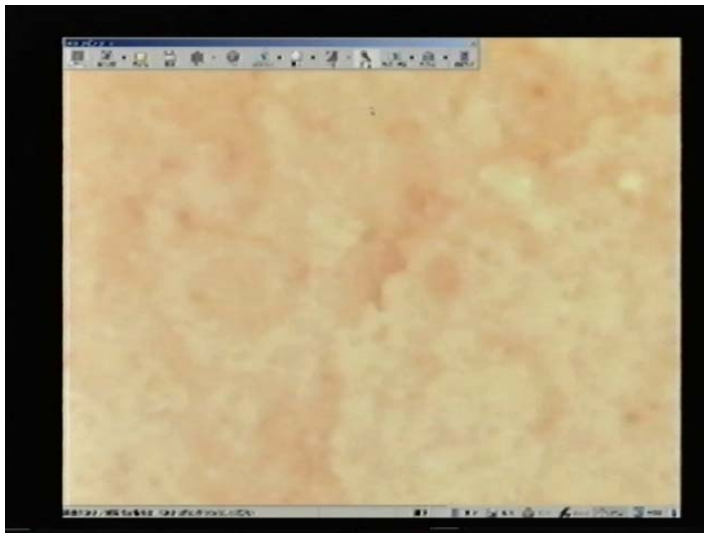
マイクロ波による陶磁器の加熱過程を高温型顕微鏡でその場観察することによって、陶磁器の焼成が可能であることが確認できた。また、その焼成は、従来の熱伝導型の焼成ではなく短時間で均質に焼成できる体積加熱型の焼成であることも確認できた。



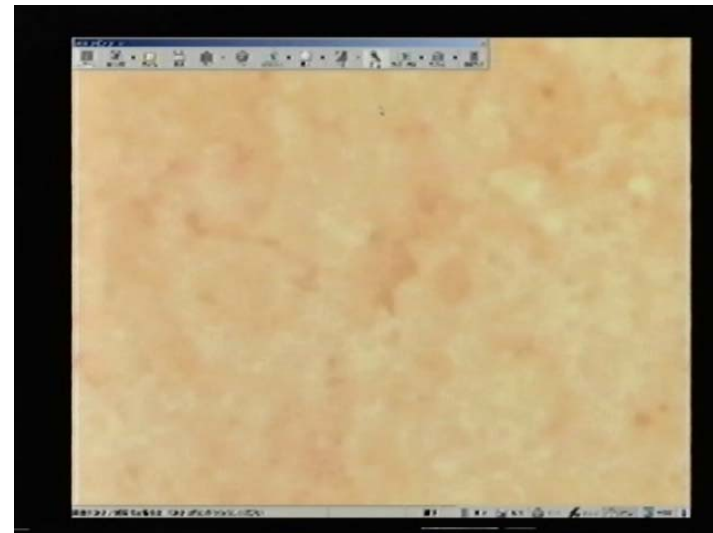
5.3 秒後



5.6 秒後 ○印はレンズの汚れ



6.0 秒後



6.1 秒後

図 2-12-1 マイクロ波焼成による陶器白素地の顕微鏡写真



6.2 秒後



6.3 秒後

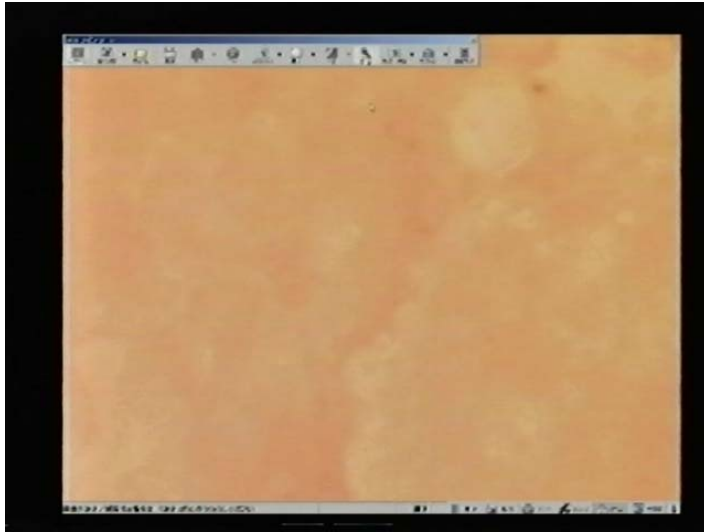


6.4 秒後

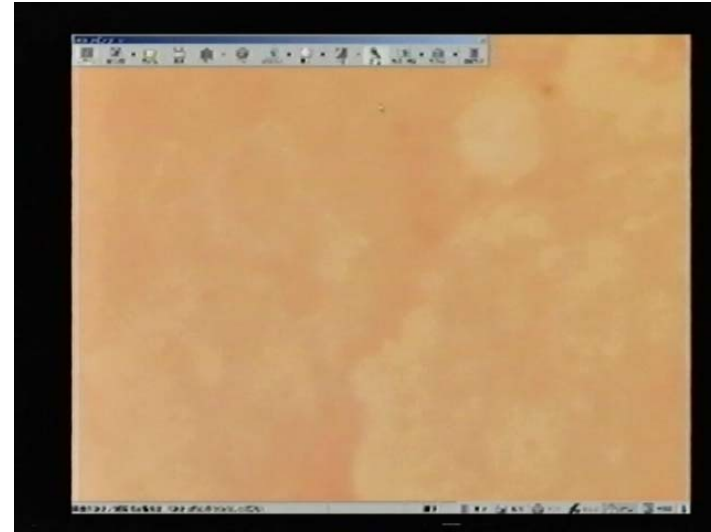


6.5 秒後

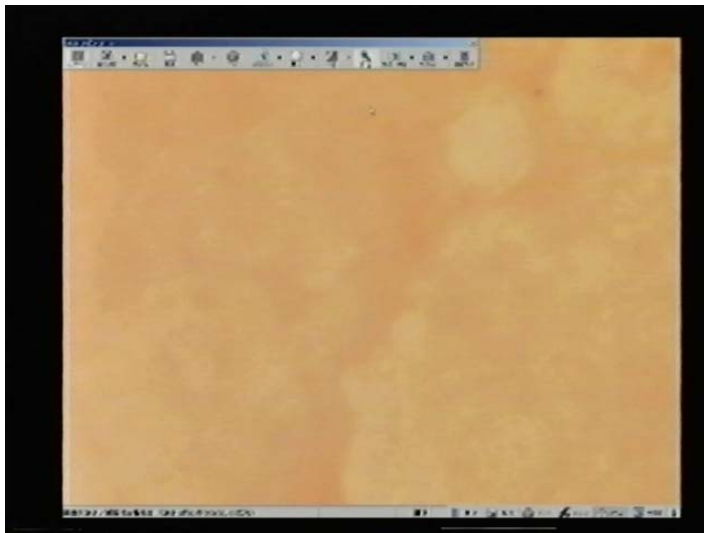
図 2-12-2 マイクロ波焼成による陶器白素地の顕微鏡写真



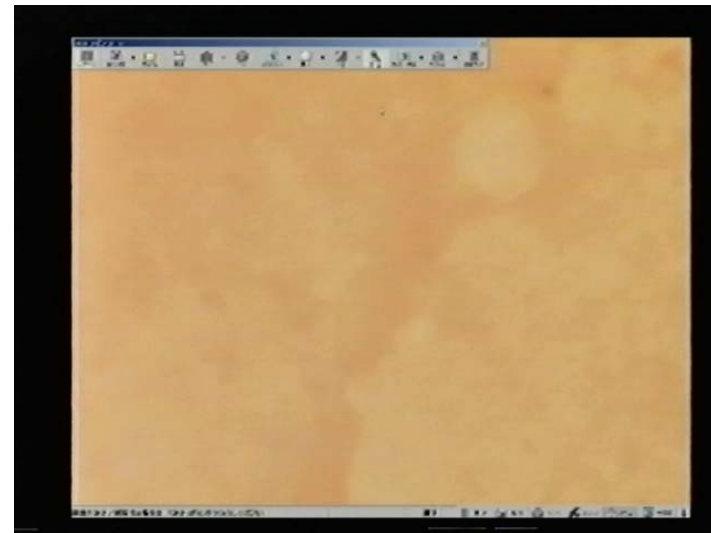
6.6 秒後



6.7 秒後



6.7 秒後



6.8 秒後

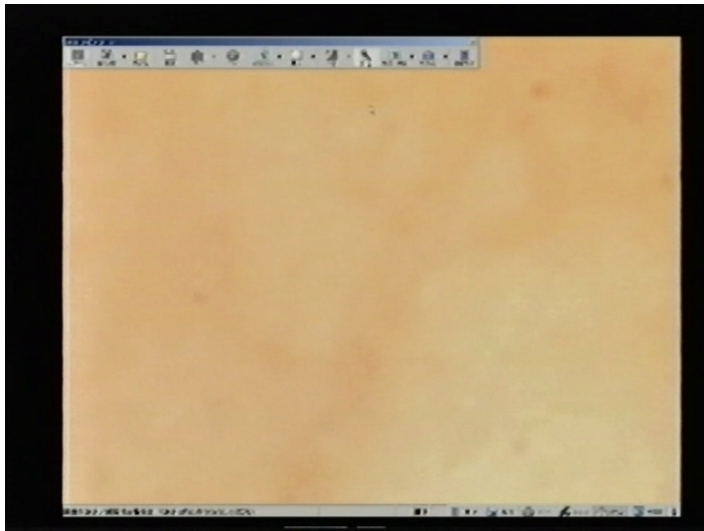
図 2-12-3 マイクロ波焼成による陶器白素地の顕微鏡写真



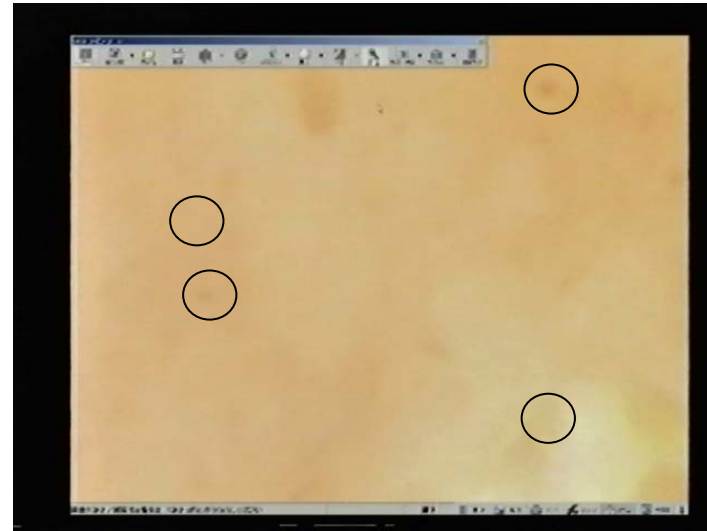
69秒後



70秒後-1



70秒後-2



71秒後 ○印はレンズの汚れ

図 2-12-4 マイクロ波焼成による陶器白素地の顕微鏡写真

2-5 マイクロ波焼成と従来焼成の比較

赤外炉による焼成過程の微視的観察を行った。陶磁器のマイクロ波焼成が従来の熱伝導型の焼成と同様に焼成できることを比較して確認した。

2-5-1 実験方法

マイクロ波焼成の比較試験として赤外炉による陶磁器焼成の微視的観察を行った。図 2-13 に示す赤外炉（米倉製作所；irf-QP1）により、 $10\text{mm} \times 6\text{mm} \times 5\text{mm}$ の磁器素地の素焼きを 1400°C まで 4 分の設定で焼成した。焼成温度は、サンプルに熱電対を接触させ測定した。焼成サンプルは、アルミナサヤに入れた。（図 2-14）焼成の過程をマイクロ波炉と同様に CCD カメラ付き顕微鏡にて観察を行った。

シングルモードキャビティ内のマイクロ波は、図 2-8 に示す電界強度が一定な定在波になり、マイクロ波はほとんど減衰がなく、電界強度が最大点に置かれたサンプルに吸収され効率よく加熱エネルギーとなる。比較に用いる赤外炉は、入力電力を赤外線ランプの熱に変換し、楕円状に設計されたキャビティ内を反射し熱を一定サイズのサンプルに集中させることができる熱伝導型の従来炉である。（図 2-15）金メッキ処理を施したキャビティ壁の反射により壁への吸収はなく、熱は反射してサンプルに効率よく吸収される仕組みとなっている。 $100\text{V} \cdot 2\text{kW}$ の電力をかけ、サンプルを焼成することができ、マイクロ波炉との加熱方法の違いの比較が可能である。



図 2-13 赤外炉と高温型顕微鏡



図 2-14 アルミナサヤ

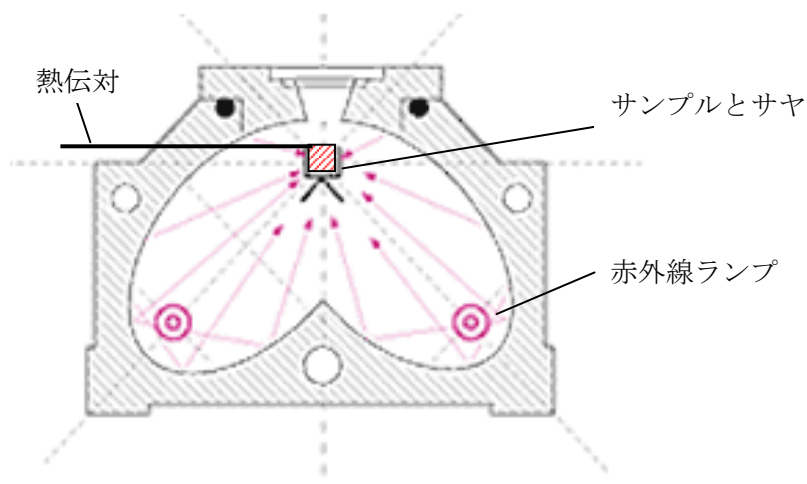


図 2-15 赤外炉キャビティの構造

2-5-2 結果と考察

焼成したサンプルとその断面を図 2-16 に示す。また、微視的観察を行った磁器サンプルの焼成過程の写真を図 2-17 に示す。昇温状況については、1400℃まで 4 分の設定で焼成したが、1200℃以上では昇温速度が遅くなり、昇温には 5 分を要した。

図 2-3 の磁器素地の温度と焼成体寸法の見られるように、950℃以上では収縮を始め、気孔の減少と気孔位置の寸法変化が見られ、1300℃以上では気孔がほぼなくなり焼成が完了した状況を観察できた。

マイクロ波炉での磁器・陶器白素地の焼成状況は、赤外炉における焼成温度・収縮移動・気孔の減少過程等の焼成状況と同様であり、マイクロ波焼成により陶磁器が従来炉と同等に焼成できることが確認できた。マイクロ波焼成により工業的な陶磁器焼成の可能性が予測できる。



図 2-16 焼成したサンプル（左）とその断面（右）

赤外炉の加熱速度の最大値は 1000℃/秒にもかかわらず、1400℃までの昇温に設定した時間よりも長く時間を要した。このときの入力電力は 2kW であり、約 700～1330℃までの昇温時間が 2 分 20 秒の赤外炉焼成に対し、マイクロ波炉焼成では磁器素地で 24 秒（入力電力 80W）陶器白素地で 14 秒（入力電力 200W）となった。マイクロ波炉と赤外炉での温度と時間の関係を比較して図 2-18 に示す。マイクロ波炉と赤外炉では焼成条件が異なる。赤外炉では、サンプルをアルミナ製ボートに載せ焼成した。両者を比較するために、サンプル重量とボート重量よりサンプルの熱容量を計算すると表 2-4 のようになる。赤外炉では、サンプルの約 4 倍の熱がボートに吸収された。マイクロ波炉で約 24 秒かかった昇温は、 $24 \times 4 \div 100$ 秒の昇温と換算し、それぞれのパワーと時間より

マイクロ波炉； $80\text{W} \times 100\text{s} = 8\text{kJ}$

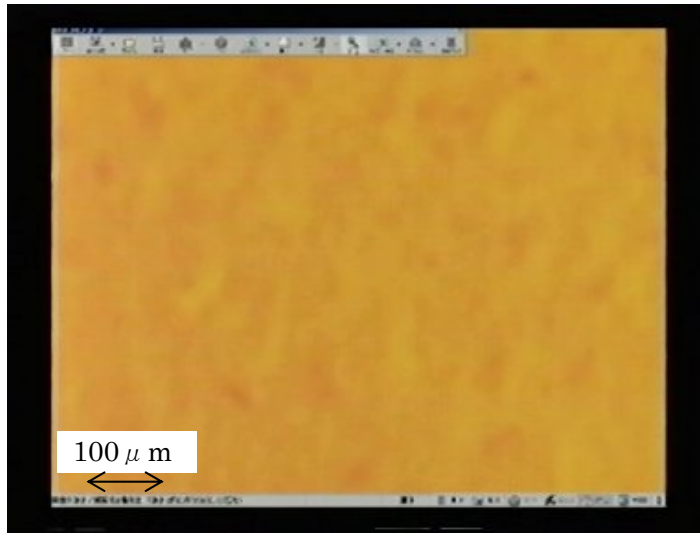
赤外炉； $200\text{W} \times 140\text{s} = 28\text{kJ}$

の差があると計算できる。図 2-18 にマイクロ波焼成における磁器の焼成時間と温度の換算値を点線で示した。赤外炉は熱が設計点に集中する構造と金メッキ処理をした内壁のために熱効率の良い炉である。マイクロ波炉のキャビティ内の電界が集中する体積と、赤外炉の熱が集中する体積はほぼ同じである。以上の条件を考慮しても、赤外炉はマイクロ波焼成より昇温に電力と時間を必要とし、マイクロ波焼成が短時間焼成に向けた焼成であることが確認できた。

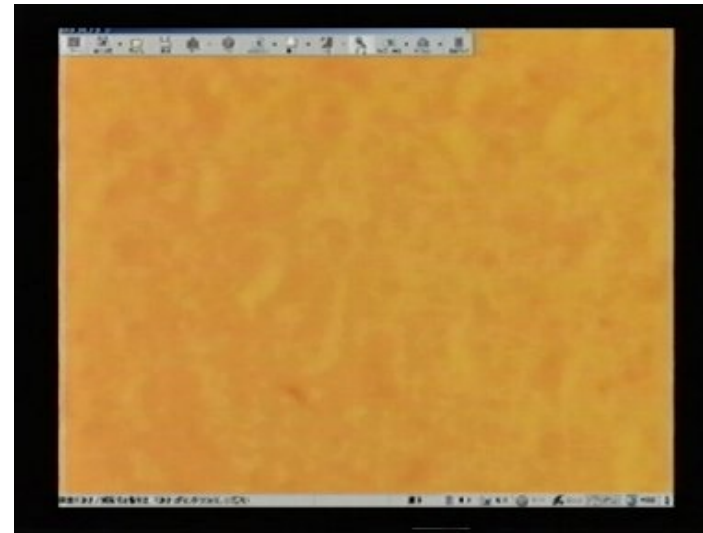
表 2-4 焼成炉と焼成サンプルの重量・熱容量の比較

炉	種別	サンプル重量 g	熱容量 cal
マイクロ炉	サンプル	1.2	0.3
赤外炉	サンプル	0.5	0.125
	ボート	2.3	0.575

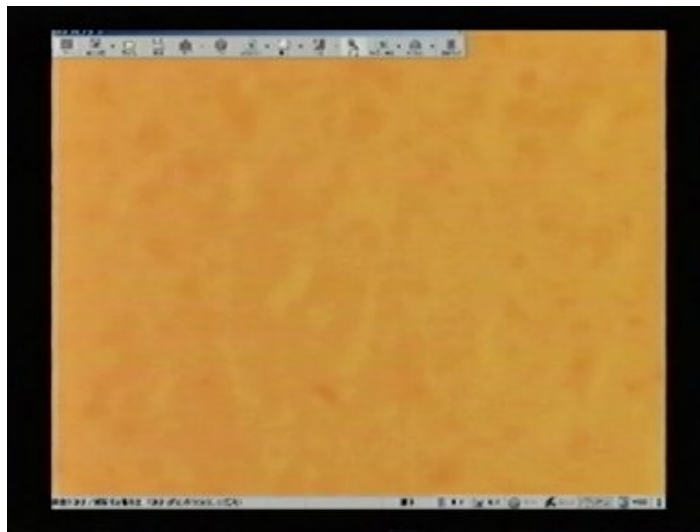
また、赤外炉にて 1200℃以上では温度上昇が遅くなった。これは、1200℃を越えると磁器素地のガラス相が生成し始め⁽⁴⁰⁾⁽⁴²⁾、ガラス相の生成のためとガラス相と固相との反応に



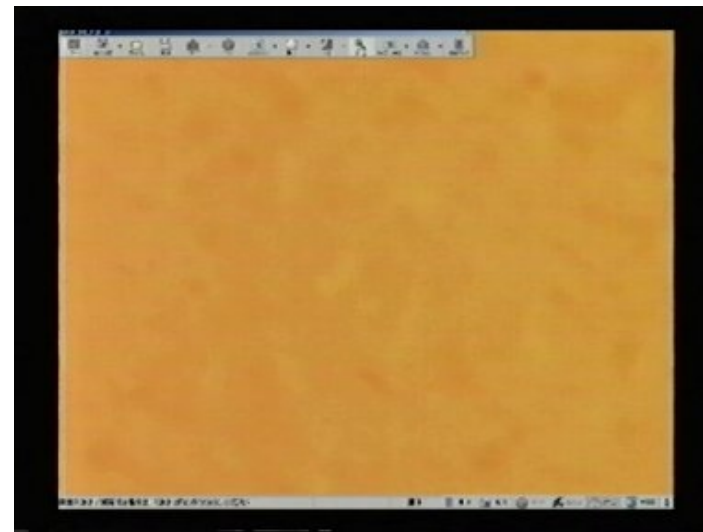
700℃ ○印はレンズの汚れ



950℃ 収縮が始まる温度

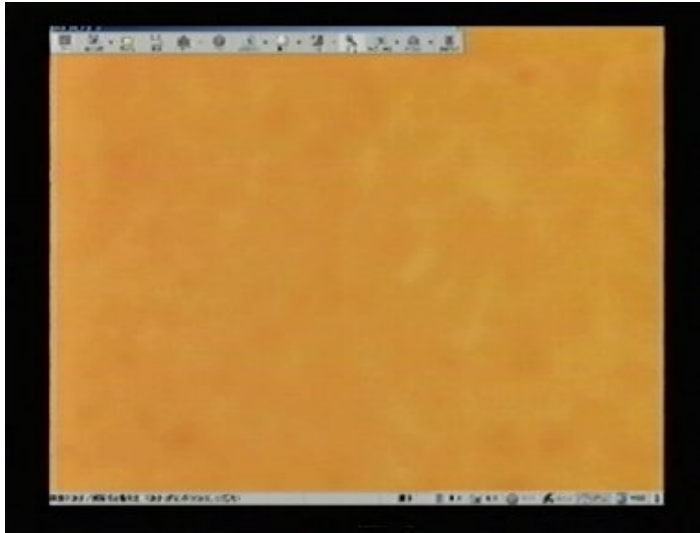


1090℃ 収縮・移動が激しくなる温度

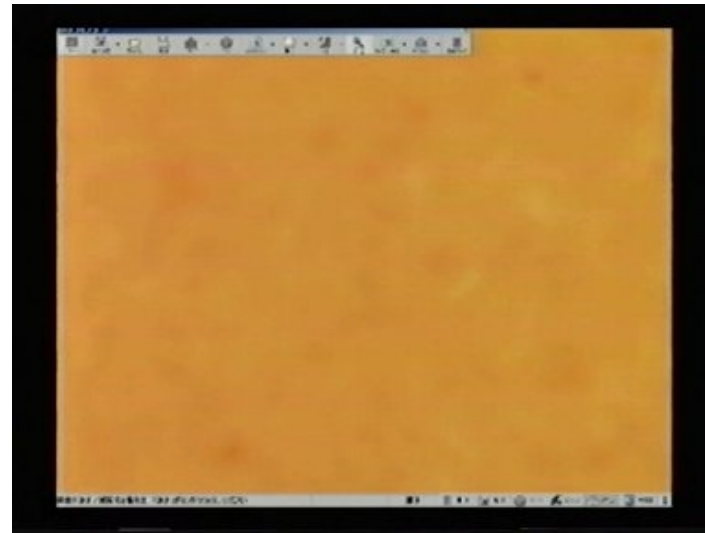


1130℃

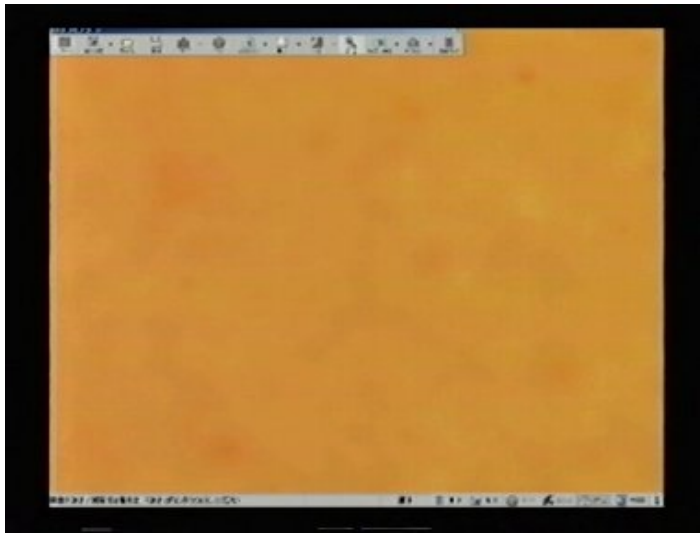
図 2-17-1 赤外炉焼成による磁器の顕微鏡写真



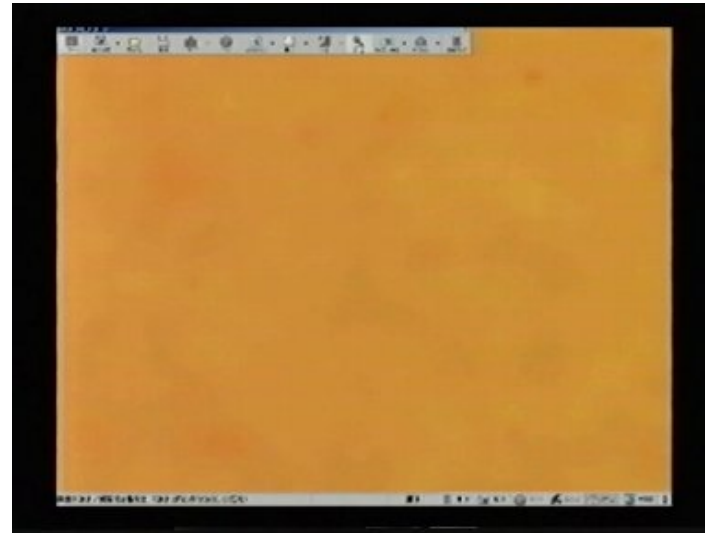
1200°C 気孔の減少



1270°C



1300°C 焼成完了



1360°C ブローチングが始まる温度

図 2-17-2 赤外炉焼成による磁器の顕微鏡写真

より吸熱反応が起こる。⁽⁴³⁾ 赤外炉の熱が温度上昇だけでなく、反応熱に変わるために温度上昇が遅くなった。赤外炉に対しマイクロ波焼成において、ガラス質の多い磁器では吸熱反応のために温度上昇が一旦遅くなるが、ガラス相の生成によりさらにマイクロ波吸収率が向上し、温度上昇が速くなる。(第7章) 磁器の昇温速度が変化する温度が赤外炉に比べ低いのは、放射温度計による温度測定結果を補正していないためである。ガラス相の少ない陶器白素地では、昇温速度に変化はみられなかった。従って、マイクロ波焼成では、従来の伝熱型加熱に比べ短時間焼成が可能になる。

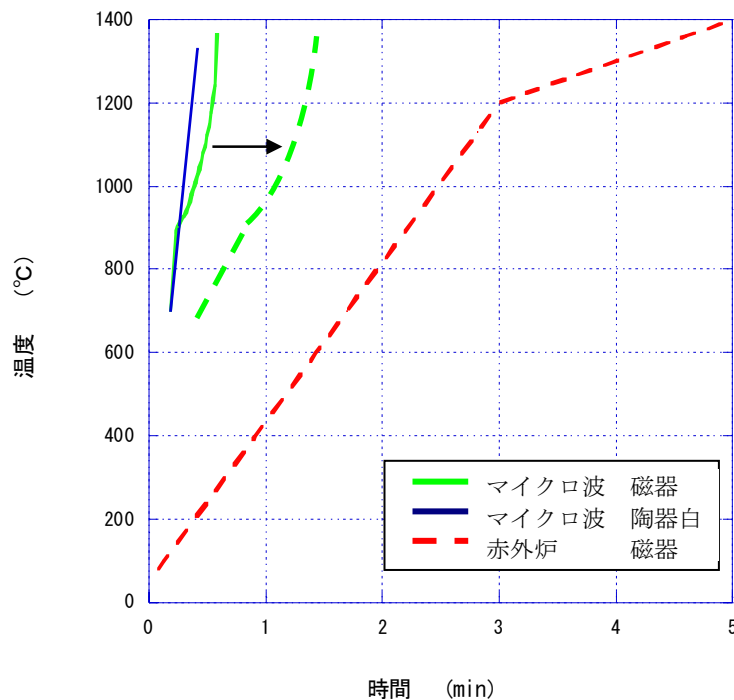


図 2-18 マイクロ波炉と赤外炉での温度と時間の関係
磁器の点線は、サンプル重量・サヤ・加熱エネルギーを換算した加熱時間と温度の関係

2-5-3 結論

熱伝導による赤外炉を使って陶磁器の加熱過程を高温型顕微鏡で観察しマイクロ波焼成と比較することによって、マイクロ波炉では従来炉と同様に陶磁器の焼成が可能であることが確認できた。また、その焼成は、従来の熱伝導型の焼成に比べ短時間で焼成できることも確認できた。

2-6 総括

陶磁器のマイクロ波焼成について理論的考察を行い、陶磁器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マイクロ波エネルギーを熱エネルギーに変換し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。高温型の顕微鏡観察方法を案出し、マイクロ波による陶磁器の焼成過程をその場観察し、熱伝導型の赤外炉と比較を行った。その結果、マイクロ波炉では従来炉での焼成と同様に陶磁器の焼成が可能であることと、また、従来の熱伝導型の焼成に比べ短時間で焼成できることが確認できた。

そして、従来の熱伝導による陶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検証できた。

参考文献

- (1) マイクロ波応用技術研究会編：マイクロ波応用技術，工業調査会，p122 (2004)
- (2) Rustum Roy et al. : Definitive experimental evidence for Microwave effects: radically new effected and H fields, such as decrystallization of oxides in seconds, *Mat Res Innovat* 6:128-140 (2002)
- (3) マイクロ波応用技術研究会編：マイクロ波応用技術，工業調査会，p85 (2004)
- (4) T. Kimura, et al : Microwave synthesis of yttrium iron garnet powder, *J. Am. Ceram. Soc.*, 81, 11, p2961 (1998)
- (5) R.D. Peeland et al : Anisothermal reaction synthesis of garnets, ferrites, and spinels in microwave field, *Mater. Res. Bull.*, 36, 15, p2723 (2001)
- (6) 越島哲夫：普及版マイクロ波加熱技術集成，エヌ・ティー・エス p8 (1994)
- (7) マイクロ波応用技術研究会編：マイクロ波応用技術，工業調査会，p123 (2004)
- (8) 佐藤元泰，渡辺隆，土本光正，長島崇 et al : H14 年度地域新生コンソーシアム研究開発事業報告書「環境負荷低減型短時間・均質加熱焼成プロセスの開発」，経済産業省 p24 (2002)
- (9) 日本電熱協会編：マイクロ波および誘電加熱，p4 (1985)
- (10) M. Sato, A. Matsubara, K. Kawahata, O. Motojima, T. Hayashi, S. Takayama, D. Agrawal, R. Roy, : Microscopically In-situ Investigation for Microwave Processing of Metals by Visible Light Spectroscopy, *Proc. 11th International Conference on Microwave and High Frequency Heating*, O-24, Sep. 11-15, 2005 Italy
- (11) M. Sato, H. Fukushima, et al. : Experimental Investigation of Mechanism of Microwave Heating in Powder Metals, *IRMMW2004/THz2004 Joint*, Karlsruhe, Germany, 2004
- (12) M. Sato, T. Mutoh, T. Shimotsuma, K. Ida, T. Inoue, K. Esaki, O. Motojima, M. Fujiwara, S. Takayama, M. Mizuno, S. Obata, K. Ito, T. Hirai, T. Shimada: RECENT DEVELOPMENT of MICROWAVE KILNS for INDUSTRIES in JAPAN (Invited) *American Ceramic Society "Microwave and radiofrequency Applications"* (2003) 281-289
- (13) M. Sato "Modeling of microwave kilns with isothermal barrier walls", *Conference Proceedings of Progress in Electromagnetics Research Symposium (PIERS)*", 2003
- (14) M. Sato, A. Matsubara: "Microwave Magnetism Selective Heating・In-Situ Measurement of Microscopic Isothermal Process", Submitted to *Phy. Rev. Letter*, on Nov. 2005
- (15) N. Nishino, K. Takahashi, H. Kawazome, Y. Fukagawa, T. Mizuuchi, K. Kondo, F. Sano, K. Nagasaki, H. Okada, S. Kobayashi, and S. Yamamoto: High-speed 2-D image measurement for plasma-wall interaction studies, *Journal of Nuclear Materials* (2004)
- (16) N. Nishino, TAKAHASHI Koichi, KAWAZOME Hayato, FUKAGAWA Yohei, MIZUUCHI Tohru, KONDO Katsumi, SANO Fumimichi, NAGASAKI Kazunobu, OKADA Hiroyuki, KOBAYASHI Shinji, and YAMAMOTO Satoshi: Visible imaging of edge fluctuations in Heliotron-J, *Journal of Plasma and Fusion Research* (2004)
- (17) S.J. Zweben, R.J. Maqueda, D.P. Stotler, A. Keesee, J. Boedo, C.E. Bush, S.M. Kaye, B. LeBlanc, J.L. Lowrance, V.J. Mastrocola, R. Maingi, N. Nishino, G. Renda, D.W. Swain, J.B. Wilgen, NSTX-Team: "High-speed imaging of edge turbulence in NSTX" *Nuclear Fusion* (2004) vol.44, no.1 pp134-53
- (18) S. Takayama et al : Sintering of Traditional ceramics by Microwaves (84GHz and 2.45GHz), *Ceramic Transactions*, 111 p305-312 (2001)
- (19) マイクロ波応用技術研究会編：マイクロ波応用技術，工業調査会，p129 (2004)
- (20) H.D. Kimrey et al : Techniques for ceramic sintering using microwave energy, *IEEE Int. Conf. Infrared Milimeter Wave*, 12, p136 (1987)
- (21) 越島哲夫：普及版マイクロ波加熱技術集成，エヌ・ティー・エス p.127 (1994)
- (22) 福島英沖：豊田中央研究所 実験データ
- (23) 竹内浩一 et al : 透視型ガス焼成炉システムの開発，長崎県窯業技術センター研究報告 (平成 7 年度)，p81 (1995)
- (24) 黒田永二：焼物の謎に迫る，裳華房，p100-105 (1995)
- (25) 佐藤元泰，渡辺隆，土本光正，長島崇 et al : H15 年度地域新生コンソーシアム研究開発事業報告書「環境負荷低減型短時間・均質加熱焼成プロセスの開発」，経済産業省 (2003)

- (26) 窯業読本編集委員会：セラミック化学，日本セラミックス協会，技報堂出版，p97 (1974)
- (27) 黒田永二：焼物の謎に迫る，裳華房，p97-100 (1995)
- (28) 窯業読本編集委員会：セラミック化学，日本セラミックス協会，技報堂出版，p87-89(1974)
- (29) 浜野健也：ファインセラミックスハンドブック，朝倉書店，p62 (1984)
- (30) 窯業読本編集委員会：セラミック化学，日本セラミックス協会，技報堂出版，p91 (1974)
- (31) 日本セラミックス協会：セラミック工学ハンドブック，技報堂出版，p1483 (1989)
- (32) 高嶋廣夫：実践陶磁器の科学，内田老鶴圃，p39-52(1996)
- (33) 素木洋一：工業用陶磁器，技報堂出版，p188-194 (1993)
- (34) 柳田博明 et al：モダンセラミックサイエンス，技報堂出版，p137-144 (1985)
- (35) マイクロ波応用技術研究会編：マイクロ波応用技術，工業調査会，p121 (2004)
- (36) Coble R.L. : J.Appl.Phys., Vol.32, p787 (1961)
- (37) Kingery W.D. : J.Appl.Phys., Vol.30, p301 (1959)
- (38) 日本セラミックス協会：セラミック工学ハンドブック，技報堂出版，p570 (1989)
- (39) M.Sato et al : Insulation Blankets of 2.45GHz Microwave Sintering of Traditional Ceramics, Proc. 2nd World Congress on Microwave & Radio Frequency Processing, MWP-CE-13, Florida, 2000
- (40) 高嶋廣夫：実践陶磁器の科学，内田老鶴圃，p41 (1996)
- (41) 高嶋廣夫：実践陶磁器の科学，内田老鶴圃，p42(1996)
- (42) 窯業読本編集委員会：セラミック化学，窯業協会，p96 (1974)
- (43) 浜野健也：ファインセラミックスハンドブック，朝倉書店，p303, (1984)

第3章 陶磁器のマイクロ波焼成の実証試験

地球規模での環境問題が顕在化しエネルギー価格が高騰する世界情勢において、環境負荷低減への対応・生産コストの削減・顧客を満足させる品質と付加価値の創出・労働環境の改善等の様々な課題が求められる中で、マイクロ波による陶磁器焼成の基礎研究を行った。

マイクロ波による陶磁器焼成は、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り、従来ガス炉と同等に焼成することができた。6種類（磁器・陶器・耐熱・高強度・半磁器・朱泥）の素地と伝統的釉薬から量産用陶磁器釉薬まで30種類の釉薬についてマイクロ波焼成し、従来ガス炉による焼成品と比較した。その結果、外観性状・耐熱性・強度は同等であり、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。磁器素地の吸水率は同等であり、鉄分を含む陶器素地ではマイクロ波焼成では吸水率が小さくなり良く焼き締まった。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。

また、マイクロ波炉焼成室内の均熱性を評価した。温度分布は従来ガス炉の38℃に比べ、6℃と小さくなり、還元焰焼成時のCOガス濃度分布も従来ガス炉に比べ小さく、均一に焼成ができることが確認できた。

そして、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・焼成できることを実証できた。

3-1 緒言

マイクロ波焼成は製品自身が自己発熱するため同じ材料を使用しても風合い・発色・緻密度等において、外部から加熱を行う従来法とは異なる結果を生じることが予想される。そこで、伝統的釉薬から量産用陶磁器釉薬まで30種類の釉薬と6種類（磁器・陶器⁽¹⁾・耐熱⁽²⁾・高強度⁽³⁾・半磁器⁽⁴⁾・朱泥⁽⁵⁾）の素地について種々の温度および雰囲気での焼成した後、発色・物性等の製品性状に及ぼす焼成条件の影響について従来ガス炉と比較検討し、陶磁器を対象としたマイクロ波焼成技術を開発する。

なお、この章では、優れた商品性（外観性状、物性）を持つ製品を得るための基礎研究とし、特に以下の項目に重点をおく。

- ・マイクロ波焼成炉の加熱上昇時間、保持時間を含めたヒートカーブの設定
- ・マイクロ波焼成品と従来ガス炉焼成法による焼成品との外観性状（溶融状態、色調、欠陥等）・物性についての比較検討
- ・陶磁器の加飾技術である上絵付・イングレーズ・下絵付け等の絵付製品の焼成試験
- ・生製品・半製品の乾燥・焼成試験
- ・還元焰焼成時、炉内にLP燃焼ガスを送り込んだ際の還元COガス分布状態の把握
- ・従来ガス炉で用いているSiCの棚板は、マイクロ波の吸収が陶磁器に比べ大きく、マイクロ波炉では使用できないことが予想されるため、最適な棚板を検討する
- ・マイクロ波焼成炉の均熱性（温度分布10℃以下）・均質性の評価

3-2 陶磁器の焼成時間と焼成温度

3-2-1 焼成サンプルの準備

3-2-1-1 石膏型の製作

一定形状・同一サイズのサンプルを成形するために機械ロクロ成形用⁽⁶⁾⁽⁷⁾の石膏型⁽⁸⁾を製作した。サンプル成形用の石膏型を次の順序で製作した。石膏型を図 3-1 に示す。

原型 → 捨型 → ケース → 使用型

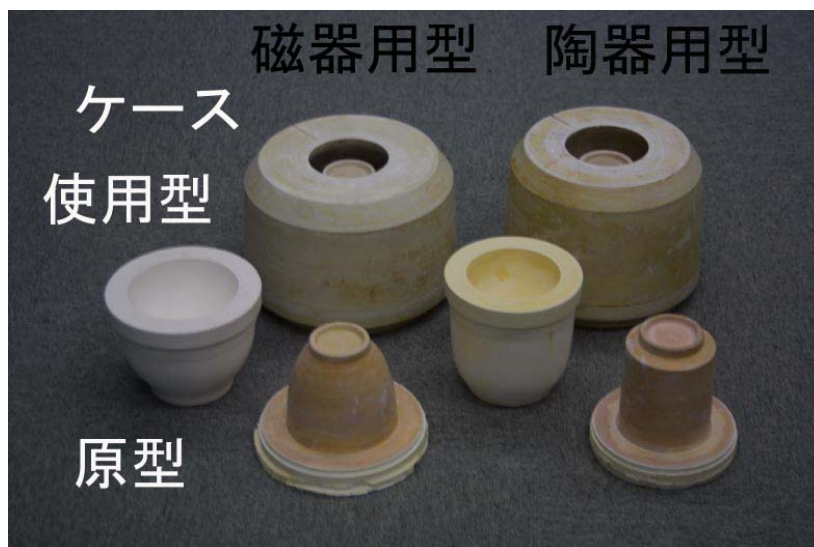


図 3-1 製作した石膏型

3-2-1-2 サンプルの成形と素焼き

製作した石膏型を用いて、機械ロクロでサンプルを成形し 700℃で素焼⁽⁹⁾をした。サンプルの形状とサイズを表 3-1 に、素焼サンプルを図 3-2 に示す。素地は磁器質・陶器質（白・赤）を用い、素地の焼き締まりと伝統釉の発色試験に用いた。

表 3-1 サンプル形状とサイズ

種別	形状	焼き上がりサイズ
磁器素地	湯呑み（丸）	φ 85－75h
陶器（白素地）	湯呑み（キッタチ）	φ 75－85h
陶器（赤素地）		



図 3-2 素焼サンプル

3-2-1-3 メーカーサンプルの選定

メーカーにて生産されている製品について、焼成温度と焼成雰囲気メーカーに合わせた実用的な焼成試験を行った。様々な素地と釉薬による製品を選定し、メーカーで成形・素焼・施釉を行った半製品を焼成試験に供した。ただし、白雲陶器⁽¹⁰⁾は生素地から締焼をした後、釉焼を行った。また、すり鉢は素焼きを行わず釉を生掛けした後、焼成試験を行った。

試験に用いたメーカーサンプルとメーカーの焼成温度を表 3-2 に示す。

表 3-2 選定したメーカーサンプルと焼成温度

焼成雰囲気	種別	品名	焼成温度
酸化焰焼成	ニューボーン	マグカップ	1227℃
	朱泥	湯呑 急須	1190℃
	耐熱陶器	土鍋 水コンロ	1215℃
	白雲陶器	小鉢 貯金箱	1066℃
	半磁器	マグカップ ポット	1227℃
	貫入磁器	マグカップ	1252℃
還元焰焼成	磁器（白磁）	茶碗	1320℃
	陶石立て磁器	湯呑 茶碗	1320℃
	高強度磁器	中鉢	1326℃
	大物磁器	すり鉢	1301℃
	志野釉陶器	湯呑（志野） 丸皿（志野） 角皿（赤素地） どんぶり（鼠志野） 灰皿（紅志野）	1295℃
	ビードロ釉セッ器	小皿	1295℃

※ 焼成温度は、メジャーリングによるメーカーでの測定温度

3-2-1-4 釉薬の調整

基礎釉と伝統釉の焼成試験を行うために、表 3-3 に示す釉薬を調整した。⁽¹¹⁾原料の分析結果より基礎釉（透明釉）の調合をゼーゲル計算⁽¹²⁾した化学組成を表 3-4 に示す。

10Kg の磁器製ポットミルで釉薬を調合し 5hr の粉碎の後、成型・素焼きをした磁器・陶器素地（白・赤）に施釉した。

表 3-3 調整した伝統釉の種類

焼成雰囲気	種別	成分	名称
酸化焰焼成	基礎釉	石灰亜鉛釉系	透明釉 骨灰失透釉 マット釉
		灰釉系	長石釉 焼津灰失透釉 イラボ釉
	色釉	鉄釉系	天目釉 飴釉 黄瀬戸釉 バリウムオリーブ釉
		銅釉系	織部釉 銅青磁釉 バリウム青緑釉
		クロム釉系	バリウムヒワ釉
		顔料系	黄釉 赤茶釉 トルコ青釉 黒釉
	基礎釉	石灰タルク釉系	透明釉 骨灰失透釉 マット釉
還元焰焼成	色釉	鉄釉系	天目釉 鉄朱斑釉 金結晶釉 青白磁釉
		銅釉系	均窯 銅赤釉
		顔料系	ローズピンク釉 黄釉 トルコ青釉

表 3-4 調整した透明釉の化学組成

	透明釉（酸化）	透明釉（還元）
SiO ₂	61.97	64.67
CaO	8.28	10.08
Al ₂ O ₃	11.11	10.20
K ₂ O	3.64	2.49
ZnO	4.76	—
Na ₂ O	2.75	0.98
MgO	0.10	2.27
Fe ₂ O ₃	0.15	0.11
Ig.Loss	6.85	8.69
Total	99.61	99.49

3-2-1-5 従来ガス炉によるサンプルの焼成

マイクロ波炉焼成と従来ガス炉焼成を比較するために、焼成用サンプルをマイクロ波炉と比較用の同サイズの従来ガス炉と、メーカーでの従来ガス炉で焼成した。

3-2-1-5-1 従来ガス炉による焼成

成形・施釉した磁器・陶器サンプルをマイクロ波炉と同サイズの従来ガス炉（0.15m³）で焼成した。熱電対⁽¹³⁾にて温度測定と温度管理を行った。併せて、ゼーゲルコーン⁽¹⁴⁾とメジャーリング⁽¹⁵⁾でも焼成温度を測定した。焼成条件を表 3-5 に示す。

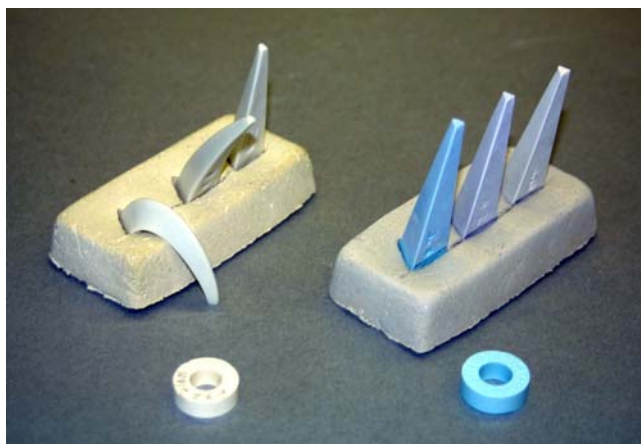
使用した従来ガス炉を図 3-3 に、ゼーゲルコーンとメジャーリングを図 3-4 に示す。

表 3-5 従来ガス炉の焼成条件

焼成条件	温度		時間	
	ゼーゲルコーン	設定温度	焼成時間	キープ時間
酸化焰焼成	SK9（1280℃）	1250℃	8 時間	1 時間
還元焰焼成	SK11（1320℃）	1270℃	8.5 時間	1 時間



図 3-3 従来ガス炉

図 3-4 ゼーゲルコーン（上）とメジャーリング（下）
右側が焼成前、左側が焼成後

陶磁器焼成の温度測定と温度管理には、主に熱電対が使われている。熱電対や放射温度計では測定時の温度が把握できるのみで、昇温速度や保持時間・炉内雰囲気を含めた加熱の効果の把握にはゼーゲルコーンやメジャーリングが使われる。ゼーゲルコーンは三角錐の試料で、SK 番号に対応した熔倒温度が決まっており、熔倒状況により製品に与えられた熱の効果を焼成中あるいは窯出し後に評価する。メジャーリングはリングの形をした試料で、焼成の進行に伴い収縮したリングの直径を窯出し後に測定し、与えられた熱の効果を評価する仕組みになっている。特に、マイクロ波焼成は、自己発熱を利用した焼結による短時間焼成であるため、熱電対や放射温度計などの温度計の数値だけで従来炉と同じ製品を得ることは困難であり、ゼーゲルコーンとメジャーリングによる比較と管理が重要になる。

ゼーゲルコーンとメジャーリングは異なる炉との比較用に、また、メジャーリングは温度の定量評価用に用いた。

3-2-1-5-2 メーカーガス炉による焼成

選定したサンプルは、メーカーの従来ガス炉で焼成した製品と、マイクロ波炉で焼成したサンプルの外観性状・欠点について比較した。焼成温度についてはメジャーリング温度で比較した。

3-2-2 マイクロ波焼成における焼成時間と温度の最適条件の検討

3-2-2-1 マイクロ波炉の構造

試験に使用したマイクロ波炉の仕様を表 3-6 に、その構造を図 3-5-1 に示す。ステンレス製本体の中に、図 3-5-2 に示すサセプター（等温断熱壁）をセッティングしてある。サセプターは、焼成体と同じ成分よりなる薄いムライトコーティング壁（2～3mm）とマイクロ波吸収率の低い 130 t mm のアルミナシリカ質の断熱材により構成されている。

表 3-6 陶磁器用マイクロ波炉仕様

項 目	仕 様
最高温度	1400℃
マイクロ波電力	20kW (2.5 kW×8)
炉内寸法	0.6×0.9×0.8m
焼成室有効寸法	0.44×0.44×0.82m (0.15m ³)



図 3-5-1 マイクロ波炉

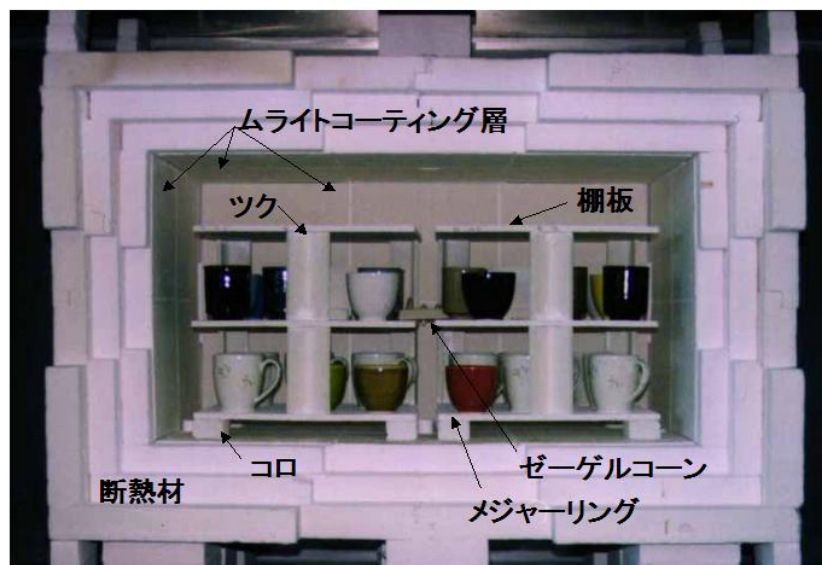


図 3-5-2 マイクロ波炉の構造

3-2-2-2 マイクロ波炉内の温度測定

マイクロ波炉内の温度測定と焼成温度管理は放射温度計によった。放射温度計は、(株)チノー社製で、以下の 2 種類を使用し、750℃で切り替えた。

低温用；IR-CTA80CF (20～800℃)

高温用；IR-CWS00CF (600～1800℃)

放射温度計による温度測定では実際に焼成している製品の温度を測定するのが理想だが、陶磁器においては製品がいつも同じ条件とは限らない。つまり、各種の素地、釉によりマイクロ波の吸収が異なるほか、個々の輻射率や形状の違いも温度測定に影響する。さらに、これらの材質や形状が違う製品をまとめて 1 つの炉に窯詰めした場合、どの製品の温度を測定し炉内の温度とするかが問題となる。そこで以上のことから、陶磁器焼成試験では材質と形状を一定にした標準試料を作成し、炉内に置いた標準試料で温度管理を行うことにした。使用する標準試料は陶磁器とマイクロ波吸収が同等なムライト平板（サイズ；50w×70h×1tmm）を用いた。（図 3-6、図 3-7）

また、放射温度計⁽¹⁶⁾と併用してゼーゲルコーン、メジャーリングも使用し、従来の温度管理と比較した。

ムライト平板を標準試料として、放射温度計により温度管理を行った焼成結果では、ゼーゲルコーン、メジャーリングとも焼成温度と焼成時間に応じた変化を示した。また、メーカー焼成品については、ゼーゲルコーンとメジャーリングでメーカー炉の温度を測定した結果にあわせて、マイクロ波炉でも同程度の温度で焼成することができた。従って、ゼーゲルコーン、メジャーリングとも温度評価の尺度として使えるものと判断した。また、メジャーリングは電気炉との比較を行い、マイクロ波による発熱を示すのではなく雰囲気温度を示し、電気炉と同等の熱履歴を示すことが確認できた。（図 3-8）

メジャーリングによる温度測定では、設定温度と昇温時間、保持時間の違いにより読みとり温度は異なった。これは、メジャーリングは 1 時間一定温度に保持した場合に所定の温度を示す設定になっており、昇温時間も保持時間も短時間となる今回の試験では、読みとり温度が低い温度表示となった。

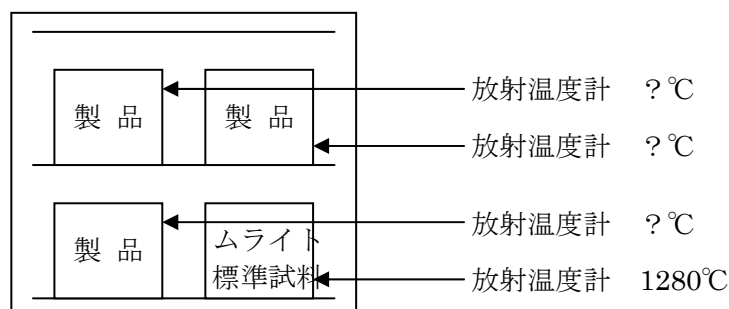


図 3-6 放射温度計による測定方法

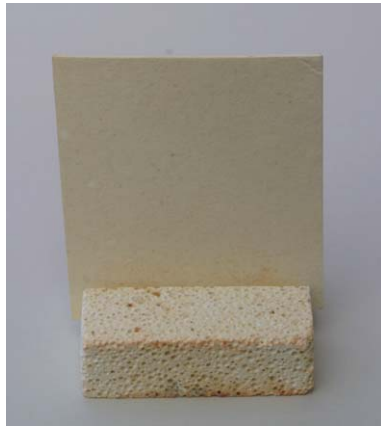


図 3-7 ムライト標準資料

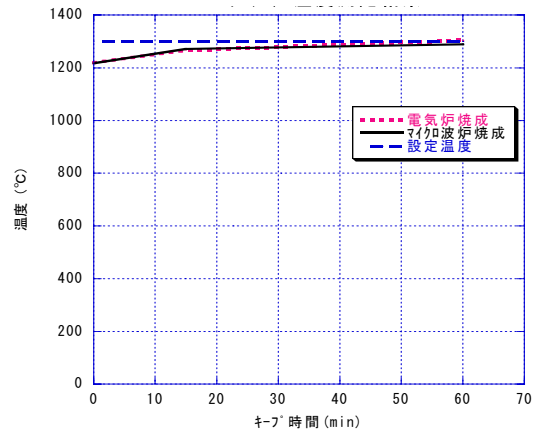


図 3-8 電気炉焼成とマイクロ波炉焼成におけるメジャーリング温度測定結果

3-2-2-3 棚板の選定

焼成によるベンディング変形に強く、また、マイクロ波による発熱特性の良い最適棚板を選定した。一般的にはアルミナ含有率が多くなると耐熱性が向上する。マイクロ波焼成では、アルミナはマイクロ波吸収率が低く発熱が小さい特性があるので、材質の差による最適棚板を選定する必要がある。ムライト・アルミナ質の成分比率の異なる5種類の棚板を用いて同じ条件で陶磁器の焼成を行った。メジャーリングによる温度の測定結果と棚板の変形量および焼成に必要な消費電力量を比較し、マイクロ波炉での陶磁器焼成に最適な棚板を検討した。

棚板組みにおいて、最下段のツクの下にはコロを置かず、棚板の一边の中央に荷重がかかるように耐久試験を行った。(図 3-5-2、図 3-9) メジャーリングは棚板の上に直接置き、棚板の違いによる発熱特性を評価した。棚板の変形量は、反りの最大値を測定した。

焼成条件は、炉内総重量を 25 k g (サンプル7.5kg、棚板・ツク⁽¹⁷⁾・コロ17.5 k g) とし、1320℃まで3時間で昇温した。サンプルは磁器・陶器の湯飲みを用いた。試験に用いた棚板を表 3-7 に示す。

5 種類の棚板を焼成した時の、メジャーリングの温度測定結果および棚板の変形量と消費電力量を表 3-8 に示す。焼成したサンプルの外観性状に差異はなく割れ・欠けはなかった。

表 3-7 棚板評価に用いたサンプル

棚板名	寸法	成分	耐火度
棚板 A (酸化焰焼成用)	350×300×10	アルミナ 56%	SK30
棚板 B (酸化焰焼成用)	350×300×15	アルミナ 56%	SK30
棚板 C (還元焰焼成用)	350×300×10	アルミナ 70%	SK37
棚板 D (還元焰焼成用)	350×300×10	アルミナ 63%	SK36
棚板 E (還元焰焼成用)	350×300×10	アルミナ 63%	SK35

表 3-8 棚板の評価結果

棚板名	メジャーリング温度	変形量	消費電力量
棚板 A	1258℃	3.4mm	75kWh
棚板 B	1263℃	0.8 mm	83kWh
棚板 C	1247℃	0.9 mm	74kWh
棚板 D	1256℃	0.5 mm	75kWh
棚板 E	1251℃	0.4 mm	75kWh

アルミナ比率の低い棚板 A、棚板 B では、発熱（メジャーリング温度で判定）が大きくなり、アルミナ比率の高い棚板 C では、発熱が小さくなった。酸化焰焼成では、棚板 B が変形量が少なく発熱も高いので最適として以降の試験に使用した。棚板 B は、一般に電気炉（酸化焰焼成）で使用されている。しかし、高温となる還元焰焼成では、耐火度が高く（SK36）・変形量が少なく・発熱が大きくなる棚板 D を使用した。

棚板の耐久性について、酸化焰焼成に用いた棚板 B は、30 回の焼成で問題となるような変形はなかった。しかし、棚板 D を使用した還元焰焼成では、7 回の焼成で変形が目立つようになった（図 3-9）。還元焰焼成では、耐火度の高い棚板を使用し、コロの上にツクを積み上げるように棚板の組み方を考慮して変形を防止する必要がある。

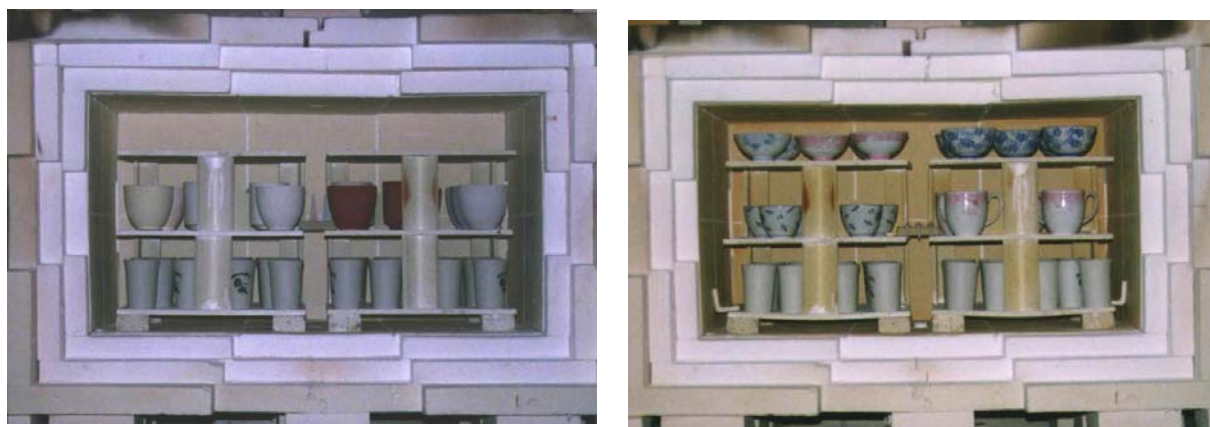


図 3-9 棚板の耐久試験（左－試験前、右－試験後）

次に、発熱性・耐熱性に優れた棚板 D について、耐久性を確認した。焼成条件は、炉内重量を 25 k g（サンプルー 7.5kg、棚板・ツク・コロ 17.5kg）とし、750～1340℃まで 1～2 時間（昇温速度 650～750℃/hr）で昇温し、棚板の耐久試験による変形量を評価した。今回の試験では、コロの上にツクを積み重ねる棚板組にて評価した。

棚板 D の耐久試験結果を表 3-9 に示す。棚板 D は高温の還元焰焼成にも使用でき、50 回以上の焼成においても変形量が小さく、発熱性も良かった。棚板 D が陶磁器焼成に適している。

表 3-9 棚板の耐久試験による変形量

棚板	焼成回数	棚板変形量
棚板 D	50 回以上	1.2mm

3-2-2-4 ヒートカーブの設定

マイクロ波炉で、ゼーゲルコーンの溶倒状況（SK9；1280℃）がガス炉焼成と同じになる様に、焼成温度と昇温時間を 2・3・4 時間、また、保持時間を 0・15・30 分と変えて焼成し、消費電力量、磁器の吸水率、外観性状を比較して、マイクロ波焼成に最適なヒートカーブを検討した。（図 3-10）

炉内総重量を 25 k g（サンプルー 7.5kg、棚板・ツク・コロ 17.5 k g）とした。サンプルは磁器の湯飲みを用いた。

マイクロ波炉でゼーゲルコーン溶倒状態が同程度になったプログラム設定温度を表 3-10 に、この時の消費電力を図 3-11 に示した。

酸化焰焼成において、昇温時間が 2・3・4 時間、保持時間が 0・15・30 分の違いがあってもゼーゲルコーンの溶倒状況が同程度になるように焼成条件をコントロールできた。焼成時間が短いほど消費電力量は小さくなり、保持時間の長短による消費電力に大きな差はなかった。また、この時、外観性状に差異はなかった。（3-3-1-3-1 参照）保持時間が 15 分より 30 分の方が消費電力量が大きくなる理由は、最高温度が 30 分の方が低く設定できるからである。

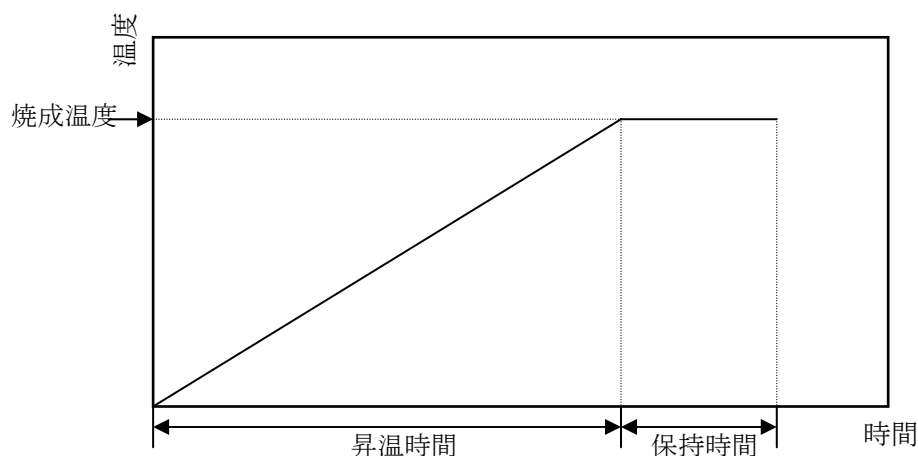


図 3-10 ヒートカーブの設定に必要な条件

焼成した磁器サンプルの吸水率は 0.15～0.33%の値を示し、従来のガス炉焼成による吸水率 0.18%と同程度となった。ゼーゲルコーンの溶倒状況も同じであり、素地の焼き締まりは同程度である。

従って、酸化焰焼成では短時間で消費エネルギーの少ない昇温時間 2 時間および昇温時間 2 時間で保持時間 15 分を最適ヒートカーブとし、また、還元焰焼成にも適用した。

以後、焼成条件は 1280℃まで 2 時間で昇温し保持 15 分の場合には、1280℃－2hr－15min と表記する。

表 3-10 焼成時間と保持時間をかえたプログラム設定温度（酸化焰焼成）

		保持時間		
		なし	15 分	30 分
昇温時間	2 時間	1320℃	1310℃	1290℃
	3 時間	1310℃	1300℃	1280℃
	4 時間	1300℃	1280℃	1265℃

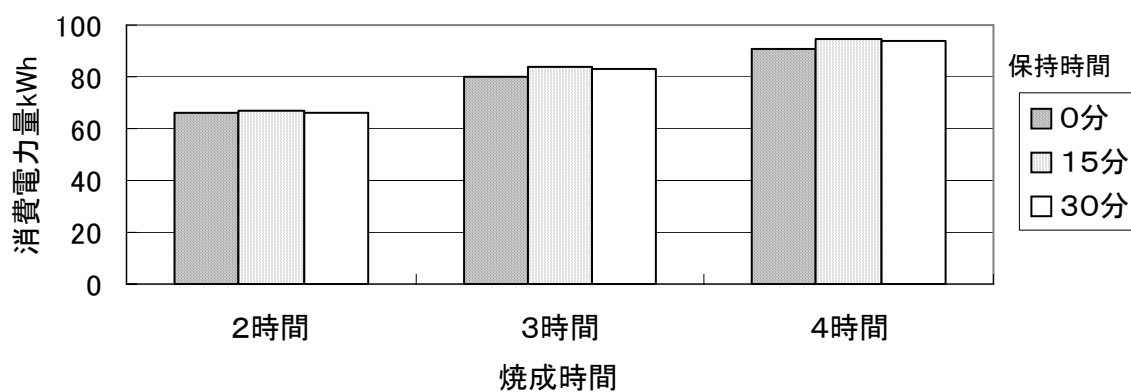


図 3-11 ヒートカーブによる消費電力量の違い

3-2-2-5 炉内温度分布の測定

メジャーリングを使用し炉内の温度分布測定を行った。焼成条件は、炉内総重量を 25 k g（サンプル7.5kg、棚板・ツク・コロ17.5 k g）とし、1320℃-2hr-0min で焼成した。サンプルは磁器・陶器の湯飲みを用いた。従来ガス炉での温度分布測定を同じ条件にて行い比較した。

メジャーリングで測定したマイクロ波炉内の温度分布の測定結果を図 3-12 に、従来ガス炉での測定結果を図 3-13 に示す。

マイクロ波炉の温度分布測定結果は、6℃と狭かった。炉内に大きな温度差がなく、炉内のどの位置でも同じように焼成できることが確認できた。また、サセプターとサンプルの温度差は、1230℃焼成（140min）で 6～10℃の測定結果⁽¹⁸⁾があり、炉内は 10℃以下の均熱性が確認された。従来ガス炉で測定した温度分布測定結果では 38℃の温度差があり、マイクロ波炉では温度分布が小さいことが確認できた。

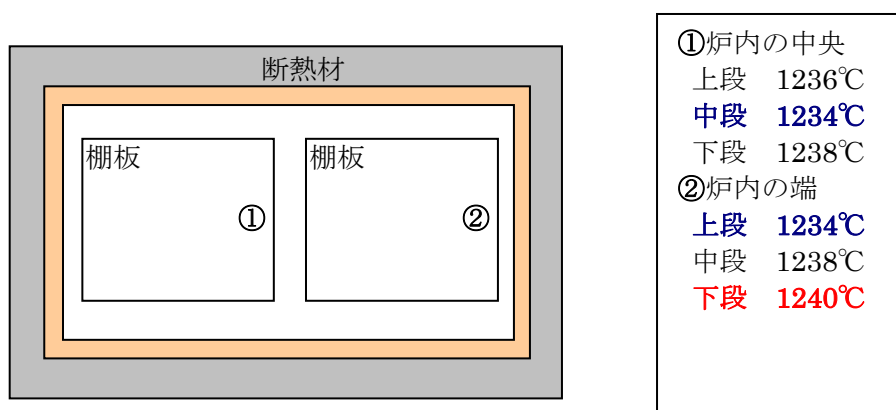


図 3-12 マイクロ波炉内の温度分布（炉内を上から見た図）

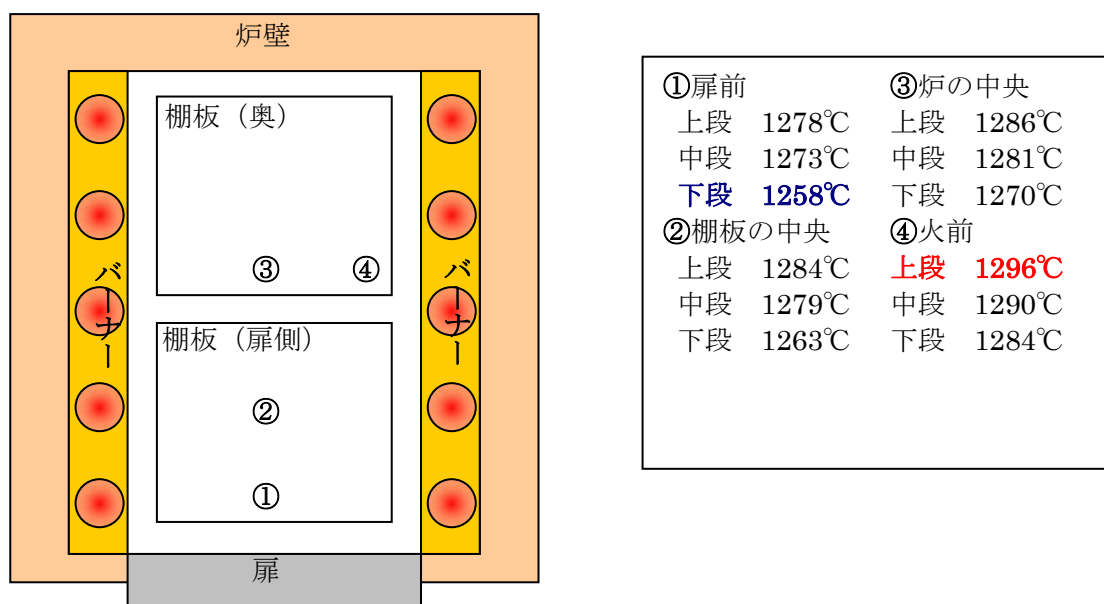


図 3-13 ガス炉内の温度分布（炉内を上から見た図）

3-3 陶磁器素地と釉薬の焼成

3-3-1 マイクロ波炉による陶磁器サンプルの焼成

3-3-1-1 伝統釉サンプルの焼成温度

成形・施釉した磁器・陶器サンプルを最適ヒートカーブである 2 時間焼成－15 分保持の条件で酸化焰および還元焰焼成をした。

メジャーリングで測定した焼成温度を表 3-11 に示す。最適ヒートカーブで設定した焼成ヒートカーブで、狙いの温度を達成できた。

表 3-11 伝統釉サンプルの焼成温度

焼成雰囲気	設定温度	焼成温度
酸化焰焼成	1280℃	1250℃
還元焰焼成	1300℃	1270℃

3-3-1-2 メーカーサンプルの焼成温度

メーカーの焼成温度に対応するように、メーカーの従来ガス炉にゼーゲルコーンとメジャーリングを入れて温度測定した結果に基づいて、同等の温度になるようマイクロ波炉でサンプルを焼成した。また、還元焰焼成は、事前に測定しておいたメーカー焼成炉における CO ガス濃度に合わせて焼成を行った。

ゼーゲルコーンとメジャーリングでメーカーの従来ガス炉の温度を測定した結果と、それに基づいてマイクロ波炉で焼成した設定温度と温度測定結果を表 3-12 にまとめた。

表 3-12 の温度設定でマイクロ波焼成をしたサンプルの外観性状は、3-3-1-3-2 メーカーサンプルの外観性状の項で示した。

表 3-12 メーカー炉での焼成条件とマイクロ波炉での設定温度と焼成結果

			メーカー炉による焼成		マイクロ波炉による焼成		
メーカー		雰囲気	メジャーリング 指示温度	ゼーゲルコーン	設定温度	メジャーリング 指示温度	ゼーゲルコーン
A	朱泥	酸化	1190℃	SK6a 不倒	1220℃	1196℃	SK6a 不倒
B	ニューボーン 半磁器	酸化	上 1221℃ 中 1227℃ 下 1232℃	SK7 半倒	1260℃	1223℃	SK8 半倒
C	半磁器 貫入釉	酸化	上 1252℃ 中 1252℃ 下 1236℃	SK9 半倒	1275℃	1240℃	SK8 完倒
D	耐熱陶器	酸化	上 1215℃ 下 1213℃	SK6 完倒	1250℃	1213℃	SK7 完倒
E	白雲陶器	酸化	締め焼き 1066℃ 釉焼き 1017℃	—	締め焼き 1100℃ 釉焼き 980℃	締め焼き 1122℃ 釉焼き 968℃	—
F	白磁 陶石立て磁器	還元	1320℃	SK12 完倒	1310℃	1279℃	SK13 完倒
G	高強度磁器	還元	上 1332℃ 中 1326℃ 下 1326℃	SK12 完倒	1350℃	1320℃	SK13 完倒
H	大物磁器	還元	中 1301℃ 下 1290℃	SK11 半倒	1320℃	1289℃	SK13 完倒
I	志野釉 ビードロ釉	還元	1295℃	SK11 完倒	1320℃	1286℃	SK12 完倒

3-3-1-3 マイクロ波焼成品の評価

従来ガス炉の焼成品とマイクロ波炉での焼成品を比較検討するために以下の項目について評価を行った。

3-3-1-3-1 伝統釉サンプルの外観性状

伝統釉サンプルの外観性状は、以下の項目について評価した。

- ・釉性状
- ・色調
- ・欠陥（切れ 貫入 変色 ピンホール その他）⁽¹⁹⁾

3-2-2-4・ヒートカーブの設定で昇温時間と保持時間をかえた焼成サンプルの外観性状を比較し、表 3-13 にまとめた。酸化焰焼成において、どのヒートカーブにおいても外観性状は同じであった。

マイクロ波炉の 2 時間－15 分保持焼成と従来ガス炉での焼成品の外観性状を比較し、表 3-14（酸化焰焼成）、表 3-15（還元焰焼成）にまとめ、写真を図 3-14 に示した。

酸化焰焼成ではマット釉は粗面状態、イラボ釉はアワが発生した。また、透明釉・顔料系（黄・赤茶）にジワ（釉面に極微のピンホールが無数に発生したもの）がみられ、織部釉ではピンホールが発生した。

還元焰焼成⁽²⁰⁾⁽²¹⁾のサンプルについては、従来ガス炉のサンプルと同等の外観性状を得た。

酸化焰焼成⁽²²⁾の銅青磁釉、顔料系の黒釉と還元焰焼成の金結晶は、従来炉に比べ結晶の析出量が多く、また、結晶のサイズも大きくなった。一般的には冷却速度が遅くなると結晶粒がよく成長する。マイクロ波炉では、断熱性の高い炉材を使用しているので冷却速度は遅くなっている。マイクロ波炉焼成においては冷却速度の調整により、結晶粒のサイズコントロールが可能となる。従来ガス炉に比べ課題を残した釉薬について、3-3-1-4 釉薬の調整試験にて対策を行った。

3-3-1-3-2 メーカーサンプルの外観性状

マイクロ波炉の焼成サンプルとメーカー炉の焼成サンプルの比較を図 3-15 に示す。

朱泥、半磁器、ニューボーン、磁器、高強度磁器では、同等な外観性状が得られた。白雲陶器は黄色、紫色、青色とも発色が濃くなった。短時間焼成で、顔料の蒸発が抑えられたためである。従来ガス炉の焼成に比べ、顔料の添加量を減らすことと施釉を薄くすることによって、コストダウンを図ることができる。耐熱素地の土鍋では従来ガス炉の焼成品と比較してイラボ釉のツヤが異なった。ビードロ釉ではアワが発生した。伝統釉サンプルと同様に厚めのガラス釉であるイラボ釉とビードロ釉に解けとアワの発生が課題となった。すり鉢の柿釉は発色が異なった。還元ガスについて、濃度だけでなく還元ガスのかけ方が課題となった。志野釉では火色が従来ガス炉のように出なかった。志野釉は焼成時間のみならず、冷却時の還元濃度の管理が必要となり、今回の焼成条件だけでは火色を出せなかった。

表 3-13 ヒートカーブによる外観性状の違い (酸化焰焼成)

分類	釉薬名 (素地の種類)	2 時間			3 時間			4 時間		
		0 分	15 分	30 分	0 分	15 分	30 分	0 分	15 分	30 分
石灰亜鉛釉系	透明釉 (磁器)	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ			ジワ	ジワ	ジワ
	骨灰失透釉 (陶器赤)	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ
	マット釉 (磁器)	粗面	粗面	粗面	粗面	粗面	粗面	粗面	粗面	粗面
	長石釉 (陶器白)		ジワ			ジワ		ジワ	ジワ	ジワ
灰釉系	焼津灰失透釉 (陶器赤)									
	いらぼ釉 (陶器赤)	アワ	アワ	アワ	アワ	アワ	アワ	アワ	アワ	アワ
鉄釉系	天目釉 (陶器白)									
	鉛釉 (陶器白)									
	黄瀬戸釉 (陶器白)									
	バリウムオリーブ釉 (磁器)									
銅釉系	織部釉 (陶器白)	ビソール				アワ	アワ		アワ	
	銅青磁釉 (陶器白)	結晶	結晶	結晶	結晶	結晶	結晶	結晶	結晶	結晶
	バリウム青緑釉 (磁器)									
	バリウムヒワ釉 (磁器)									
クロム系	黄 P-40 (磁器)	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ
顔料系	赤茶 M-13 (磁器)	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ	ジワ
	トルコ青 M-5000 (磁器)									
	黒 M-700 (磁器)	結晶	結晶	結晶	結晶	結晶	結晶	結晶	結晶	結晶

酸化

表 3-14 マイクロ波炉焼成と従来ガス炉焼成の外観性状の比較 (酸化焰焼成)

マイクロ波焼成 / ガス炉焼成

分類	釉薬名(素地の種類)	釉性状	色調	欠 陥					備 考		
				切れ	貫入	変色	ピンホール	歪	マイクロ波	ガス窯	
石灰亜鉛釉系	透明釉(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	ジワ(小)	
	骨灰失透釉(陶器赤)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	有 / 有	○ / ○	○ / ○		
	マット釉(磁器)	×	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	粗面	
	長石釉(陶器白)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
灰釉系	焼津灰失透釉(陶器赤)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	有 / 有	○ / ○		
	いらぼ釉(陶器赤)	×	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	アワ	
鉄釉系	天目釉(陶器白)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
	鉛釉(陶器白)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
	黄瀬戸釉(陶器白)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	有 / 有	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
	バリウムオリーブ釉(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
	織部釉(陶器白)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	有 / 有	○ / ○	○ / ○		
銅釉系	銅青磁釉(陶器白)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	結晶(多)	結晶(多)
	バリウム青緑釉(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
	バリウムヒワ釉(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	ジワ	
顔料系	黄 P-40(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	ジワ(大)	ジワ(大)
	赤茶 M-13(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	ジワ(小)	ジワ(小)
	トルコ青 M-5000(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
	黒 M-700(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	結晶(多)	結晶(多)

表 3-15 マイクロ波炉焼成と従来炉焼成の外観性状の比較（還元焰焼成）

分類			釉薬名(素地の種類)	釉性状	色調	欠 陥					備 考	
						切れ	貫入	変色	ピンホール	歪	マイクロ波	ガス窯
基礎釉	石灰タルク釉系	透明釉(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
		骨灰失透釉(陶器赤)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
		マット釉(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
色釉	鉄釉系	天目釉(陶器白)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
		鉄朱斑釉(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	結晶(多)	
		青白磁釉(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
		金結晶釉(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	結晶(多)	
		銅赤釉(陶器赤)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
銅釉系	銅赤釉(陶器白)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
	均窯(陶器赤)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
	均窯(陶器白)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
顔料系	ローズピンク G-10(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
	黄 R-9(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
	トルコ青 M-6000(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		



1 透明釉



2 骨灰失透釉



3 マット釉



4 長石釉



5 焼津灰失透釉



6 イラボ釉



7 天目釉



8 飴釉



9 黄瀬戸釉



10 バリウムオリーブ釉



11 織部釉



12 銅青磁釉



13 バリウム青緑釉



14 バリウムヒワ釉



15 黄釉



16 赤茶釉



17 トルコ青釉



18 黒釉

図 3-14-1 マイクロ波炉焼成品（右）と従来炉焼成品（左）の比較（酸化焰焼成）



19 透明釉



20 骨灰失透釉



21 マット釉



22 天目釉



23 鉄朱斑釉



24 金結晶釉



25 青白磁釉



26 均窯



27 銅赤釉



28 ローズピンク釉



29 黄釉



30 トルコ青釉

図 3-14-2 マイクロ波炉焼成品（右）と従来炉焼成品（左）の比較（還元焰焼成）

《酸化焰焼成》



1 ニューボン



2 朱泥



2 耐熱素地



4 白雲陶器



5 半磁器マグカップ



6 半磁器ポット



7 貫入釉マグカップ

《還元焰焼成》



8 磁器 (白磁)



9 陶石立て磁器



10 高強度磁器



11 大物 (すり鉢)



12 志野釉



13 ビードロ釉

図 3-15 マイクロ波炉焼成品 (右) とメーカー炉焼成品 (左) の比較

3-3-1-4 釉薬の調整試験

3-3-1-4-1 透明釉

酸化用の透明釉には釉面にジワ⁽²³⁾が発生した。ゼーゲル計算し石灰の割合を増加することにより基本組成を低い温度で溶けるように調整し（表3-16）、同様な焼成条件である1310℃-2hr-15minにて、酸化焰焼成した。

表3-16 透明釉の調合比較

	釜戸長石	石灰	亜鉛華	蛙目粘土
従来調合	80	15	5	5
改良調合	78.3	17.4	4.3	5

低い温度で熔融するように調整し焼成した結果（メジャーリング温度1259℃）、釉面が正常に焼成できた。（図3-16）



図 3-16 透明釉のジワ（左が改善前、右が改善後）

3-3-1-4-2 織部釉

織部釉では釉面にピンホールが発生した。ゼーゲル計算し灰の割合を増加することにより基本組成を低い温度で溶けるように調整し（表3-17）、低温となる1220℃-2hr-15minで、酸化焰焼成した。

表3-17 織部釉の調合比較

	釜戸長石	合成土灰	蛙目粘土	炭酸銅
従来調合	50.0	45.0	5.0	8
改良調合	47.6	47.6	4.8	8

1310℃-2hr-15min（メジャーリング温度1266℃）での焼成では、ピンホールが発生したが、低温の1220℃-2hr-15minで酸化焰焼成した結果（メジャーリング温度1196℃）、ピンホールの発生なく焼成できた。（図3-17）

織部の着色材である酸化銅の融点は1230℃であり、融点以上（焼成温度のメジャーリング実測値1266℃）にて気化が始まり、気化した酸化銅が抜け出た穴がピンホールとなって残る。そこで、焼成温度を酸化銅の融点より低く設定することによりピンホールの発生を抑制できた。



図 3-17 織部釉のピンホール（左が改善前、右が改善後）

3-3-1-4-3 白マット釉

白マット釉では釉面が粗面となった。媒溶効果の高い亜鉛華の割合を減少させ（表 3-18）、また、釉薬の濃度を比重50から43に減少させ薄く施釉した。同様な焼成条件である1310℃-2hr-15minにて、酸化焰焼成した。

表3-18 白マット釉の調合比較

	福島長石	石灰	亜鉛華	生カオリン	焼カオリン	福島珪石	ジルコニット
従来の調合	30.17	16.28	4.40	8.00	17.20	21.16	8.00
改良調合	30.17	16.28	0.55	8.00	17.20	21.16	8.00

釉薬を改良して焼成した結果（焼成温度のメジャーリング実測値1259℃）、釉面が正常に焼成できた。（図3-18）マイクロ波焼成による釉薬の煮えが収まり粗面の解消ができた。



図 3-18 白マット釉の粗面（左が改善前、右が改善後）

3-3-1-4-4 イラボ釉

イラボ釉では、赤素地にアワが見られた。白素地においては良好であった

イラボはガラス状になった灰が赤素地中の鉄分と反応し発泡した。そこで、灰の割合を減らして、その減量分と陶石を耐火度の高い粘土に置換し（表 3-19）、同様な焼成条件である 1310℃-2hr-15min にて酸化焰焼成した。（焼成温度のメジャーリング実測値 1259℃）ガラス化を抑制した結果、アワの発生なく焼成できた。（図 3-19）

表3-19 イラボ釉の調合比較

	天草陶石	合成土灰	酸化チタン	蛙目粘土
従来の調合	10	90	4	—
改良調合	—	80	4	20



図 3-19 イラボ釉のアワ（左が改善前の赤素地、中央が改善後の赤素地、右は白素地）

3-3-1-4-5 志野釉

志野釉は火色⁽²⁴⁾が発色しなかった。古陶磁出土品の分析結果を参考にしてノルム計算し釉薬の調合を変更した。ナトリウム長石である平津長石と粘土を調合して作成された志野釉にたいし、カリウム長石主体に調合を変更した。古陶磁と成分の近似したオーストラリア長石と大平長石SS-150を35%ずつと志野土を30%添加して調整した。（表 3-20）素地は山久加藤製土所の志野土を使用した。

基本的な志野土を使用し、低温となる設定温度 1230℃-2hr-15-min（メジャーリング実測値 1200℃）で還元焰焼成焼成し、1000℃以下の冷却時に酸化させることにより火色の発色が得られた。（図 3-20）しかし、芸術性のある志野釉の性状については、長石の種類・粒度、焼成温度と焼成時間のさらなる検討が必要である。

表3-20 志野釉の調合

原料名	K長石	Na長石	Ca長石	全長石	粘土	石英
古陶磁（釉薬）	67.53	10.03	12.05	89.61	3.67	6.72
平津長石（90%）＋粘土（10%）（改善前）	22.03	40.20	0.94	63.17	13.59	23.24
オーストラリア長石＋大平長石SS-150＋志野土	46.57	21.42	1.65	69.64	12.10	18.26



図 3-20 志野釉（素地）の火色（左は改善後、右は改善前）

3-3-2 焼成品質の評価

3-3-2-1 焼成歪みの評価（真円度の測定）

焼成による歪み⁽²⁵⁾を評価するために、真円度を測定した。真円度の評価はメーカーサンプルを用い、従来ガス炉により焼成したサンプルとマイクロ波焼成したサンプルを比較した。酸化焰焼成では半磁器のマグカップ（各 52 個）を、還元焰焼成では磁器の茶碗（各 40 個）をサンプルとした。（表 3-21、図 3-21）

歪みの評価は、焼成したマグカップおよび茶碗の口端部分の外径の最大径と最小径をノギス（1/100）により測定し、次式により求めた値を”ひずみ率”とし比較した。⁽²⁶⁾

$$\text{ひずみ率 (\%)} = \frac{\text{最大径} - \text{最小径}}{(\text{最大径} + \text{最小径})/2} \times 100$$

表 3-21 歪みの評価サンプル

焼成雰囲気	酸化焰焼成	還元焰焼成
焼成温度	1250℃	1320℃
焼成サンプル	マグカップ	茶碗
サイズ	φ 81×100hmm	φ 117×55hmm



図 3-21 歪みの評価サンプル 左；マグカップ 右；茶碗

マグカップおよび茶碗の口端部分の外径より測定した”ひずみ率”を表 3-22、図 3-22 に示す。

マイクロ波焼成では、マグカップ、茶碗のいずれの形状も、”ひずみ率”の平均値・標準偏差が小さくなり、酸化焰・還元焰焼成とも、焼成歪みが小さくなった。マイクロ波焼成では炉内の温度分布が均一となり輻射熱による外熱の影響を受けにくく、サンプルそのものが自己発熱により焼成され、サンプル自身も均熱になり、焼成時間も短いためである。

表 3-22 マグカップおよび茶碗の”ひずみ率”（単位％）

		酸化焰焼成	還元焰焼成
マイクロ波炉	平均	1.01	1.12
	標準偏差	0.48	0.75
従来ガス炉	平均	1.15	1.59
	標準偏差	0.59	1.23

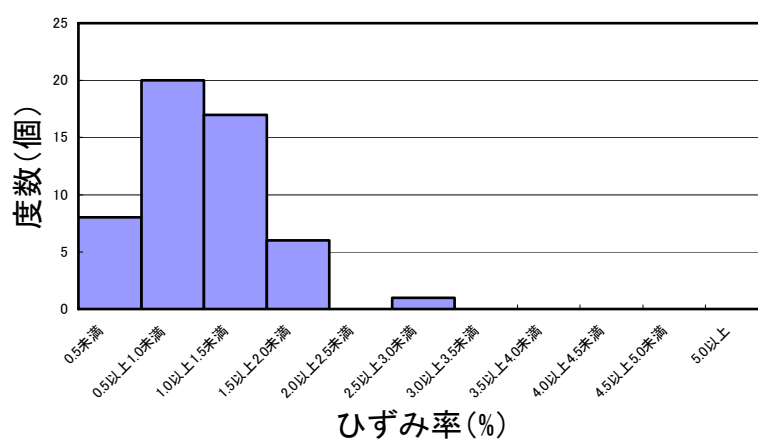


図 3-22-1 焼成品の”ひずみ率”ー マイクロ波炉酸化焰焼成（マグカップ）

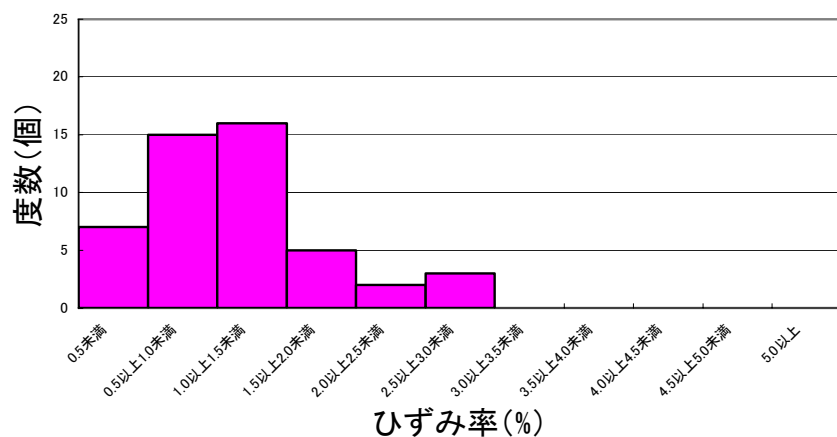


図 3-22-2 焼成品の”ひずみ率”ー 従来ガス炉酸化焰焼成（マグカップ）

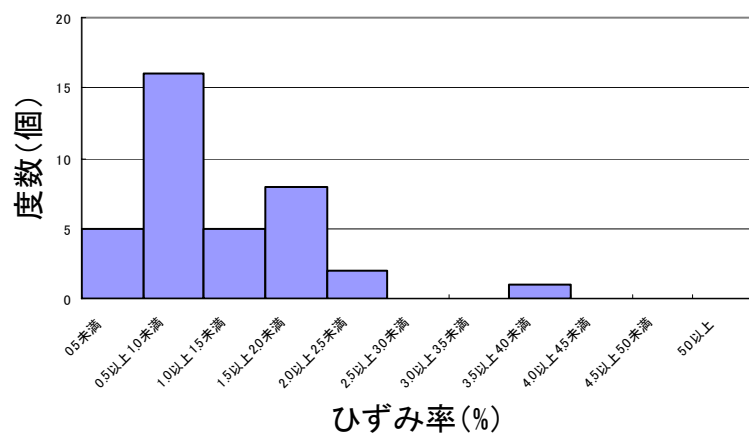


図 3-22-3 焼成品の”ひずみ率”ー マイクロ波炉還元焰焼成（茶碗）

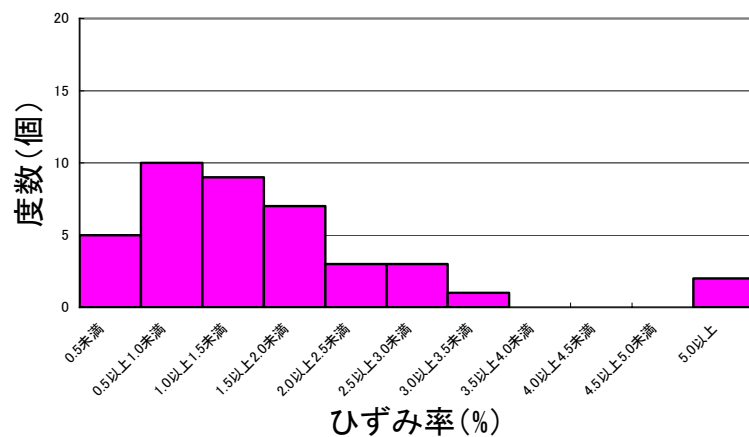


図 3-22-4 焼成品の”ひずみ率”ー 従来ガス炉還元焰焼成（茶碗）

3-3-2-2 吸水率の評価（磁器・陶器素地）

マイクロ波で焼成（1300℃－2hr-15min）した素地を切り出して吸水率⁽²⁷⁾の測定を行った。従来ガス炉の焼成品からもサンプルを切り出し比較した。酸火焰・還元焰焼成で磁器素地と陶器素地の焼き締まりを確認した。サンプルは、磁器・陶器（白素地、赤素地）の3種類を用いた。

試料を110℃の乾燥器中で3時間乾燥させ、デシケーター内で室温まで冷却した際の乾燥重量（W₁）と、試料を水中で2時間煮沸し室温まで除冷した際の飽水重量（W₂）を用いて次式より求めた。

$$\text{吸水率（\%）} = \{ (W_2 - W_1) / W_1 \} \times 100$$

マイクロ波炉と従来ガス炉で焼成した磁器と陶器の吸水率測定結果を表3-23に示す。

陶器素地（白、赤）について、マイクロ波焼成では、従来ガス炉焼成に比べメジャーリングによる焼成温度は低いが、酸化焰・還元焰焼成とも吸水率は低く良く焼き締まった。酸化鉄はマイクロ波吸収特性が良く、陶器素地に含まれる鉄分が素地の発熱特性を向上させているためである。

鉄分が0.06%と少ない磁器素地はマイクロ波・従来ガス炉焼成とも吸水率は同等で同程度に焼き締まった。マイクロ波焼成における磁器の吸水率は0.15～0.20%の値を得たが、焼成温度を1340℃（昇温時間2時間）まで上げると吸水率は0.07%となり素地はより焼締った。

表 3-23 吸水率測定結果

	マイクロ波炉		従来ガス炉	
	酸化焰焼成	還元焰焼成	酸化焰焼成	還元焰焼成
設定温度	1300 ℃	1300 ℃	1250 ℃	1270 ℃
メジャーリング温度	1266 ℃	1268 ℃	1276 ℃	1270 ℃
陶器（白素地）	5.39 %	3.48 %	5.87 %	5.07 %
陶器（赤素地）	4.75 %	3.26 %	6.25 %	7.54 %
磁器素地	0.15 %	0.20 %	0.18 %	0.20 %

3-3-2-3 マイクロ波吸収特性と陶磁器の焼き締まり

前項の吸水率の評価（磁器・陶器素地）の項にて、磁器・陶器素地（白素地・赤素地）の吸水率を測定し焼き締まりを評価した。鉄分が0.06%と少ない磁器素地はマイクロ波焼成と従来ガス炉焼成で同等の結果を得たが、鉄分を1～3%含む陶器素地はマイクロ波焼成の方が良く焼き締まった。

陶器素地では、マイクロ波焼成は従来ガス炉に比べ焼成時間が約1／4と短く、また、メジャーリングによる焼成温度測定結果も低いにもかかわらず、酸化焰・還元焰焼成とも吸水率が低く良く焼き締まる理由について考察してみる。

マイクロ波炉と従来ガス炉で焼成した磁器と陶器の吸水率測定結果を表3-24と図3-23に示す。また、陶器素地に含有される成分の酸化鉄のマイクロ波吸収特性を表3-25にまとめる。

表 3-24 吸水率測定結果

素地	鉄分	マイクロ波炉		従来ガス炉	
		酸化焰焼成	還元焰焼成	酸化焰焼成	還元焰焼成
磁器素地	0.06 %	0.15 %	0.20 %	0.18 %	0.20 %
陶器 (白素地)	1.0 %	5.39 %	3.48 %	5.87 %	5.07 %
陶器 (赤素地)	3.0 %	4.75 %	3.26 %	6.25 %	7.54 %
焼成温度(メジャーリング 温度)		1266 °C	1268 °C	1276 °C	1270 °C

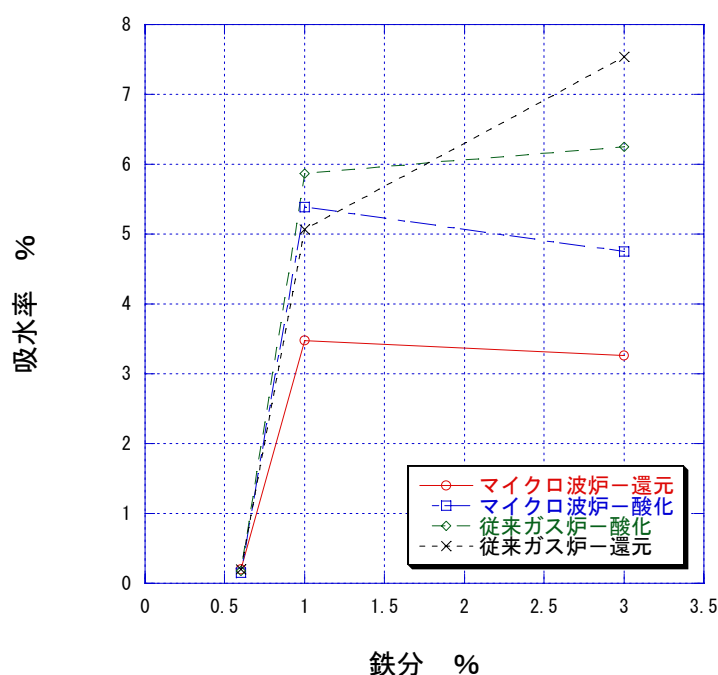


図 3-23 素地中の鉄分の量と吸水率の関係

表 3-25 陶磁器成分とマイクロ波吸収特性 ※印 (28~29)

成分	誘電損失	
	R T	1000°C
白素地	0.070	0.188
赤素地	0.067	0.308
Fe ₂ O ₃ (酸化焰焼成)	0.118 ※	—
Fe ₃ O ₄ (還元焰焼成)	9.140 ※	—
FeO (還元焰焼成)	4.740 ※	—

酸化鉄は陶器素地に比べ誘電損失が大きくマイクロ波吸収特性が良い。陶器素地に含まれる鉄分が良く発熱し、素地の焼き締まる 1000°C 以上では素地の焼結性を向上させている。そのため、従来ガス炉焼成に比べ、マイクロ波焼成では鉄分を含む陶器素地は自己発熱して加熱されやすい、酸化鉄を 3% 含む赤素地は、1% の白素地に比べより発熱しやすくなり吸水率が低くなり良く焼きしまった。鉄分が 1% と少ない白素地の酸化焰焼成では、1000°C における白素地と Fe₂O₃ の誘電損失の値が近いために、マイクロ波焼成をしても自己発熱の効果が

小さく、従来ガス炉焼成の吸水率の値に近くなった。また、酸化焰焼成に比べ還元焰焼成で良く焼きしまった。酸化焰焼成では鉄分は Fe_2O_3 状態で存在するのに対し、還元焰焼成では Fe_2O_3 が還元され Fe_3O_4 や FeO となり、マイクロ波をより吸収しやすくなり、自己発熱が大きくなったためである。^(3 0 ~ 3 1)

マイクロ波焼成では、被焼成体の粒子 1 個ずつのミクロな領域で熱の非平衡が発生し、粒子が自己発熱する温度により焼成結果が従来焼成と異なるためである。陶磁器素地の中にマイクロ波による発熱特性の大きな物質を混合すると、従来ガス炉より良く焼き締まる知見が得られた。そこで、陶磁器素地にマイクロ波吸収特性の大きな材料を組合せ、マイクロ波による自己発熱により通常より低温で焼成する材料の可能性が考えられる。この結果を基に、第 7 章で環境負荷低減材料の開発とそのメカニズムの解明を行った。

3-3-2-4 耐熱性試験

3-3-2-4-1 スポーリング試験

1213℃-2hr-15min で焼成した耐熱素地製の土鍋に対してスポーリング試験を行った。耐熱素地の試験温度差は陶磁器製耐熱食器の熱衝撃試験法 (JIS S2400) ^(3 2) に基づき 280℃で行った。

耐熱素地に対してスポーリング試験を行なった結果を表 3-26 に示した。マイクロ波焼成にても耐熱性に問題はなかった。

表 3-26 スポーリング試験結果

焼成炉	温度差℃	可否
マイクロ波炉	280	○
ガストンネル炉	280	○

3-3-2-4-2 線熱膨張係数

耐熱素地について線熱膨張係数 ^(3 3) を従来ガス炉で焼成した素地と比較した。測定には、MAC SIENCE 社製 TD5000S を用いた。

耐熱素地の線熱膨張係数測定結果をマイクロ波炉焼成、従来ガス炉焼成で焼いた素地と比較してに表 3-27 にまとめた。双方とも同等の線熱膨張係数を示し、前述のスポーリング試験結果でも異常がなく、耐熱素地では焼成方法によらず耐熱性は変わらないと判断できる。

表 3-27 耐熱素地の線熱膨張係数測定結果

焼成炉	スポーリング 指示温度	900℃での線膨張係数 (基準温度 30℃) ×(10 ⁻⁶ /K)
マイクロ波炉	1213℃	0.8
従来ガストンネル炉	1215℃	0~1.3

3-3-2-5 曲げ強度

1320℃-2hr-15min で焼成した高強度磁器 (施釉) と磁器 (白磁施釉) について曲げ強度試験 ^(3 4) を行った。

曲げ強度試験は給食用磁器食器の曲げ強さ試験方法 (日本セラミックス協会規格 JCSR203-1996) に基づいた。サンプルの作製は鋳込み成型法により行った。

高強度磁器と磁器についての曲げ強度試験の結果を表 3-28 にまとめる。高強度磁器、磁器、双方ともに、マイクロ波炉焼成とガス炉焼成は同等の強度を示した。

表 3-28 曲げ強度測定結果

素地	焼成炉	メジャーリング 指示温度	曲げ強度 MPa
高強度磁器	マイクロ波炉焼成	1299℃	250
	メーカー従来ガス炉焼成	1308℃	247
磁器	マイクロ波炉焼成	1290℃	109
	メーカー従来ガス炉焼成	1308℃	107

3-3-3 陶磁器素地焼成に関する水分の影響

本焼成の試験では、陶磁器の生製品および施釉直後の製品を窯詰した場合、マイクロ波による急激な温度上昇により製品の損傷が起こる場合があった。また、十分に乾燥した後でも湿度の高い時期には製品が空気中の水分を吸収するため、マイクロ波焼成により製品が損傷する危険がある。また損傷の程度が大きな場合には、水蒸気爆発により製品が粉々に砕けて飛び散るので、他の製品や炉を傷めることとなる。そこでマイクロ波焼成を行う場合には水分量をどの程度まで管理すべきかの目安を確定した。さらに生製品および施釉直後の水分を含んだ製品を乾燥し焼成する場合の焼成パターンを見いだした。マイクロ波による水分乾燥⁽³⁵⁾⁽³⁶⁾の特徴を陶磁器の乾燥に適応させる検討を行った。

3-3-3-1 製品中の水分量によるマイクロ波焼成の影響

素焼素地（陶器赤素地、陶器白素地、磁器素地）をあらかじめ乾燥器で乾燥させ（110℃、3 時間）、規定の量の水分を均一に吸収させた後、製品が約 300℃になるまでマイクロ波炉で加熱し、加熱後に素地を観察し破損の状況を調べた。試験に用いたサンプルの形状は湯呑で、マイクロ波出力は 25kW（2.5kW×10 台）で行った。サンプルはあらかじめ乾燥させたムライト質のサヤに入れ、1 個ずつ試験した。サンプルに吸収させた水分量の条件を表 3-29 に示す。

表 3-29 湯呑に吸水させた水分量

形状（素地）	水分率
湯呑（陶器赤素地、陶器白素地、磁器素地）	4%
	3%
	2%
	1.5%

吸水させた素焼素地をマイクロ波加熱した際の破損の状況を表 3-30 に示した。吸水させた素焼素地をフルパワーで昇温させた場合に試験体が破損しない条件は、磁器素地水分率 3%以下・陶器素地 1.5～2%以下に乾燥したサンプルに限られることがわかった。素地の種類により破損状況が異なった理由は、素地の粘土分と粒度の違いにより素焼き素地の強度に差があるためである。

表 3-30 吸水素地の加熱試験

	水分率 4%	水分率 3%	水分率 2%	水分率 1.5%
陶器（赤素地）	×	×	○	○
陶器（白素地）	×	×	×	○
磁器素地	×	○	○	○

○…異状なし ×…異状あり

3-3-3-2 生素地乾燥（素焼）パターン

マイクロ波炉で生素地あるいは吸水した素地の迅速焼成を行う場合には、十分に乾燥⁽³⁷⁾した試料を用意しなければならず、ゆっくり昇温する従来炉による焼成よりも水分管理に気を使う必要がある。あらかじめ乾燥器等で製品を乾燥できれば問題はないが、作業工程・時間や費用の点で生産の効率が悪くなり、マイクロ波炉でそのまま乾燥と焼結を続けておこなうことが望ましい。そこで、マイクロ波炉で生素地等を確実に焼成できるヒートカーブを検討した。

3-3-3-1 の試験でマイクロ波加熱により最も損傷を受けやすかった陶器白素地を、成形直後にマイクロ波加熱して異状の有無を調べた。様々なヒートカーブにおいて試験を繰り返し、生製品をマイクロ波で加熱をしても損傷しないヒートカーブを決定した。

また、得られたヒートカーブを基にメーカーサンプルの素焼を行い、異状なく焼成できることを確認した。

試験に用いた、サンプルの水分率を表 3-31 に示す。

表 3-31 成形体の水分量

	形状	水分率
伝統釉サンプル	湯呑（陶器白素地）	23.8%
メーカーサンプル	湯呑（磁器）	11.8%
	すり鉢（磁器）	18.8%

ヒートカーブの作成にあたり、以下の項目を検討した。

放射温度計で温度測定する際に、本焼成では炉内に設置したムライト板の温度を測定していたが、実際に吸水させたサンプルの温度を放射温度計にて測定し温度管理を行った。ムライト板と水とではマイクロ波の吸収率が大きく異なる。吸水したサンプルでは、水分が先に加熱され温度上昇するために、吸水させた試料とムライト板の温度には大きな差が生じるため、温度管理方法を変更した。なお、乾燥後はそのまま試料の温度を測定し温度管理を行った。

マイクロ波の出力が大きいと、吸水したサンプルの温度が急上昇し、温度制御ができなくなるので、マイクロ波出力を通常の 1/5 である 5kW に落として 1 個ずつ乾燥を行った。

乾燥する際の昇温速度はサンプルの温度 60℃までは 600℃/hr で急速に昇温させてもサンプルに異常が発生しなかった。一方、80℃まで連続して昇温させた場合には、100℃/hr でゆっくり昇温させても異常が発生したことから、サンプル温度が 60℃あたりから急速に水分が蒸気化し始める。そこで 60℃までを通常の焼成プログラムどおりの 600℃/hr で昇温させ、60℃で温度を保持し大部分の水分を乾燥する時間を設けた。（図 3-24）

60℃で温度を保持したサンプルの表面を観察すると、保持時間 15 分ほどで底面のハマの部分のみ乾燥し、30 分の保持ではほぼ全体が乾燥する。このとき素地に残った水分を測定すると約 4%であった。4%の水分量では素焼素地と同様に 600℃/hr で昇温すると強度が弱いので破損した。サンプル中に残っている水分が影響するため、昇温速度を落とし 150℃まで 200℃/hr で昇温して、完全に乾燥させるとサンプルに異状は発生せずそのまま素焼ができた。（図 3-25）

今回のヒートカーブの検討においては、多様な製品の乾燥に対応できるように、できるだけ厳しい条件で試験を行う必要があり、通常より水分量を多くし成形直後の含水量の大きな素地をそのままマイクロ波炉乾燥用のサンプルに用いた。したがって、成形後にしばらく放置した製品や、肉薄の製品については、発振器の台数や昇温速度と保持時間を参考にして乾燥時間を短くすることが可能である。実際に今回作成したヒートカーブでメーカーサンプルの湯呑とすり鉢を乾燥・素焼をしたところ損傷はなく、良好な製品が得られた。

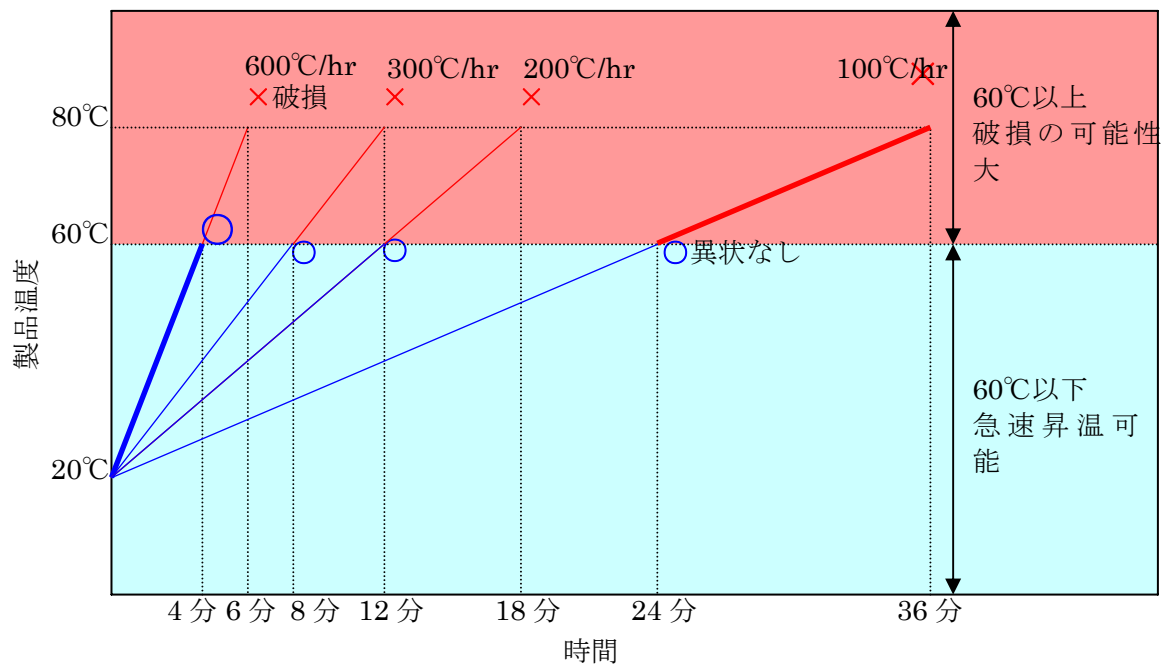


図 3-24 乾燥ヒートカーブの検討 (60°Cまで)

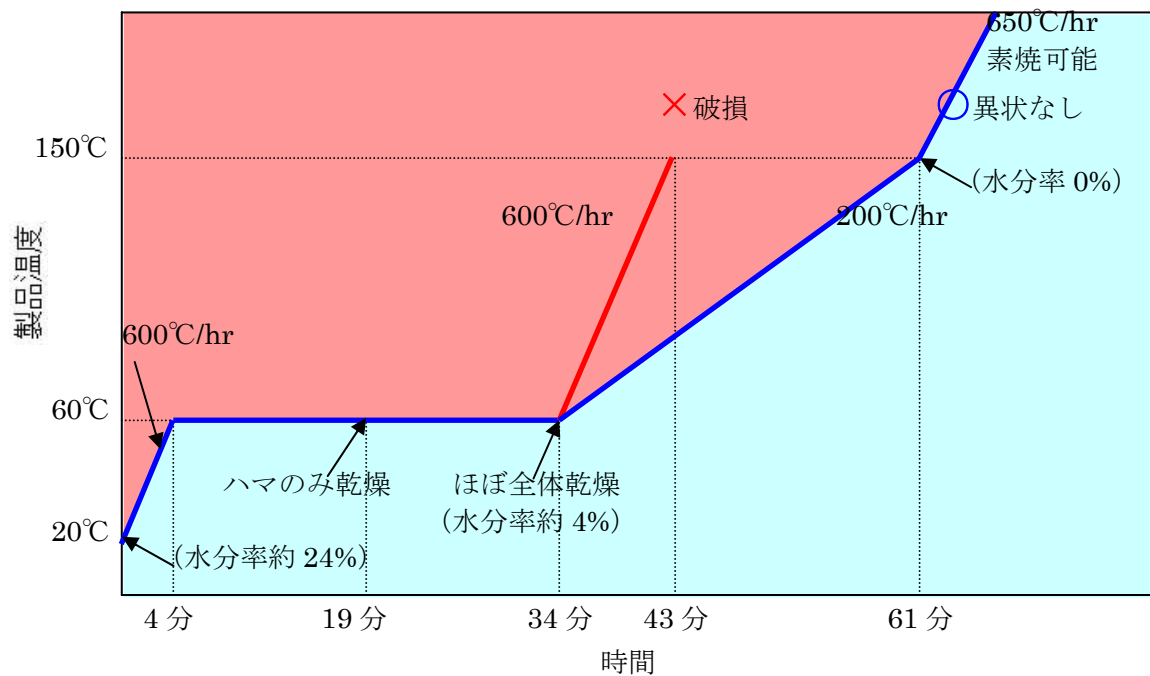


図 3-25 乾燥ヒートカーブの検討 (完全乾燥)

3-4 絵付製品の焼成

絵付焼成の上絵⁽³⁸⁾・下絵⁽³⁹⁾・イングレーズ⁽⁴⁰⁾について、マイクロ波炉と従来電気炉の焼成品の焼成品質を比較して評価した。加飾技法の分類について表3-32にまとめる。

表3-32 加飾技術の分類

技法	焼成温度	特 徴	絵付け技法
上絵	700～800℃	鮮やかな発色・金・プラチナ・和絵の具	転写・手描き
下絵	1250～1350℃	耐摩耗性	印刷・手描き
イングレーズ	1220～1250℃	耐摩耗性	転写・手描き

3-4-1 上絵付の焼成

上絵付について、マイクロ波焼成の評価を行った。磁器食器に上絵用転写紙⁽⁴¹⁾⁽⁴²⁾を貼り、マイクロ波炉焼成を行った。サンプルについて、電気炉焼成品と発色の比較と、転写紙等の燃え残りがいないかなどの外観性状⁽⁴³⁾⁽⁴⁴⁾検査を行った。また、焼成したサンプルは、食品衛生法⁽⁴⁵⁾の規格に準拠し簡便法（蒸発乾固省略簡易試験）にて鉛・カドミウムの溶出試験を行った。焼成条件は、マイクロ波炉は各温度とも1時間の昇温で焼成（保持時間—0分）し、電気炉では200℃/hrで昇温し最高温度にて10分間保持した。焼成温度と使用した素地・上絵用転写紙を表3-33・表3-34および表3-35に示す。金・プラチナ・和絵の具については、別途評価を行った。

表3-33 上絵焼成温度

設定温度		750℃	800℃	850℃	900℃	950℃	1000℃
昇温時間	マイクロ波炉	1時間					
	電気炉	3時間45分～5時間10分					

表3-34 絵付焼成試験に使用する食器サンプル

試験項目	サ ン プ ル
発色試験	磁器10インチ洋皿（山五陶業（株））
鉛・カドミウム溶出試験	磁器5.5インチフルーツ皿（山五陶業（株））
和絵具発色試験	磁器14cmフルーツ皿（（株）丸多製陶所）

表3-35 上絵付焼成試験に使用する洋絵具サンプル

シリーズ名	内 容	試験項目	焼成温度	色数
サンシャイン	有鉛・有カドミウム	鉛カドミウム溶出試験 発色試験	800℃	24
サンバ	無鉛・無カドミウム	発色試験	850℃	32
ファンタジー	無鉛・無カドミウム （メタリック）			18

上絵付用洋絵具は（株）フェロ・ジャパン製を使用した。

3-4-1-1 有鉛・有カドミウム絵具の試験

3-4-1-1-1 有鉛・有カドミウム絵具の発色試験

市販の上絵用転写紙サンシャインシリーズを、表3-33の条件で焼成しカラーチャートの発色・外観性状の評価を行った。また、サンシャインシリーズの転写紙によるカラーチャートの発色試験結果を図3-26に示し、表3-36にまとめる。電気炉での絵具メーカー推奨の焼成温度は800℃である。電気炉焼成の結果は、750℃で絵具が熔けきらず、900℃以上の高温になると変色する色数が増え焼成温度幅が狭かった。また、電気炉での迅速焼成（2時間）は900～920℃とメーカーは推奨しているが、マイクロ波炉では1時間の昇温でも800℃以上950℃まで絵具の熔けは良好となり、マロン色（含金）を除いて焼成温度幅が広く温度管理が容易になる。



図3-26 サンシャインシリーズのカラーチャート(上段がマイクロ波焼成、下段が電気炉焼成)

表3-36 上絵焼成カラーチャートの焼成試験結果

設定温度	外観性状		発色	
	マイクロ波炉	電気炉	マイクロ波炉	電気炉
750℃	×	×	1色変色	○
800℃	○	○	1色変色	○ ※
850℃	○	○	1色変色	1色変色
900℃	○	○	○	7色変色
950℃	○	○	○	7色変色
1000℃	○	○	3色変色	13色変色

×；溶けきらず

※；メーカー推奨焼成温度領域

3-4-1-1-2 焼成温度と鉛・カドミウムの溶出量の関係

有鉛・有カドミウムの上絵用転写紙について、鉛・カドミウムの溶出試験を行った。有鉛・有カドミウムの上絵用転写紙サンシャインシリーズから表3-37に示す10色を代表させ、1枚の磁器5.5インチフルーツ皿に転写紙を10色貼り（約1cm²/色）焼成し、溶出試験を行った。

各焼成温度における鉛・カドミウムの溶出試験結果を表3-38にまとめる。焼成温度の上昇にともない鉛・カドミウムの溶出量が減少した。750℃以上の焼成温度では食品衛生法に定める溶出量に問題はなかった。

表3-37 サンシャインシリーズにおける鉛（Pb）・カドミウム（Cd）含有の有無

色番	色	Pb	Cd	色番	色	Pb	Cd
111234	グリーン	有	有	171230	オレンジ	有	有
111235	グリーン	有	—	171231	ポピー	有	有
121232	アズアー	有	有	171232	カージナル	有	有
131230	マンダリン	有	有	721233	コバルト	有	有
141231	ブラック	有	—	771234	パープル	有	—

表3-38 上絵焼成温度と鉛・カドミウムの溶出試験結果

設定温度	鉛（Pb）・カドミウム（Cd）溶出値（mg/L）			
	マイクロ波炉		電気炉	
	Pb	Cd	Pb	Cd
750℃	1.2 ×	0.09 ×	0.4 ×	0.09 ×
800℃	0.5	0.06	0.3 ※	0.05 ※
850℃	0.3	0.03	未実施	未実施
900℃	ND	0.02	未実施	未実施
950℃	ND	ND	ND	ND
1000℃	ND	ND	ND	ND
規制値	5.0	0.50	5.0	0.50

×；溶けきらず ※；メーカー推奨焼成温度領域 ND；検出限界以下

3-4-1-1-3 鉛・カドミウムの単色絵具による溶出試験

有鉛・有カドミウムの上絵用転写紙について、鉛・カドミウムの精密な溶出試験を行った。磁器5.5インチフルーツ皿に表3-37に示す絵具の転写紙（5×5cm）を1色ずつ貼り、3-4-1-1-1の試験結果を基に焼成温度を決定し、鉛・カドミウムの精密な溶出試験を行った。

これまでの試験で800℃以上において絵具が溶融することが確認できたので、800℃で焼成し各色ごとの鉛・カドミウム溶出試験結果を表3-39にまとめる。各色とも溶出試験結果は規制値以下であった。

表3-39 サンシャインシリーズにおける鉛(Pb)・カドミウム(Cd)の溶出試験結果(mg/L)

色番	色	マイクロ波炉		電気炉	
		Pb溶出値	Cd溶出値	Pb溶出値	Cd溶出値
111234	グリーン	0.2	0.03	1.1	0.19
111235	グリーン	ND	ND	0.4	ND
121232	アズアー	1.8	0.04	0.5	0.04
131230	マンダリン	0.3	0.04	1.4	0.24
141231	ブラック	ND	ND	0.4	ND
171230	オレンジ	ND	0.02	0.5	0.10
171231	ポピー	0.5	0.13	1.1	0.30
171232	カージナル	0.2	0.05	0.5	0.14
721233	コバルト	1.2	0.02	ND	ND
771234	パープル	0.2	ND	0.3	ND
規制値		5.0	0.50	5.0	0.50

3-4-1-2 無鉛・無カドミウム絵具の発色試験

サンバ・ファンタジーシリーズの転写紙のカラーチャートの発色・外観性状の評価を行った。マイクロ波炉にてメーカー推奨の850℃・1hr・0minで焼成し、電気炉焼成品(850℃・4hr・0min)と比較した。

焼成結果を図3-27に示す。サンバシリーズでは3色(全32色)、メタリック調のファンタジーシリーズでは4色(全18色)の色が微妙に合わなかった。同系色の色数が多く、色調整も可能なのでマイクロ波焼成用の絵具として使用できる。色が合わなかった絵具については、使用している顔料鉱物とマイクロ波特性の関係を確認する必要がある。



図3-27-1 サンバのカラーチャート
(左が電気炉焼成、右がマイクロ波炉焼成)



図3-27-2 ファンタジーのカラーチャート
(左が電気炉焼成、右がマイクロ波炉焼成)

3-4-1-3 和絵具の発色試験

和絵具について、マイクロ波炉と従来電気炉焼成品を比較した。表3-40に示す和絵具⁽⁴⁾⁽⁶⁾を筆塗り後、マイクロ波炉で800℃・1hr・0minで焼成し、電気炉ではメーカー推奨の800℃・4hr・0minで焼成した。素地は石灰釉を施した14cmフルーツ皿を使用した。

表3-40 上絵付焼成試験に使用する和絵具サンプル

色 種				
黄	グリーン3	萌黄	ヒワ5	グリーン6
うぐいす	草青	晴青	赤茶	紺青
海碧	ピンク	水色	紫	ライラック
呉須	茶	ヒワ26	金茶	

和絵具は（有）マルセ今井絵具製を使用した。

焼成結果を図3-28に示す。マイクロ波焼成において、黄色は絵具の外周に黒い縁取りができた。しかし、他の18色は電気炉焼成と同等に焼成でき、マイクロ波焼成でも使用できることが確認できた。



図3-28 和絵具サンプル（左が電気炉焼成、右がマイクロ波焼成）

3-4-1-4 金・プラチナの発色試験

金⁽⁴⁷⁾・プラチナのマイクロ波焼成を評価した。金・プラチナを加飾した食器製品を家庭用の電子レンジでできるように調整した金液・プラチナ液（浪速金液製）を、5.5インチフルーツ皿の口端に筆塗りしたサンプルと転写紙を貼ったサンプルを作成した。800℃-1hr-0minで焼成し、電気炉焼成品（800℃-4hr-0min）と比較した。さらに、焼成した転写サンプルに同じ金液・プラチナ液を塗布して光沢処理を施し750℃-1hr-0minで再焼成した。電子レンジでできるように調整した金液・プラチナ液は一般用と比べ金・プラチナの濃度を薄くした物である。また、マイクロ波焼成において、一般用の金液との比較も同条件で行った。比較のために、一般用の金液を同様にフルーツ皿の口端に筆塗りし、マイクロ波焼成を行い比較した。

家庭用の電子レンジでできるように調整された金液・プラチナ液および転写とその光沢処理品は、マイクロ波焼成ができ、電気炉焼成品と同等の発色・外観性状であった。（図3-29-1～4）しかし、一般用の金液はマイクロ波炉焼成すると、金が剥離した。

（図3-29-5）電子レンジでできるように調整した金液・プラチナ液は、25kWのマイクロ波でも焼成できることが確認できた。



図3-29-1 電子レンジ用の金



図3-29-2 電子レンジ用プラチナ

（左が電気炉焼成、右がマイクロ波焼成）



図3-29-3 転写(金・プラチナ)
(左が電気炉焼成、右がマイクロ波焼成)



図3-29-4 転写焼成後光沢処理
(左が電気炉焼成、右がマイクロ波焼成)



図3-29-5 一般用の金(左が電気炉焼成、右がマイクロ波焼成)

3-4-1-5 重ね焼き試験

上絵付けの重ね焼き試験を行った。表3-37に示す転写紙を10色貼った磁器5.5インチフルーツ皿を、5枚ずつ重ねて800℃-1hr-0minの条件ででマイクロ波炉にて焼成し、電気炉で焼成したサンプルと発色・外観性状を比較した。上絵付けの電気炉焼成では、高温の還元焰焼成をした製品を重ね焼きをする場合がある。窯の積載効率を上げながら釉面にキズを付けずに上絵付焼成をすることができるためである。

上絵付をした磁器皿を重ね焼きした結果を図3-30に示す。マイクロ波焼成では重ね焼きをするとサンプルの釉薬が熔融し皿同士が熔着したり、割れた皿もあった。また、絵具の色は1枚毎に焼成した場合に比べ退色した。電気炉焼成では異常は見られなかった。

マイクロ波炉焼成では、1枚で焼成する場合に比べ、重ねた皿の間に蓄熱し、温度上昇がより急激となりサンプルの温度が高温となるため、割れたり、釉薬が熔着したり、絵具の退色が起こる。また、透明釉のマイクロ波吸収特性の測定結果(3-5-3-1)より、透明釉は素地に比べ発熱しやすい結果が得られており、設定以上に温度上昇し熔着した。



図3-30 マイクロ波炉で重ね焼きした皿

3-4-2 イングレーズの焼成

イングレーズによる加飾について、マイクロ波焼成の評価を行った。磁器食器に転写紙を貼り、上絵付焼成と同様にマイクロ波炉と電気炉で焼成比較した。焼成条件は、マイクロ波炉は表3-41に示す温度で2時間の昇温（保持0分）で焼成し、電気炉焼成は200℃/hrで1150℃まで昇温し10分保持した。使用した素地を表3-34に、転写紙を表3-42に示す。

表3-41 イングレーズ焼成温度

設定温度	1150℃	1200℃	1220℃	1240℃	1260℃	1280℃	1300℃
昇温時間	2時間						

表3-42 イングレーズ焼成試験に使用する絵具サンプル

シリーズ名	内 容	試験項目	焼成温度	色数
インプレッション	有鉛・有カドミウム	鉛カドミウム溶出試験 発色試験	1150℃	27

※ 絵具は（株）フェロ・ジャパン製を使用した。

3-4-2-1 焼成温度と外観性状および鉛・カドミウムの溶出量の関係

イングレーズの絵の具について、各温度における発色の比較と外観性状検査および鉛・カドミウムの溶出試験を従来電気炉焼成と比較して行った。表3-42に示すインプレッションシリーズから10色を代表（表3-43）させ、1枚の磁器5.5インチフルーツ皿に転写紙を10色貼り（約1cm²/色）焼成した。

1150～1300℃でのマイクロ波焼成における外観性状と発色および鉛・カドミウムの溶出試験結果を表3-44と図3-31にまとめる。マイクロ波焼成では、焼成温度巾が広がった。マイクロ波炉ではメーカー推奨の1150℃および1200℃で、鉛・カドミウムの溶出量は測定限界値以下で問題はなかったため、1220℃以上での鉛・カドミウム溶出試験は省略した。

表3-43 インプレッションシリーズにおける鉛（Pb）・カドミウム（Cd）含有の有無

色番	色	Pb	Cd	色番	色	Pb	Cd
111454	ライトグリーン	有	—	141450	ブラック	有	—
111457	ブルーグリーン	有	—	171452	ピンク	有	—
121454	コバルトロイヤル	有	—	171455	ライトレッド	有	有
131452	レモンイエロー	有	—	171456	コーラル	有	有
131454	マンダリン	有	有	181450	レッドバイオレット	有	—

表3-44 イングレーズの焼成試験結果

設定温度	外観性状		発 色		鉛 (Pb)・カドミウム (Cd) 溶出値 (mg/l)			
	マイクロ波炉	電気炉	マイクロ波炉	電気炉	マイクロ波炉		電気炉	
					Pb	Cd	Pb	Cd
1150℃	○	○ ※	○	○ ※	ND	ND	ND	ND
1200℃	○	—	○	—	ND	ND	—	—
1220℃	○	—	○	—	—	—	—	—
1240℃	○	○	2色変色	5色変色	—	—	—	—
1260℃	○	—	2色変色	—	—	—	—	—
1280℃	○	—	2色変色	—	—	—	—	—
1300℃	○	—	4色変色	—	—	—	—	—
規制値	—		—		5.0	0.50	5.0	0.50

※；メーカー推奨焼成温度領域

ND；検出限界以下



図3-31 イングレーズの10色カラーチャート（上段がマイクロ波焼成、下段が電気炉焼成）

3-4-2-2 単色絵具による鉛・カドミウムの溶出試験

イングレーズの絵の具について、鉛・カドミウムの精密な溶出試験を行った。磁器5.5インチフルーツ皿に表3-43に示す絵具の転写紙（5×5cm）を1色ずつ貼り、3-4-2-1の試験結果を基に絵具メーカー推奨の焼成温度1150℃で焼成し、鉛・カドミウムの精密な溶出試験を行った。

1150℃焼成における色毎の鉛・カドミウム溶出試験結果を表2-45にまとめる。各色での精密な測定においても測定限界値以下で問題はなかった。

表3-45 インプレッションシリーズの鉛（Pb）・カドミウム（Cd）溶出試験結果（mg/L）

色番	色	マイクロ波炉焼成	
		Pb溶出値	Cd溶出値
111454	ライトグリーン	ND	ND
111457	ブルーグリーン	ND	ND
121454	コバルトロイヤル	ND	ND
131452	レモンイエロー	ND	ND
131454	マンダリン	ND	ND
141450	ブラック	ND	ND
171452	ピンク	ND	ND
171455	ライトレッド	ND	ND
171456	コーラル	ND	ND
181450	レッドバイオレッド	ND	ND
規制値		5.0	0.50

ND;検出限界以下

3-4-2-3 カラーチャートの発色試験

イングレース絵の具について、カラーチャートの発色試験を行った。磁器10インチ洋皿を用い、絵具メーカーの推奨焼成温度1150℃と高めの設定の1240℃にて焼成した。

イングレースによるカラーチャートの発色試験結果を図3-32と表3-46にまとめる。マイクロ波炉と電気炉焼成では、1150℃で発色も熔け具合も同様であったが、1240℃では電気炉に比べマイクロ波炉では変色が少なかった。マイクロ波焼成では3-4-2-1の試験結果においても1280℃までは変色が少なく、焼成温度幅が広がった。透明釉はマイクロ波吸収特性が良く、短時間で焼成できることに加え透明釉の溶けも良くなるので、顔料が釉中に沈みこむために、顔料の蒸発・変色が少なくなった。



図3-32 イングレースの27色カラーチャート（左が電気炉焼成、右がマイクロ波炉焼成）

表3-46 イングレース焼成試験結果

設定温度	外観性状		発色	
	マイクロ波炉	電気炉	マイクロ波炉	電気炉
1150℃	○	○	○	○
1240℃	○	○	2色変色	12色変色

3-4-3 下絵付の焼成

下絵付け加飾について、マイクロ波焼成を評価した。マイクロ波炉で焼成したサンプルと、従来ガス炉焼成品と発色の比較および外観性状検査を行った。磁器製湯呑の素焼素地に表3-47に示す絵具を使用し、筆書きにより下絵加飾を行い施釉し、マイクロ波炉で1320℃-2hr-0minにて還元焰焼成を行った。

比較サンプルはメーカーの従来ガストンネル炉で、1320℃（22時間）で焼成した。

表3-47 下絵付焼成試験に使用する絵具サンプル

色 種			
黄	オレンジ	赤	水色
茶	グレー	グリーン	ブルー
古代	ヒワ	ピンク	

絵具は山さ水野商店（株）製を使用した。

マイクロ波炉と従来ガス炉で焼成した下絵付サンプルを図3-33に示す。両者に発色と外観性状の差異はなく、マイクロ波炉でも下絵付焼成ができることが確認できた。



図3-33 下絵のカラーチャート（左がガス炉焼成、右がマイクロ波炉焼成）

3-5 マイクロ波焼成の評価

3-5-1 還元焰焼成の検討

マイクロ波炉の還元焰焼成におけるCO濃度の分布把握を行った。また、マイクロ波焼成の還元濃度管理が容易なCO混合ガスによる還元雰囲気調整について評価を行った。LPG燃烧による還元焰焼成に必要なLPG流量を測定することにより、打ち込むCO混合ガス量を想定し、CO混合ガスによる還元雰囲気調整についての評価をした。LPG燃烧のCOガスによる還元濃度は2～3%で調整した。

3-5-1-1 還元焰焼成におけるCOガス濃度測定と分布の把握

マイクロ波炉における還元焰焼成のCOガス濃度の分布を評価した。還元焰焼成の場合、COガスが適正な濃度でしかも均一に分布していないと焼成品の色調に大きく影響する。ガス炉では燃烧ガスの対流でCOガスが移動しやすいのに対して、マイクロ波炉は焼成室がほぼ密閉であり、ガスの流れが掴みにくいためCOガス濃度および分布を把握しておく必要がある。

マイクロ波炉でのCOガスの供給は、プロパンガスをベンチレーバーナーにより燃烧させ、燃烧ガスを炉の底部より焼成室へ送り込む方法により行った。

COガス濃度測定は、理研計器（株）社製可搬型赤外線ガスモニターRI-555により測定した。低温用放射温度計の覗き穴を使用し、アルミナパイプ（外径φ10-内径φ6-長さ500mm）により炉内の雰囲気を吸引し測定した。還元焰焼成の方法と還元濃度測定の方法を

図 3-34 に示す。

CO ガス濃度は、CO ガス濃度測定器により測定しながら、プロパンガス圧と排気バルブの調整により可能で、従来のガス炉と同様に 1～5% でコントロールができた。CO ガス供給は 3 本のガスバーナーのうち、炉の両端 2 本を使用するとコントロールが容易であった。炉内に流入する CO ガスが分散しやすいように、流入口に邪魔板を設置すると炉内全体に均一にガスが対流した。

ガス圧 0.01～0.05Mpa の圧力で、950℃より還元を開始した。2 時間焼成のうち還元に要する時間は、約 35 分である。また、通常のガス炉における還元焰焼成の CO ガス濃度は 1.5～3% 程度であるが、マイクロ波炉においては CO ガス濃度を 2～3% で管理し、焼成終了時に還元ガスを止めた。

今回製作されたマイクロ波炉は、炉内の CO ガス濃度分布を把握するために直接炉内の雰囲気を吸引できる場所が一カ所しかないため、CO ガス濃度の分布を測定することは不可能である。そこで、還元ガスにより白く発色する磁器（白磁）を炉内全体に配置して焼成を行い、焼成品の”白さ”の違いを目視判定で、CO ガスの分布を測定した。

炉内全体に配置した磁器の”白さ”の違いを目視判定した結果、白さに違いが見られなかったことより、磁器焼成において CO ガス濃度の分布は均一であると判断した。

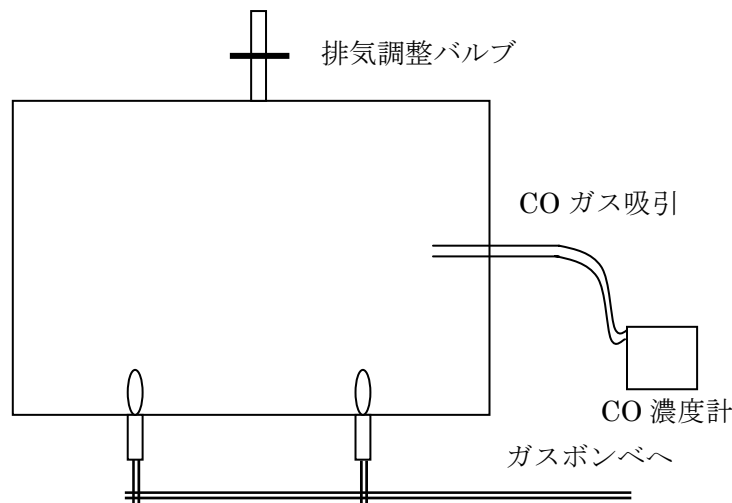


図 3-34 還元焰焼成の方法と濃度測定

3-5-1-2 還元焰焼成の検討

3-5-1-2-1 LPG 燃焼による還元方法における打ち込みガス量の測定

還元焰焼成をするために必要な CO ガス量を求めた。マイクロ波焼成による還元焰焼成（2hr 焼成－保持 0min）時に、還元焰を発生させるに必要な LPG の流量の測定結果と、その LPG を燃焼させた時の燃焼ガス流量を計算して表 3-48 に示す。LPG を燃焼させたときの CO・CO₂ および H₂O の発生ガス量は、次式により焼成ガス量の 7 倍となる。

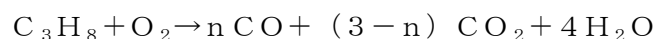


表 3-48 LPG の流量測定結果と燃焼ガス量

	LPG 打ち込み量 NL/min	発生ガス量 NL/min
還元かけ始め（ガス圧 0.05Mpa）	30.3	212.2
還元終了直前（ガス圧 0.01Mpa）	12.9	90.3

3-5-1-2-2 CO混合ガスによる還元方法の検討

1) 打ち込みガス量の検討

打ち込みガス量は燃焼したLPGと同体積のCO混合ガスを流す必要がある。約200NL/minのCO混合ガスを高温の焼成炉（容積0.15m³）に流すと炉内温度が設定通りに上がらないことが予測される。（LPG装入用の穴をふさがないだけで、炉内温度分布が40℃温度が下がる）そのため、打ち込みCO混合ガスをあらかじめ加熱してマイクロ波焼成炉に打ち込む必要がある。

2) 打ち込みガス加熱装置の検討

CO混合ガスを加熱して打ち込む市販ヒーターの能力を検討すると、熱風発生用ヒーターの使用最高温度は800℃までである。950℃～1350℃の範囲で還元焰を必要とする焼成では、温度差100℃以上のガスを打ち込んで炉内設定温度を維持する事は困難である。

3) 安全性についての検討

通常のコス炉による還元焰焼成では、炉から漏れたCOガスは炉壁が高温のため空気中の酸素と反応してCO₂となり、人体には無害となる。ところが、マイクロ波炉では、等温断熱壁から漏れ出たCOは急激に冷やされ、そのまま空気中に散乱する。さらに、CO混合ガスを打ち込む場合には、CO混合ガスボンベから炉までの配管・ガス加熱装置・炉からの漏れ・排気等について、LPGを燃焼させる場合に比べ、COガスが無色・無臭なため、一層の注意が必要となる。COガスは、血液中のヘモグロビンとの結合力が強く、少量を呼吸しても血液の酸素運搬能力が著しく損なわれ、酸素欠乏症を起こすことがわかっている。COガスの人体への影響を表3-49に示す。還元焰焼成を行う際には、3%前後のCOガス濃度が必要となり濃度の高いガスを取り扱うには危険が伴う。

表 3-49 COガスの人体への影響

COガス濃度	人体の反応
低濃度	頭痛・吐き気・耳鳴り
0.06～0.1%	1～1.5時間後に意識を失う
0.4%以上	生命に危険

3-5-1-3 CO混合ガスによる還元焰焼成に対する結論

COガス供給技術・安全性の両面を考慮して、マイクロ波還元焰焼成における還元雰囲気はLPG燃焼方式がのぞましい。また、陶磁器産業への普及を考えた場合も、安全性の面から、LPG燃焼方式で設計すべきである。

3-5-2 マイクロ波吸収特性の評価

3-5-2-1 陶磁器素地のマイクロ波吸収特性の評価

磁器素地・陶器赤素地・陶器白素地および透明釉のマイクロ波吸収を測定し、マイクロ波炉において効率よく良好な焼成品が得られる条件を検討した。測定はJFCCに依頼し、6.9GHzにて素地については室温・250℃・500℃・750℃・1000℃における比誘電率 ϵ' と誘電正接 $\tan \delta$ を測定した。また、透明釉は室温（RT）・250・500・750℃にて測定した。試料は、あらかじめ1250℃で焼成して測定に用いた。

マイクロ波吸収特性を測定した結果を表3-50に示し、比誘電率と誘電正接の積である誘電損失を求め図3-35に示した。素地間では誘電率および誘電正接の差は小さいが、透明釉は値が大きく発熱が大きくなった。素地の種類によらずマイクロ波焼成では、同じ条件で焼成できることが確認できた。また、素地は750℃以上で、透明釉では500℃以上で、発熱特性が増加することが確認できた。

表3-50 素地と釉の比誘電率と誘電正接

試料	温 度									
	R T		250℃		500℃		750℃		1000℃	
	ϵ'	$\tan \delta$	ϵ'	$\tan \delta$	ϵ'	$\tan \delta$	ϵ'	$\tan \delta$	ϵ'	$\tan \delta$
磁器	3.5	0.018	3.45	0.007	3.5	0.012	3.55	0.019	3.92	0.068
陶器白	3.35	0.021	3.31	0.012	3.37	0.017	3.43	0.024	3.76	0.050
陶器赤	3.53	0.019	3.5	0.009	3.58	0.019	3.65	0.034	4.05	0.076
透明釉	5.48	0.008	5.86	0.024	5.79	0.019	7.17	0.121	—	—

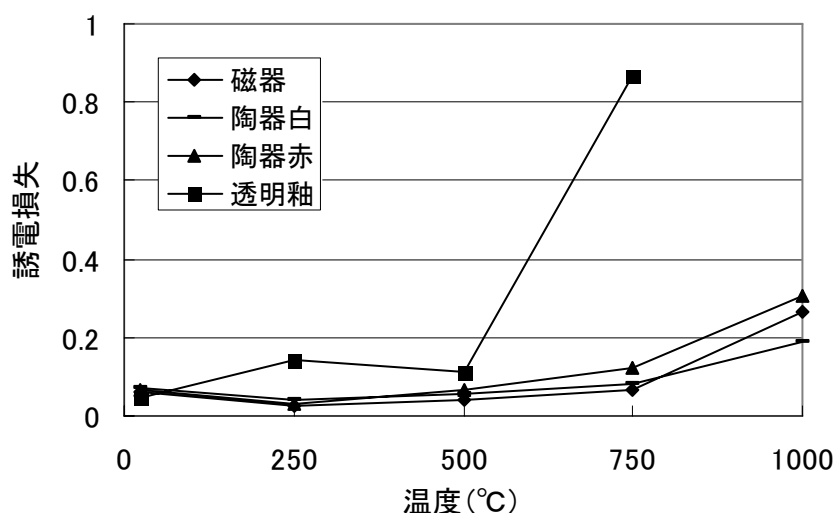


図 3-35 素地と釉の誘電損失

3-5-2-2 棚板のマイクロ波吸収特性の評価

マイクロ波焼成に使用される棚板について、マイクロ波吸収特性を測定し、マイクロ波炉において効率よく良好な焼成品が得られる条件を評価した。サンプルは 2-2-2-3 棚板の選定で評価を行った棚板からアルミナ量に着目して B・C・D を選定した。測定は JFCC に依頼し、6.9GHz にて室温 (RT)・350℃・700℃における比誘電率 ϵ' と誘電正接 $\tan \delta$ を測定した。

棚板のマイクロ波吸収を測定した結果を表 3-51 に、比誘電率と誘電正接の積である誘電損失を求め図 3-36 にまとめた。

誘電損失が大きいほど発熱が大きくなる。棚板の選定で行った評価 (3-2-2-3) でも 700℃で誘電正接 $\tan \delta$ の大きい棚板 B での発熱が最も大きく同じ傾向を示した。

表 3-51 6.9GHz における比誘電率 ϵ' 及び誘電正接 $\tan \delta$ の測定結果

試料	厚み(mm)	温度					
		RT		350℃		700℃	
		ϵ'	$\tan \delta$	ϵ'	$\tan \delta$	ϵ'	$\tan \delta$
棚板B	9.348	4.22	-0.002	4.41	-0.00002	4.82	0.023
棚板C	9.945	4.88	-0.016	5.07	-0.007	5.46	0.006
棚板D	9.961	4.83	-0.006	5.05	-0.003	5.48	0.007

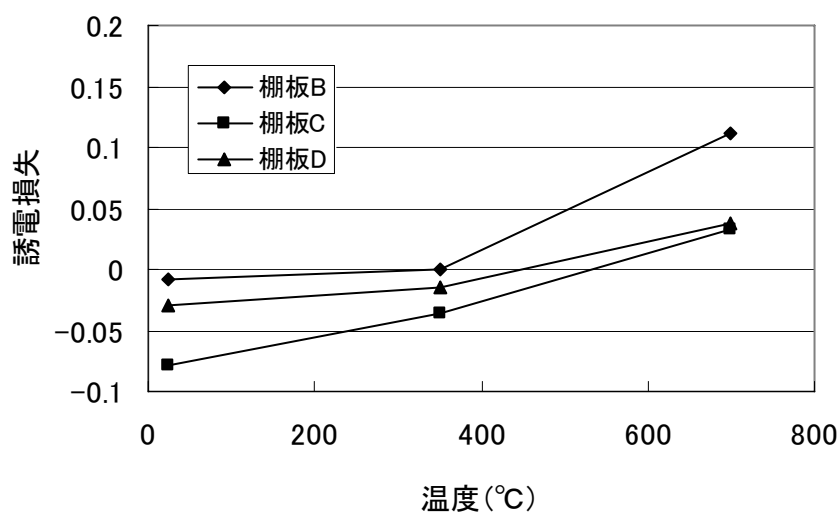


図 3-36 比誘電率と温度との関係

3-6 総括

マイクロ波による陶磁器焼成技術開発の基礎研究として、6 種類（磁器・陶器・耐熱・高強度・半磁器・朱泥）の素地と伝統釉薬から量産用陶磁器釉薬まで 30 種類の釉薬について種々の条件でマイクロ波焼成し、従来ガス炉による焼成品と比較した。マイクロ波焼成に適するヒートカーブ、棚板等を選定した。さらに従来ガス炉に対するマイクロ波炉の利点の実証試験も行った。本章の試験で得られた知見を以下にまとめる。

陶磁器製飲食器の焼成（素地・釉薬・加飾）は、従来ガス炉・電気炉と同様に可能である。結果は、以下のとおりである。

陶磁器の焼成

- ・ ヒートカーブの設定
マイクロ波焼成により 2 時間で 1320°C までの昇温を達成し、陶磁器を焼成することができた。
- ・ 温度分布
マイクロ波炉焼成室内の温度の分布は、従来ガス炉の約 38°C に比べ、約 6°C と小さかった。
- ・ 棚板の検討
棚板はアルミナの含有量が少ない棚板ほど温度が上がり、多いほど耐久性が向上した。マイクロ波焼成において、耐久性を有する棚板を選定した。
- ・ 外観性状
酸化還元陶磁器・伝統的陶磁器・メーカーサンプル等の陶磁器について、マイクロ波炉により従来ガス炉と同等に焼成できることが確認できた。
- ・ 絵付け焼成
上絵付け・イングレーズ・下絵付け焼成が可能であり、鉛・カドミウムの溶出はなかった。
金・プラチナの焼成も可能であった。
- ・ 焼成品質（物性）
焼成歪みは、従来ガス炉焼成に比べ小さくなった。
吸水率は、磁器は同等であったが、鉄分を含む陶器素地ではマイクロ波焼成では小さ

くなり良く焼き締まった。

耐熱素地の熱膨張および高強度磁器の曲げ強度は、従来ガス炉の焼成品と同等の値を示した。

- ・ 素地の乾燥ヒートカーブ
生素地および施釉直後の吸水した製品の乾燥・焼成ヒートカーブを設定した。
- ・ CO ガス濃度の分布
還元焰焼成時の CO ガス濃度の分布は均一であった。
- ・ 還元焼成雰囲気のコントロール
CO 混合ガス方式より、LPG 燃焼ガス方式がよい。

本章の研究は、H13～14 年度地域新生コンソーシアム研究開発事業「環境負荷低減型短時間・均質加熱焼成プロセスの開発」⁽⁴⁸⁾⁽⁴⁹⁾ にて行われた成果である。

参考文献

- (1) 功刀雅長, 加藤悦郎, 長坂克巳: 無機材料, 共立出版社, p110-115 (1980)
- (2) 高嶋廣夫: 実践陶磁器の科学, 内田老鶴圃, p206-216(1996)
- (3) 小林雄一, 大平修, 大橋康男, 加藤悦郎: アルミナ強化磁器素地の強度とワイブル分布, 窯業協会誌, Vol.95, p887-892 (1987)
- (4) 素木洋一: 図解工芸用陶磁器, 技報堂出版, p78(1970)
- (5) 黒田永二: 焼物の謎に迫る, 裳華房, p82 (1995)
- (6) 素木洋一: セラミック製造プロセスⅡ, 技報堂出版, p72-81 (1978)
- (7) 日本セラミックス協会編集委員会基礎工学講座小委員会: セラミックスの製造プロセス, 技報堂出版, p144-145 (1988)
- (8) 素木洋一: 図解工芸用陶磁器, 技報堂出版, p299-306 (1970)
- (9) 素木洋一: セラミックスの実際知識, 東洋経済新報社, p78 (1975)
- (10) 素木洋一: 図解工芸用陶磁器, 技報堂出版, p71 (1970)
- (11) 素木洋一: 工業用陶磁器, 技報堂出版, p203-215(1978)
- (12) 高嶋廣夫: 実磁器釉の科学, 内田老鶴圃, p206-216 (1994)
- (13) 日本セラミックス協会: セラミック工学ハンドブック, 技報堂出版, p569 (1989)
- (14) 日本セラミックス協会教育委員会: 窯業計測, 技報堂出版, p97 (1989)
- (15) 松下福三, 尾崎健一, 生浦京子: 中火度透光性素地の開発、愛知県産業技術研究報告, 3, p56 (2004)
- (16) 日本セラミックス協会: セラミック工学ハンドブック, 技報堂出版, p570 (1989)
- (17) 素木洋一: セラミック製造プロセスⅢ、技報堂出版, p164-167(1979)
- (18) M.Sato, T.Mutou et al., "Insulation Blankets for Microwave Sintering of Traditional Ceramics", Ceramic Transaction, 111, 277-285(2001)
- (19) (財)日本陶磁器検査協会: 陶磁器における欠点の発生原因とその対策, 陶磁器欠点防止技術, 総合通信社, p80-94 (1976)
- (20) (社) 日本セラミックス協会: セラミックス辞典, 丸善, p135 (1997)
- (21) 日本セラミックス協会: セラミック工学ハンドブック, 技報堂出版, p176-180 (1989)
- (22) (社) 日本セラミックス協会: セラミックス辞典, 丸善, p274 (1997)
- (23) 渡辺一行: 九州地区陶磁器業界における欠点防止について, 陶磁器欠点防止技術, 総合通信社, p52 (1976)
- (24) 小山富士夫, 荒川豊藏: 日本のやきもの 美濃, 淡交社, p141-150 (1963)
- (25) 梶野五郎: 陶磁器欠点防止技術, 総合通信社, p89 (1976)
- (26) M.Sato, T.Mutou et al., "Insulation Blankets for Microwave Sintering of Traditional Ceramics", Ceramic Transaction, 111, 277-285(2001)
- (27) セラミックス編集委員会講座小委員会: セラミックスのキャラクターゼーション, 日本セラミックス協会, 技報堂出版, p2-3 (1987)
- (28) 佐藤元泰 et al: H14 年度地域新生コンソーシアム研究開発事業報告書「環境負荷低減型短時間・均質加熱焼成プロセスの開発」, p24 (2002)
- (29) 福島英沖: 豊田中央研究所 実験データ
- (30) 黒田永二: 焼物の謎に迫る, 裳華房, p111 (1995)
- (31) 素木洋一: 工業用陶磁器, 技報堂出版, p194 (1993)
- (32) 日本規格協会: JIS-S2400 陶磁器製耐熱食器の熱衝撃試験法 (1991)
- (33) 窯業読本編集委員会: 窯業計測, 日本セラミックス協会, p204-207 (1974)
- (34) 日本セラミックス協会: JCRS203-1996 給食用磁器食器の曲げ強さ試験方法 (1996)
- (35) マイクロ波応用技術研究会: マイクロ波応用技術、工業調査会, p146 (2004)
- (36) 平, 斉藤, 内ノ倉, 澤野, 笠原, 天野, 祐成, 片岡: 新日鐵における窯炉のマイクロ波乾燥, 耐火物, 第 55 巻 [1], p19-20 (2003)
- (37) 素木洋一: セラミック製造プロセスⅢ、技報堂出版, p1-71 (1979)
- (38) 日本セラミックス協会: セラミック工学ハンドブック, 技報堂出版, p1520 (1989)
- (39) 大西政太朗: 陶芸の伝統技法, 理工学社, p4=37-41 (1978)

- (40) 大西政太郎：陶芸の伝統技法，理工学社，p4=42 (1978)
- (41) 日本セラミックス協会：セラミック工学ハンドブック，技報堂出版，p1528 (1989)
- (42) 日本セラミックマシナリー協会：セラミックマシナリーハンドブック，日刊工業新聞，p 178(2006)
- (43) (財)日本陶磁器検査協会：陶磁器における欠点の発生原因とその対策，陶磁器欠点防止技術，総合通信社，p92 (1976)
- (44) 日本セラミックマシナリー協会：セラミックマシナリーハンドブック，日刊工業新聞，p 180(2006)
- (45) 厚生労働省：食品衛生法 (1986)
- (46) 素木洋一：図解工芸用陶磁器，技報堂出版，p212(1970)
- (47) 日本セラミックマシナリー協会：セラミックマシナリーハンドブック，日刊工業新聞，p 179(2006)
- (48) 佐藤元泰，渡辺隆，土本光正，長島崇 et al：H13 年度地域新生コンソーシアム研究開発事業報告書「環境負荷低減型短時間・均質加熱焼成プロセスの開発」，NEDO (2001)
- (49) 佐藤元泰，渡辺隆，土本光正，長島崇 et al：H14 年度地域新生コンソーシアム研究開発事業報告書「環境負荷低減型短時間・均質加熱焼成プロセスの開発」，経済産業省(2002)

第4章 陶磁器焼成用マイクロ波生産炉の開発

陶磁器のマイクロ波焼成の基礎研究を基に、マイクロ波焼成炉の工業用生産炉として0.5m³の普及価格帯のマイクロ波ーガス複合炉を開発した。マイクロ波ーガス複合炉は、マイクロ波により焼成体を加熱し、ガス燃焼により雰囲気温度を焼成体温度に合わせて均熱をはかる構造とした。陶磁器製飲食器の焼成試験結果から「短時間・省エネルギー・低燃費・均熱・均質」の焼成炉としての実証ができた。

マイクロ波ーガス複合炉では、酸化焰焼成も還元焰焼成も陶磁器を4時間で焼成できた。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に比べ、短時間焼成が可能であった。また、炉内温度分布は実用範囲内の40℃にたいし、還元焰4時間焼成で36℃となり、雰囲気のムラも見られなかった。従来ガス炉の50℃に比べ、均質な焼成が可能であった。

マイクロ波ーガス複合炉では、陶磁器製飲食器の外観性状・物性とも従来のガス炉と同等な焼成ができた。

大量連続生産用の工業炉としてのマイクロ波連続炉での陶磁器製飲食器の焼成試験では、2時間焼成・2時間冷却が可能である。鉄系顔料を含むナマコ釉・朱泥は冷却速度の影響を受け、冷却過程の調整が必要であり、また、焼成温度によっては連続炉の進行方向に平行に歪みが発生する場合があった。

4-1 緒言

陶磁器製飲食器のマイクロ波焼成について、6種類（磁器・陶器⁽¹⁾・耐熱⁽²⁾・高強度⁽³⁾・半磁器⁽⁴⁾・朱泥⁽⁵⁾）の素地と伝統的釉薬から量産用陶磁器釉薬まで30種類の釉薬について、従来ガス炉焼成品と焼成比較を行い、同等の焼成結果が得られることを確認した。形状も小物の小皿から大物のすり鉢・土鍋まで問題なく焼成できた。従来ガス炉焼成の8時間に対しマイクロ波焼成では2時間で焼成でき、消費エネルギーは1/5・焼成コストは1/2となった。また、上絵付け・イングレイズ・下絵付け等の絵付け製品の焼成試験、生製品・半製品の乾燥試験、物性面においても良好な結果を得る事ができた。

しかし、陶磁器製飲食器の焼成にマイクロ波炉を用いることは、焼成コストが安価になっても、設備コスト面で従来ガス炉の10倍以上高くなり工業的に普及させる設備としては価格が障害となってしまう。

そこで、本章ではマイクロ波焼成の「短時間・省エネルギー・低燃費・均熱・均質」の効果を活かした陶磁器の工業用生産炉と、マイクロ波焼成炉の普及価格版としてマイクロ波ーガス複合炉の開発・評価を行った。第3章のマイクロ波炉では、サセプター（等温熱障壁）により炉内の均熱化を図った。マイクロ波ーガス複合炉では、焼成体はマイクロ波で加熱し、雰囲気温度はガス燃焼の熱で加熱し、焼成体温度と雰囲気温度の制御により均熱をはかる構造とした。陶磁器の焼成・絵付け焼成・物性面・焼成エネルギー・焼成コスト・温度分布・炉内雰囲気そしてマイクロ波の効果において、その有効性を評価した。温度分布は、実生産炉の実績に合わせ40℃以内を目標とした。また、大量生産用炉としてマイクロ波連続炉⁽⁶⁾⁽⁷⁾での焼成試験を行った。

本章では、加熱エネルギーとしてマイクロ波のみを用いた焼成をマイクロ波焼成、また、その焼成炉をマイクロ波炉とし、マイクロ波と同時にガス焼成エネルギーを用いた焼成炉をマイクロ波ーガス複合炉またはハイブリッド炉（HB 炉）とし、その炉による焼成をマイクロ波ーガス複合炉焼成またはガス複合炉焼成と表現する。

4-2 マイクロ波ーガス複合炉の開発

4-2-1 マイクロ波ーガス複合炉のコンセプト

マイクロ波焼成炉の普及価格版であるマイクロ波ーガス複合炉を開発した。マイクロ波焼成の効果「短時間・省エネルギー・低燃費^(8~12)・均熱⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾・均質」を活かした生産炉として開発した。これまでのマイクロ波炉の研究成果をふまえ、表4-1に示すマイクロ波ーガス複合炉の特徴を活かしたコンセプトを実証するための試験を行った。

表4-1 マイクロ波ーガス複合炉の特徴と効果

	特 徴	効 果
経済性	低コスト（炉体価格） 低燃費（短時間・高効率） メンテナンス（容易・乾燥不要） コンパクト（工場スペースの有効利用・増設が容易）	短時間焼成 焼成コストの削減 省エネルギー CO ₂ 排出量が少ない 短納期対応 多品種生産 焼きにこだわった商品作り 労働環境の改善 作業環境向上 冷却コントロールが可能 2回／日の焼成サイクルが可能
環境性	環境負荷が小さい（CO ₂ 排出量） 短時間焼成（4時間） 短時間冷却（6時間）	
順応性	多品種対応ー温度・雰囲気コントロールが容易 ポータブル（移動が可能）	
信頼性	均熱 雰囲気安定 長寿命（ヒートショックに強いファイバー製） シンプル設計	

4-2-2 マイクロ波ーガス複合炉の仕様

マイクロ波ーガス複合炉の基本仕様を表4-2にまとめる。

本研究での仕様はリフターを使用したコンパクトで実用的な単窯方式⁽¹⁵⁾とした。炉材には断熱性能が高く熱衝撃に強いシリカアルミナ質ファイバーを使用し、短時間昇温と短時間冷却を可能とした。焼成サイクルの短縮のために、冷却速度をコントロールできる小型省エネ強制バーナーによる冷却エア送風システムも設置した。生産現場で使用比率の高い台車式炉を比較したが、マイクロ波漏洩防止のための技術開発と炉体コスト低減のためにリフター形式の炉とした。

表 4-2 マイクロ波ーガス複合炉の基本仕様

項 目	仕 様
基本構造	単窯（小型ファイバー炉）
熱源	マイクロ波発振機 10kW（2.45GHz、0.8kW×12台） 小型省エネ強制ガスバーナー 8基
炉壁最高温度	1350℃
炉サイズ	0.5m ³ （炉内有効寸法；0.7w×1.1d×0.7hm）
炉材	シリカ・アルミナファイバー
外装材質	SUS材
温度測定	熱電対

4-2-3 マイクロ波ーガス複合炉の設計

マイクロ波ーガス複合炉の基本構想は、マイクロ波炉でサセプター（等温熱障壁）により焼成物と炉内の均熱を作り出す構造⁽¹⁶⁾を基にした。サセプターをガス燃焼エネルギーに置き換えた。焼成物に対してはマイクロ波にて効率よく均熱昇温を行い、ガス燃焼エネルギーにより雰囲気温度の昇温を行う方式⁽⁸⁾により、短時間・省エネルギー焼成ができるようにするものである。コストの高いマイクロ波発振器を減らし、汎用性の高いガスバーナーと従来ガス炉の技術・材料を採用することにより、普及価格帯の炉を設計することができた。炉材・窯道具にはマイクロ波吸収率が低く発熱しにくいシリカ・アルミナ質のファイバーを採用し、マイクロ波が効率よく焼成サンプルに吸収されるよう材料を選択した。炉体の外壁と煙突はステンレス製とし、マイクロ波の漏洩を防止⁽¹⁷⁾できる設計とした。温度分布は、実生産炉の実績に合わせ 40℃以内を目標とした。

4-2-4 マイクロ波ーガス複合炉の熱計算

マイクロ波ーガス複合炉における発振機の実出力設計は、廃熱がないと仮定して以下の計算によった。

製品・窯道具昇温エネルギー

焼成体比熱 ; 0.2kcal/kgC

焼成温度 ; 最高温度 1300℃まで 3 時間昇温を仮定

$q \text{ (kW/kg)} = 0.2 \times 4.2 \times 1300 / (3600 \times 3) = 0.1 \text{ kW/kg}$

0.5m³の窯で 300kg の焼成を行うと

$300 \text{ kg} \times 0.1 \text{ kW/kg} = 30 \text{ kW}$

マイクロ波：ガスの配分 = 1 : 2 とすると、発振器出力は

$30 \text{ kW} / 3 = 10 \text{ kW}$

組上がったマイクロ波ーガス複合炉の写真を、同サイズの従来ガス炉と比較して示す。
(図4-1、図4-2)



図4-1 マイクロ波ーマイクロ波ガス複合炉



図4-2 従来ガス炉

4-2-5 発振器の検定

4-2-5-1 反射波

マイクロ波炉では、発振器と導波管・アプリケーションのセッティングに問題があると、発振器の管球を破損する恐れがある。そこで、パワーモニターを発振器と炉本体との間に設置し、炉本体側からの反射波（VSWR）を測定した。反射波測定は、発振器単独運転の場合と全 12 台運転の場合に分け行った。炉内には 65kg の焼成サンプルを入れてマイクロ波吸収率の低い室温にて評価した。ガス燃焼は行わなかった。

測定結果を表 4-3 に示す。反射係数 VSWR はメーカー規格値 4 にたいし、測定点ではいずれも規格範囲内であった。

表 4-3 発振機の反射係数（VSWR）の測定結果（規格；4 以下）

発振器 No.	単独	12 台	発振器 No.	単独	12 台
L1	2.0	2.7	R1	2.7	3.3
L2	測定不可		R2	測定不可	
L3	1.9	2.0	R3	測定不可	
L4	2.3	3.2	R4	2.4	3.5
L5	1.7	2.0	R5	2.2	2.6
L6	測定不可		R6	測定不可	

測定不可；炉の構造上パワーモニターの取り付けができない

4-2-5-2 発振器の発熱

発信機内に熱電対を設置し、焼成中の吸気・排気・陽極温度を測定し、発振器の発熱を確認した。

炉内に 65kg のサンプルを入れて焼成し、焼成開始から 90min 後（炉内温度 1100℃）の発振器の温度測定結果を表 4-4 に示す。全発振器（12 台）を稼働させた場合でも、陽極温度規格 180℃以下にたいし陽極温度は 111.4℃で異常発熱はみられなかった。ガス燃焼は行わなかった。

表 4-4 焼成中の発振器の温度測定結果（規格：陽極温度 180℃）

発振器 No.	吸気(℃)	排気(℃)	陽極(℃)
R4	18.2	46.3	111.4
発熱温度	0	+28	+92.2

（測定時の VSWR は、2.5）

4-2-6 マイクロ波－ガス複合炉の構造評価

4-2-6-1 マイクロ波漏洩

マイクロ波－ガス複合炉からのマイクロ波の漏れの有無を、炉体の開口部にあたる扉部・煙道部・バーナー部・発振器取付ボックスの冷却孔や溶接部において確認した。

マイクロ波の漏洩が懸念される扉相面では、 $0.1\sim 1\text{mW/cm}^2$ の漏れがあった。安全範囲内であり 10cm 離れると 0 レベルとなった。また、約 200℃まで温度上昇すると、漏れはなくなった。マイクロ波が焼成物に完全に吸収されるようになるためである。煙道部・バーナー部・発振器取付ボックス・溶接部では、マイクロ波の漏洩はなかった。

4-2-6-2 耐久性

炉体および発振器の耐久性を確認した。

表 4-5 に示す炉の耐久性評価を行った。142 回の焼成を行い、発振器をはじめ故障した箇所はなく、焼成に異常を来す現象はなかった。今後も、耐久試験を継続する予定である。改良箇所は、発振器取付ボックスの冷却孔から、還元 CO ガスが 20ppm 位の濃度で漏れる。また、ステンレス炉体の熱歪みがあるので減少させる工夫が必要である。

表4-5 マイクロ波－ガス複合炉の運転時間

運転回数	142 回
総運転時間	725.3 時間

4-2-7 棚板の選定

マイクロ波－ガス複合炉にて使用する棚板⁽¹⁸⁾について、炉内温度分布と消費エネルギーがより小さくなる棚板を選定した。発熱特性と耐久性を考慮してアルミナ、SiC、ムライト＋SiCの3種類を評価した。評価は、表4-6に示すように全段にアルミナあるいはSiCを用いた場合と、温度の低くなる炉床の1段目または2段目に発熱特性の高いSiC棚板を用いた場合と、ムライトにSiC4%混合した棚板を組み合わせて比較した。下段以外にはアルミナ棚板を設置して比較した。試験時の棚板組みを図4-3に示す。焼成は、表4-7に示す焼成重量にて1250℃－4hr－20minの条件で行った。

表4-6 棚板組み

No.	段組	棚板種類
1	全段	アルミナ
2	全段	SiC
3	上段 下1段	アルミナ SiC
4	上段 下2段	アルミナ SiC
5	上段 下1段	アルミナ ムライト＋SiC4%

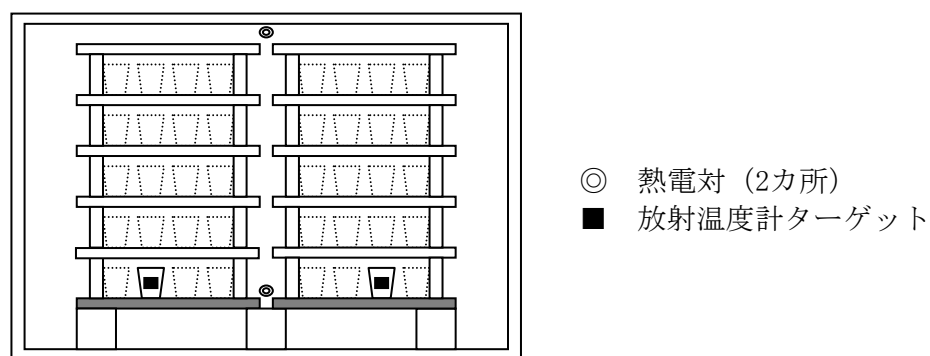


図4-3 棚板組みと温度測定位置

表4-7 焼成重量

品目	個数	重量
フリーカップ	360 個	81.0kg (225g／個)
棚板	36 枚	110.2kg (3060g／枚)
ツク（大）	120 個	26.6kg (222g／個)
合計	—	217.8kg

マイクロ波－ガス複合炉で焼成した結果を表 4-8 にまとめる。温度分布・最高温度・炉中心部温度とエネルギー効率に着目し、最適となる棚板を選定した。昇温過程の温度測定結果を図 4-4 に示す。棚板の種類によって、天井位置での温度差はなく、低温時には扉位置の温度が低い棚板があった。焼成による収縮が始まり色調・釉調に重要な影響をおよぼす 950℃以上の高温時にはその影響はみられなかった。最終的には棚板の種類によらず、炉内温度・消費エネルギーに違いは見られず、どの棚板を使用しても同様な結果となった。耐久性を考慮すると SiC またはアルミナ棚板の使用が適する。

表 4-8 棚板の種類の違いによる焼成試験結果

No.	棚板種類	温度 分布 ℃	最高 温度 ℃	炉中心 部温度 ℃	消費エネルギー		
					ガス m ³	マイクロ波 kWh	総エネルギー m ³
1	アルミナ全段	48	1276	1258	5.40	80.1	7.31
2	SiC 全段	50	1274	1253	5.32	81.3	7.25
3	アルミナ+SiC 下 1 段	48	1276	1258	5.39	80.9	7.32
4	アルミナ+SiC 下 2 段	49	1269	1251	5.47	80.1	7.37
5	アルミナ+SiC4% 下 1 段	48	1276	1258	5.41	82.0	7.36

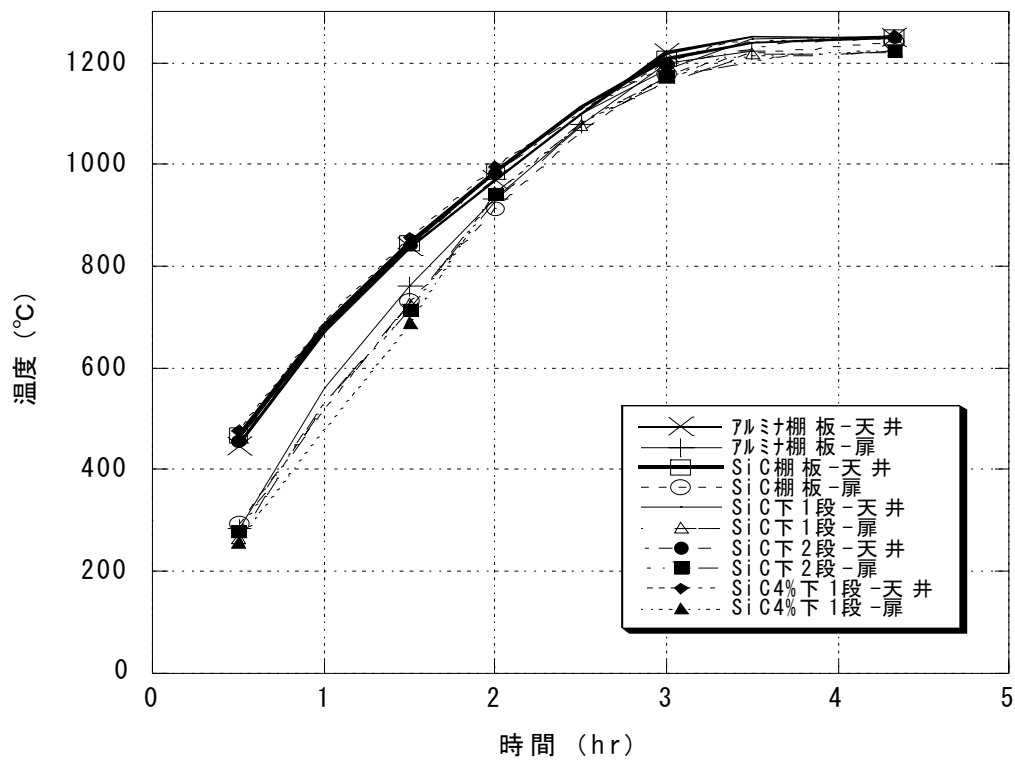


図 4-4 各種棚板を用いた時の焼成時間と温度

4-3 マイクロ波ーガス複合炉による陶磁器の焼成

4-3-1 陶磁器素地と釉薬の焼成

4-3-1-1 焼成サンプルの選定

マイクロ波ーガス複合炉の焼成品と従来ガス炉の焼成品を比較した。試験に用いた焼成サンプルは、表 4-9、表 4-10 に示す伝統釉サンプルおよびメーカーサンプルを使用した。外観性状⁽¹⁹⁾ について以下の項目について評価を行った。

- ・釉性状
- ・色調
- ・欠陥（切れ 貫入 変色 ピンホール その他）

また、製品の焼成比較のみならず、0.2m³ のメーカーの従来ガス炉との比較も行った。同じメーカーサンプルについて、表 4-11 の焼成条件で製品の評価（素地・下絵の発色）と温度分布を評価した。

表 4-9 釉薬の種類（伝統釉サンプル）

焼成雰囲気	種別	成分	名称
酸化焰焼成	基礎釉	石灰亜鉛釉系	透明釉 骨灰失透釉 マット釉
		灰釉系	長石釉 焼津灰失透釉 いらぼ釉
	色釉	鉄釉系	天目釉 飴釉 黄瀬戸釉 バリウムオリーブ釉
		銅釉系	織部釉 銅青磁釉 バリウム青緑釉
		クロム釉系	バリウムヒワ釉
		顔料系	黄釉 赤茶釉 トルコ青釉 黒釉
還元焰焼成	基礎釉	石灰タルク釉系	透明釉 骨灰失透釉 マット釉
	色釉	鉄釉系	天目釉 鉄朱斑釉 金結晶釉 青白磁釉
		銅釉系	均窯 銅赤釉
		顔料系	ローズピンク釉 黄釉 トルコ青釉

表 4-10 メーカーサンプル

焼成雰囲気	種別	品名
酸化焰焼成	ニューボーン	マグカップ
	朱泥	湯呑
	耐熱陶器	土鍋 水コンロ
	白雲陶器	小鉢 貯金箱
	半磁器	マグカップ ポット
	貫入磁器	マグカップ
還元焰焼成	磁器（白磁）	茶碗
	陶石立て磁器	湯呑
	高強度磁器	中鉢
	大物	すり鉢
	志野釉	湯呑（志野） 丸皿（志野） 角皿（赤素地） どんぶり（鼠志野） 灰皿（紅志野）
	ビードロ釉	小皿

表 4-11 メーカー炉との焼成比較試験

焼成炉	焼成時間	焼成条件	焼成雰囲気
マイクロ波ーガス複合炉	5hr	マイクロ波＋ガス	酸化
マイクロ波ーガス複合炉	11hr	ガスのみ	
メーカーガス炉(0.2m ²)	20.5hr	ガスのみ	

4-3-1-2 伝統釉サンプルの外観性状

マイクロ波ーガス複合炉 5 時間焼成と従来ガス炉での焼成品の外観性状の比較結果を表 4-12ー酸化焰焼成⁽²⁰⁾、表 4-13ー還元焰焼成⁽²⁰⁾にまとめ、写真を図 4-5 に示した。

酸化焰・還元焰焼成とも従来ガス炉と同等に焼成できた。マイクロ波炉で発生した透明釉のジワ・マット釉の粗面・織部釉のピンホールは見られず良好に焼成できた。イラボ釉は、マイクロ波炉焼成試験で改良した釉薬にて焼成できた。

4-3-1-3 メーカーサンプルの外観性状

マイクロ波ーガス複合炉の焼成サンプルとメーカーの従来ガス炉の焼成サンプルの比較を図 4-6 に示す。

朱泥、半磁器、ニューボーン、磁器、高強度磁器、大物すり鉢では、同等な外観性状が得られた。白雲陶器はマイクロ波炉と同様に黄色、紫色、青色とも発色が濃くなった。短時間焼成で、顔料の蒸発が抑えられたためである。従来ガス炉の焼成に比べ、顔料の添加量を減らすことと施釉を薄くすることによって、コストダウンを図ることができる。耐熱素地の土鍋のイラボ釉ではマイクロ波炉に比べ、従来ガス炉の焼成品に近くなった。しかし、選択したメーカーの志野釉では火色が従来ガス炉のように出なかった。志野釉は、マイクロ波炉と同様に短時間焼成では調整が必要な釉薬である。志野釉について、五斗蒔き土と市販の志野釉の組合せで 4 時間の還元焼成を行ったところ、火色⁽²¹⁾の発色が見られ志野釉も焼成できることが確認できた。(図 4-7)

表 4-12 伝統釉サンプルのマイクロ波－ガス複合炉焼成と従来炉焼成の外観性状の比較（酸化焰焼成）

マイクロ波－ガス複合炉焼成 / ガス炉焼										
分類	釉薬名（素地の種類）	釉性状	色調	欠 陥				備 考		
				切れ	貫入	変色	ピンホール	歪	HB波	ガス窯
石灰亜鉛釉系	透明釉（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
	骨灰失透釉（陶器赤）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	有 / 有	○ / ○	○ / ○	
	マット釉（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
灰釉系	長石釉（陶器白）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	有 / 有	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
	焼津灰失透釉（陶器赤）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	有 / 有	○ / ○	○ / ○	
	いらぼ釉（陶器赤）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
鉄釉系	天目釉（陶器白）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
	鉛釉（陶器白）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
	黄瀬戸釉（陶器白）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	有 / 有	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
	バリウムオリーブ釉（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
銅釉系	織部釉（陶器白）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
	銅青磁釉（陶器白）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	結晶
	バリウム青緑釉（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
クロム系	バリウムヒツ釉（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	ジワ	ジワ
顔料系	黄 P-40（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	ジワ	ジワ
	赤茶 M-13（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	ジワ	ジワ
	トルコ青 M-5000（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	ジワ	ジワ
	黒 M-700（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		結晶

表 4-13 伝統釉サンプルのマイクロ波－ガス複合炉焼成と従来炉焼成の外観性状の比較（還元焰焼成）

マイクロ波－ガス複合炉焼成 / ガス炉焼

分類	釉薬名(素地の種類)	釉性状	色調	欠陥				備考	
				切れ	貫入	変色	ピンホール	歪	ガス窯
基礎釉	石灰タルク釉系	透明釉(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
		骨灰失透釉(陶器赤)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
		マット釉(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
鉄釉系	鉄釉系	天目釉(陶器白)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
		鉄朱斑釉(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
		青白磁釉(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
		金結晶釉(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
		銅赤釉(陶器赤)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
銅釉系	銅釉系	銅赤釉(陶器白)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
		均窯(陶器赤)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
		均窯(陶器白)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
顔料系	顔料系	ローズピンク G-10(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
		黄 R-9(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	
		トルコ青 M-6000(磁器)	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	



透明釉



骨灰失透釉



マット釉



長石釉



焼津灰失透釉



いらぼ釉



天目釉



飴釉



黄瀬戸釉



バリウムオリーブ釉



織部釉



銅青磁釉



バリウムヒワ釉



黄釉



赤茶釉



トルコ青釉



黒釉

図 4-5-1 マイクロ波-ガス複合炉焼成品（左）と従来ガス炉焼成品（右）の比較（酸化焰焼成）



透明釉



骨灰失透釉



マット釉



天目釉



鉄朱斑釉



金結晶釉



青白磁釉



均窯



銅赤釉



ローズピンク釉



黄釉



トルコ青釉

図 4-5-2 マイクロ波炉焼成品（右）と従来炉焼成品（左）の比較（還元焰焼成）

《酸化焰焼成》



ニューボン



朱泥



耐熱素地



白雲陶器



半磁器マグカップ



半磁器ポット



貫入釉マグカップ

《還元焰焼成》



磁器（白磁）



陶石立て磁器



高強度磁器



大物（すり鉢）



志野釉



ビードロ釉

図 4-6 マイクロ波ーガス複合炉焼成品（右）とメーカー炉焼成品（左）の比較



図 4-7 火色が発色した志野

4-3-1-4 メーカーの従来ガス炉との焼成結果比較

マイクロ波－ガス複合炉とメーカーの従来ガス炉の比較を行った。焼成品の評価と温度分布を評価した。結果を表 4-14 と図 4-7、図 4-8 に示す。

メーカーの従来ガス炉での焼成時には、20.5 時間の焼成時間でも 76℃の温度分布があった。製品には素地・下絵の発色のムラが発生した。しかし、マイクロ波－ガス複合炉では、5 時間の焼成時間で 41℃の温度分布で焼き上がった。素地・下絵とも製品に問題はなく、色ムラは見られなかった。また、マイクロ波－ガス複合炉でガスのみで 11 時間で焼成した結果でも温度分布と色ムラはさらに小さくなった。

表 4-14 マイクロ波－ガス複合炉とメーカー炉との比較試験結果

焼成炉	焼成時間	焼成条件	温度差
マイクロ波－ガス複合炉	5hr	マイクロ波＋ガス	41 ℃
マイクロ波－ガス複合炉	11hr	ガスのみ	33 ℃
メーカーガス炉(0.2m ²)	20.5hr	ガスのみ	76 ℃

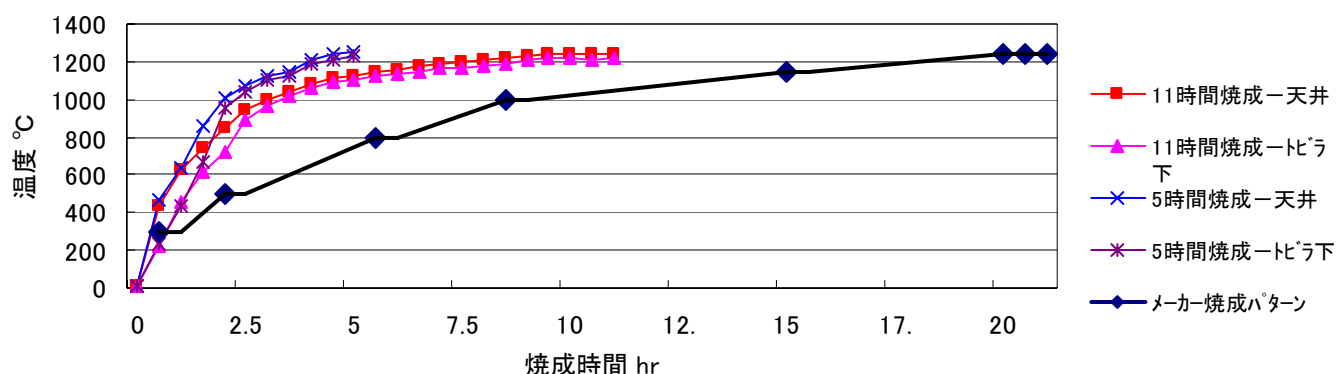


図 4-7 マイクロ波－ガス複合炉とメーカーの従来ガス炉の昇温パターン



図 4-8 マイクロ波－ガス複合炉とメーカー炉焼成品との比較
上段 マイクロ波－ガス複合炉焼成 下段 メーカー従来ガス炉焼成
(左；最低温度、中；中間温度、右；最高温度)

4-3-2 下絵付の発色

下絵付け焼成について、マイクロ波ーガス複合炉の評価をした。マイクロ波ーガス複合炉で焼成したサンプルと、従来ガス炉焼成品の発色の比較および外観性状の評価をした。磁器製湯呑の素焼素地に表4-15に示す絵具を使用して筆書きにより下絵⁽²²⁾加飾を行った後、施釉して、1310℃－5hr－1hrで還元焰焼成を行った。

比較サンプルはメーカーの従来ガストンネル炉で、22時間焼成(1320℃)で焼成した。

表4-15 下絵付焼成試験に使用する絵具サンプル

色 種			
黄	オレンジ	赤	水色
茶	グレー	グリーン	ブルー
古代	ヒワ	ピンク	

絵具は山さ水野商店(株)製を使用した。

マイクロ波ーガス複合炉と従来ガス炉で焼成した下絵付サンプルを図4-9に示す。両者に発色と外観性状の差異はなく、マイクロ波ーガス複合炉でも絵具の発色に問題なく下絵付焼成ができることを確認できた。



図4-9 下絵の評価結果(左；マイクロ波ーガス複合炉焼成、右；従来ガス炉焼成、)

4-3-3 焼成品の品質

4-3-3-1 吸水率

マイクロ波ーガス複合炉で5時間の酸化焰焼成をした素地を切り出して吸水率⁽²³⁾の測定を行い、焼成した素地の焼締まりを確認した。また、従来ガス炉の焼成品からもサンプルを切り出し比較した。測定には磁器、陶器(白素地、赤素地)の3種類を用いた。

試料を110℃の乾燥器中で3時間乾燥させデシケーター内で室温まで冷却した際の乾燥重量(W₁)と、試料を水中で2時間煮沸し室温まで除冷した際の飽水重量(W₂)を用いて次式より求めた。

$$\text{吸水率}(\%) = \{(W_2 - W_1) / W_1\} \times 100$$

マイクロ波ーガス複合炉と従来ガス炉で焼成した磁器と陶器の吸水率測定結果を表4-16に示す。マイクロ波ーガス複合炉5時間焼成では、メジャーリングによる温度測定結果が従来ガス炉よりも低いにもかかわらず、磁器素地は従来ガス炉焼成に比べ吸水率が低くなり良く焼き締まった。陶器素地(白・赤)では同等の焼き締まりであった。磁器素地はガラス成分が多くガラス化することにより、マイクロ波吸収率が高くなり、自己発熱によりより緻密化した。

表 4-16 吸水率測定結果

	マイクロ波－ガス複合炉（酸化）	従来ガス炉（酸化）
設定温度	1250 ℃	1250 ℃
メジャーリング温度	1258 ℃	1276 ℃
陶器（白素地）	5.65 %	5.87 %
陶器（赤素地）	6.12 %	6.25 %
磁器素地	0.05 %	0.18 %

4-3-3-2 耐熱性 スポーリング試験

マイクロ波－ガス複合炉で焼成した耐熱素地のスポーリング試験を行った。耐熱素地の試験温度差は陶磁器用耐熱食器の熱衝撃試験法（JIS S2400）⁽²⁴⁾に基づき 280℃で行った。

スポーリング試験を行った結果を表 4-17 に示した。メーカーの従来ガス炉焼成と同様にマイクロ波－ガス複合炉焼成でも割れ・切れは認められず、問題はなかった。

表 4-17 スポーリング試験結果

素地種類	温度差℃	合否
耐熱素地－土鍋	280	○

4-3-3-3 耐熱性 線熱膨張係数

マイクロ波－ガス複合炉で焼成した耐熱素地について線熱膨張係数⁽²⁵⁾を測定し、従来ガス炉で焼成した素地と比較した。測定には、MAC SIENCE 社製 TD5000S を用いた。

耐熱素地の線熱膨張係数測定結果を表 4-18 にまとめた。メーカーにおける生産品のバラツキ範囲内（生産品管理実績より）の線熱膨張係数を示した。スポーリング試験結果でも異常がなく、マイクロ波－ガス複合炉焼成による耐熱素地の耐熱性は同様であると判断できる。

表 4-18 耐熱素地の熱膨張係数測定結果

焼成炉	メジャーリング指示温度	900℃での線膨張係数（基準温度 30℃） ×10 ⁻⁶ /K
マイクロ波－ ガス複合炉	1220 ℃	1.16
メーカーガス炉	1215 ℃	0～1.3

4-3-3-4 曲げ強度

マイクロ波－ガス複合炉で焼成した高強度磁器（施釉）について曲げ強度試験を行った。曲げ強度試験は食器用強化磁器の曲げ強さ試験方法⁽²⁶⁾（日本セラミックス協会規格 JCSR203-1996）に基づいた。サンプルの作製は鋳込み成型法で行った。

高強度磁器素地の曲げ強度試験の結果を表 4-19 にまとめる。高強度磁器の曲げ強度は、マイクロ波－ガス複合炉で高い値を示した。曲げ強度は焼成温度の影響を受けやすく、焼成温度が 9℃高くなったためである。高強度磁器のマイクロ波－ガス複合炉での焼成は問題ないと判断できる。

表 4-19 曲げ強度測定結果

素地	焼成炉	焼成温度 ℃	曲げ強度 MPa
高強度磁器	マイクロ波ー ガス複合炉	1327	251
	メーカーガス炉	1318	247

焼成温度はメジャーリングによる測定温度

4-4 マイクロ波ーガス複合炉における焼成評価

4-4-1 ヒートカーブと温度分布

マイクロ波ーガス複合炉の温度分布を調べた。メジャーリングを火前・火中、上・中・下、奥・中・扉側に設置し表 4-20 の条件にて焼成した。焼成サンプルは、フリーカップを用い、表 4-7 に示す条件にて窯詰めをした。

また、同様の測定を同サイズの従来ガス炉にて行い、マイクロ波ーガス複合炉の温度分布と比較した。

表 4-20 ガス複合炉評価のための焼成条件

焼成炉	サンプル	窯重量	焼成条件	雰囲気	棚板
マイクロ波 ガス複合炉	フリーカップ	217.8kg	1250℃－4hr－1hr	酸化	アルミナ
			1280℃－4hr－1hr	還元	
従来ガス炉	フリーカップ	217.8kg	1250℃－10.5hr－1hr	酸化	SiC
			1280℃－10.5hr－1hr	還元	

マイクロ波ーガス複合炉での酸化焰 4 時間焼成の昇温パターンを従来ガス炉 10.5 時間焼成のヒートパターンと比較して図 4-10 に示す。温度測定は炉の熱電対によった。また、メジャーリングにより測定した最高温度と最低温度の差を炉内の温度差として表 4-21 にまとめた。マイクロ波ーガス複合炉焼成では、従来ガス炉の酸化焰焼成の温度差 49℃に比べ 38℃と小さく、また、還元焰焼成の 50℃に比べ 36℃と温度差が小さくなった。温度分布は生産炉の実績 40℃以内を満たし、実用上問題がない事が確認できた。還元焰焼成で温度差が小さくなるのは、炉圧が高くなり炉上部の熱気が下部に広がるためである。温度の高い箇所はバーナーの影響を受ける火前であり、低い箇所は炉床であった。バーナー口と棚板との隙間は 70mm しかなく、炉体寸法を変更せずにこの距離を 100mm に伸ばす改良によりさらなる温度分布の向上が見込まれる。従来ガス炉では、バーナーと棚板の間隔は 250mm である。

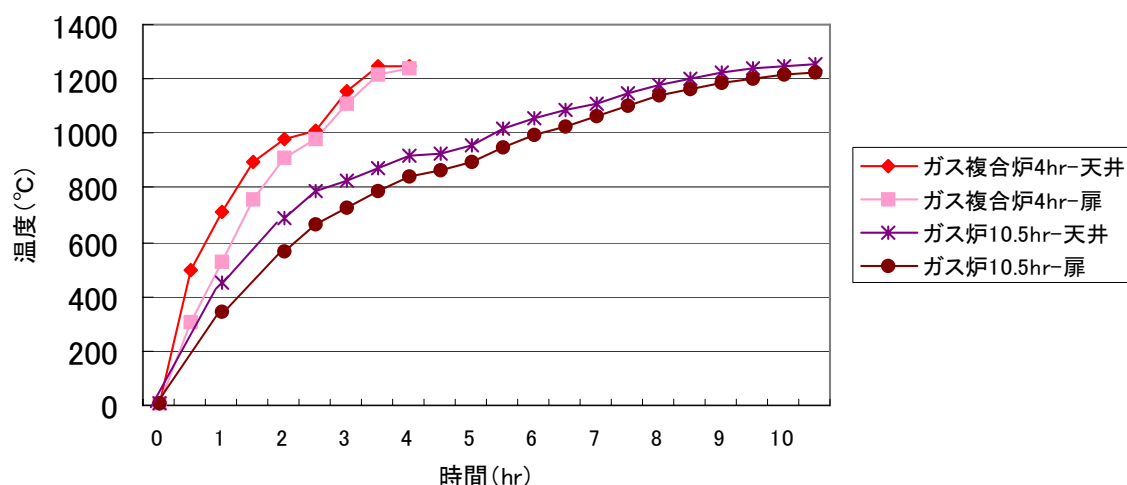


図 4-10 マイクロ波ーガス複合炉と従来ガス炉の焼成パターン（酸化焰焼成）

表 4-21 炉内温度差測定結果（メジャーリング測定）

焼成時間 hr	酸化焼成		還元焼成	
	ガス複合炉	従来ガス炉	ガス複合炉	従来ガス炉
4:00	38℃	—	36℃	—
10:30	—	49℃	—	50℃

4-4-2 焼成雰囲気分布

マイクロ波ーガス複合炉内の焼成雰囲気分布を評価した。朱泥湯呑みを火前・火中、上・中・下、奥・中・扉側に配置し、表 4-22 の条件で酸化焰焼成と還元焰焼成⁽²⁰⁾を行った。同様の試験を従来ガス炉（0.5m³）にて還元焰焼成で行い、マイクロ波ーガス複合炉と比較した。朱泥は、焼成雰囲気と焼成温度の影響を受けやすく、酸化雰囲気では赤、還元雰囲気では黒みを帯び、焼成温度により赤みが異なる。朱泥は雰囲気と焼成温度が安定しないと鉄分の発色が暴れやすく、色調がそろわない⁽²⁷⁾特徴がある。

表 4-22 朱泥の焼成条件

焼成炉	サンプル	窯重量	焼成条件
マイクロ波ーガス複合炉	朱泥、フリーカップ [®]	217.8kg	1170℃－5hr－1hr
従来ガス炉	朱泥、フリーカップ [®]	46.0kg	1170℃－7.5hr－1hr

マイクロ波ーガス複合炉で焼成した朱泥の外観・色調は、酸化焰・還元焰の焼成雰囲気、また、窯位置にかかわらず均一に焼成できた。（図 4-11、図 4-12）しかし、従来ガス炉での還元焰焼成は、扉下部とそれ以外の窯位置では若干の発色のムラが見られた。（図 4-13）従来ガス炉に比べ、マイクロ波ーガス複合炉では均一な雰囲気焼成ができる事が確認できた。このときの温度分布（温度差）はマイクロ波ーガス複合炉で、酸化焰 31℃、還元焰 37℃、従来ガス炉の還元 26℃であった。従来ガス炉では、窯重量が軽く温度ムラが小さくなったにもかかわらず、焼成雰囲気にムラがあった。

図 4-11 マイクロ波ーガス複合炉焼成品
酸化焰焼成図 4-12 マイクロ波ーガス複合炉焼成品
還元焰焼成

図 4-13 従来ガス炉焼成 還元焰焼成（左；扉下部、右；中心部）

4-4-3 マイクロ波－ガス複合炉におけるマイクロ波の効果

従来ガス炉と比較して、マイクロ波－ガス複合炉におけるマイクロ波の効果を確認した。

- ・ 窯構造による焼成時間と温度分布への影響
- ・ 急速昇温による製品の影響

について評価を行った。

これまでの試験でマイクロ波－ガス複合炉では、小型バーナーにて短時間焼成できることが確認できた。しかし、マイクロ波を使用しないで、ガス単独での 5 時間の短時間焼成は不可能であった。1250℃－1 時間保持で、5 時間 15 分必要であった。(表 4-24) ガス単独で短時間焼成するにはバーナーの発熱量を大きくする必要がある。バーナーのサイズアップを図るとバーナーと棚板との距離を大きく取らなければならない、炉体のサイズとコストのアップにつながり、焼成エネルギーも増加する。また、マイクロ波を用いての焼成では、炉内温度分布がより均一になることも確認できた。従ってマイクロ波－ガス複合炉ではコンパクトな炉を設計でき、短時間で均一な温度分布が得られる。(表 4-25)

表 4-24 焼成方法の違いによる炉内温度への影響

焼成時間 hr	マイクロ波＋ガス			ガスのみ		
	炉内温度 ℃		温度差 ℃ 最大-最小	炉内温度 ℃		温度差 ℃ 最大-最小
	最高点	中心部		最高点	中心部	
4:00	1268	1259	38	—	—	—
5:15	—	—	—	1262	1240	48

表 4-25 焼成方法の違いによる炉構造への影響

焼成方法	最短焼成時間	炉構造	バーナー	焼成エネルギー
マイクロ波＋ガス	4:00hr	小型化	小型バーナー	小
ガス単独	5:15hr	大型化	バーナーサイズアップ バーナーと棚板距離必要	大

急速昇温による製品の影響について評価を行い、表 4-26 に結果を示した。マイクロ波－ガス複合炉によるマイクロ波とガスによるハイブリッド焼成では 1.5hr で 839℃まで昇温しても割れは発生しなかった。ガス単独焼成では、1.5hr で 742℃の昇温をすると磁器湯呑みに割れが発生 (30%) した。従来ガス炉の熱伝導による加熱と違って、マイクロ波炉では焼成体が自己発熱するので焼成体内が均熱に昇温し、短時間昇温が可能である。マイクロ波－ガス複合炉においても、自己発熱の効果で焼成体の破損を生じることなく急速加熱が可能である。

表 4-26 焼成方法の違いによる焼成体への影響

焼成方法	昇温速度 (室温から)	磁器湯呑みの状況
マイクロ波＋ガス	839℃／1.5hr	割れナシ
ガス単独	742℃／1.5hr	割れ発生 (30%)

4-5 マイクロ波連続炉による陶磁器の焼成試験

4-5-1 マイクロ波連続炉の仕様

マイクロ波バッチ炉の生産効率を高めたローラーハース方式のマイクロ波連続炉にて、陶磁器製飲食器の焼成の評価を行った。使用したマイクロ波連続炉⁽⁶⁾⁽⁷⁾の仕様を表 4-27 に示す。

表 4-27 マイクロ波連続炉の仕様

項目	仕様
キルン形式	ローラーハースキルン
焼成温度 Max	1450℃
焼成雰囲気	酸化雰囲気
炉寸法 全長	21,027mm
有効炉内巾	350mm
有効高さ	250mm
基本焼成時間	3～20 時間
セッター	255w×350L×12t 3kg/枚
焼成品	2kg/枚
炉内収容セッター数	57 セッター
マイクロ波発振器	111.5kw

4-5-2 マイクロ波連続炉の焼成サンプル

マイクロ波バッチ炉で焼成したサンプルを用いた。サンプルを表 4-28、表 4-29 に示す。

表 4-28 マイクロ波連続炉で試験した伝統釉サンプル

焼成雰囲気	種 別	成 分	名 称
酸化焰焼成	基礎釉	石灰亜鉛釉系	透明釉 骨灰失透釉 マット釉
		灰釉系	長石釉 焼津灰失透釉 イラボ釉
	色 釉	鉄釉系	天目釉 飴釉 黄瀬戸釉 バリウムオリーブ釉
		銅釉系	織部釉 銅青磁釉 バリウム青緑釉
		クロム釉系	バリウムヒワ釉
		顔料系	黄釉 赤茶釉 トルコ青釉 黒釉

表 4-29 マイクロ波連続炉で試験したメーカーサンプル

焼成雰囲気	種 別	品 名
酸化焰焼成	朱 泥	湯呑 急須
	耐熱陶器	土鍋 水コンロ
	白雲陶器	小鉢 貯金箱
	半磁器	マグカップ ポット
	貫入磁器	マグカップ

4-5-3 ヒートカーブの設定と焼成温度

マイクロ波バッチ炉とマイクロ波連続炉の焼成品の比較を行い、陶磁器製飲食器の連続炉焼成を評価した。マイクロ波バッチ炉での焼成と同条件となるよう 2 時間の酸化焰焼成で昇温し、冷却は 2 時間のパターンの 4 時間焼成試験を行った。

マイクロ波連続炉で焼成したサンプルの焼成温度をそれぞれ表 4-30、表 4-31 に、マイクロ波連続炉での焼成カーブを図 4-16 に示す。焼成温度のコントロールは、狙いの温度で焼成できた。

表 4-30 伝統釉サンプルの焼成温度

	設定温度	メジャーリング測定温度
温度	1275 °C	1276 °C

表 4-31 メーカーサンプルの焼成温度

焼成雰囲気	種別	品 名	設定温度℃	メジャーリング測定温度℃
酸化焰焼成	白雲陶器	小鉢 貯金箱	960	954
	朱泥	湯呑 急須	1190	1186
	耐熱陶器	土鍋 水コンロ	1215	1225
	貫入磁器	マグカップ	1227	1225
	半磁器	マグカップ ポット	1252	1240

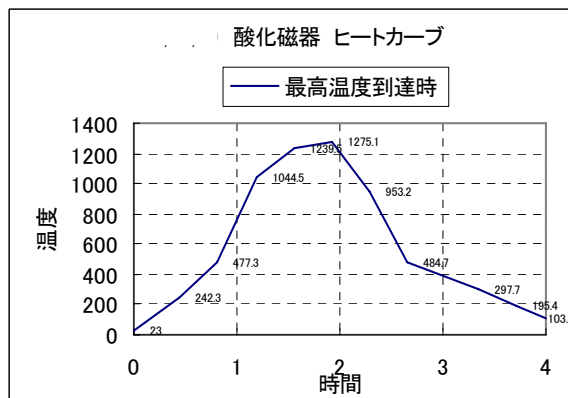
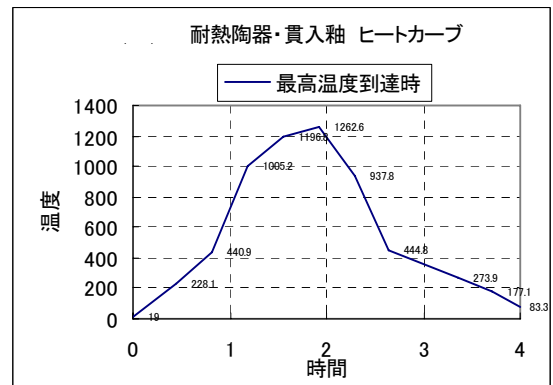
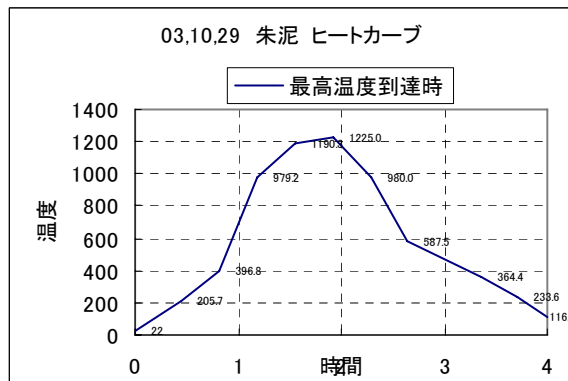
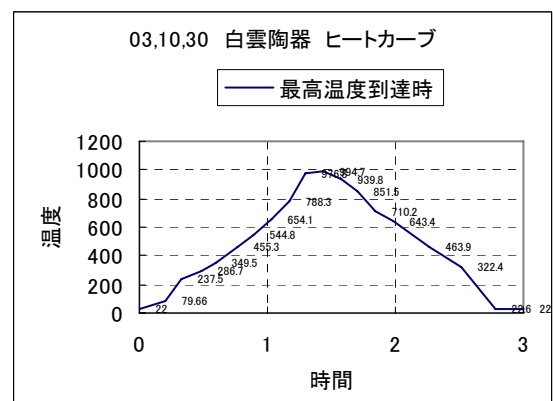
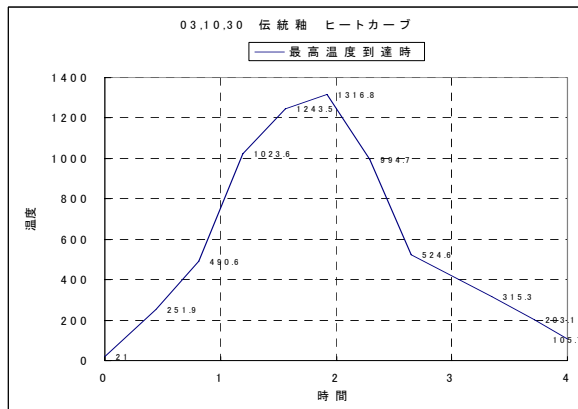


図 4-16 マイクロ波連続炉のヒートカーブ

表 4-32 伝統釉サンプルのマイクロ波連続炉焼成とマイクロ波バッチ炉焼成の外観性状の比較（酸化焰焼成）

連続炉焼成 / バッチ炉焼成

分類	釉薬名（素地の種類）	釉性状	色調	欠 陥					備 考	
				切れ	貫入	変色	ピットホール	歪	連続炉	バッチ炉
基礎釉	石灰亜鉛釉系			○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
		透明釉（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
		骨灰失透釉（陶器赤）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	有 / 有	○ / ○		
		マット釉（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
灰釉系		長石釉（陶器白）	○ / ○	○ / ○	有 / 有	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
		焼津灰失透釉（陶器赤）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	有 / 有	○ / ○		
		イラボ釉（陶器赤）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
		天目釉（陶器白）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
鉄釉系		鉛釉（陶器白）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
		黄瀬戸釉（陶器白）	○ / ○	○ / ○	有 / 有	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
		バリウムオリーブ釉（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
		織部釉（陶器白）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
銅釉系		銅青磁釉（陶器白）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
		バリウム青緑釉（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
		バリウムヒワ釉（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		ジワ
顔料系		黄 P-40（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	ジワ	ジワ
		赤茶 M-13（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	ジワ	ジワ
		トルコ青 M-5000（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		
		黒 M-700（磁器）	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○	○ / ○		



透明釉



マット釉



長石釉



焼津灰失透釉



天目釉



バリウムオリーブ釉



織部釉



銅青磁釉



バリウム青緑釉



バリウムヒツ釉



黄釉



赤茶釉



トルコ青釉



黒釉

図 4-17-1 連続炉焼成結果（伝統釉サンプル） 左；マイクロ波炉、右；連続炉焼成



朱泥



耐熱陶器



白雲



半磁器マグカップ



半磁器ポット (ナマコ釉)



貫入釉

図 4-17-2 連続炉焼成結果（メーカーサンプル） 左；マイクロ波炉、右；連続炉焼

4-5-4 マイクロ波連続炉による陶磁器の焼成

4-5-4-1 釉薬と素地の外観性状（伝統釉サンプルとメーカーサンプル）

マイクロ波バッチ炉と連続炉での焼成品の外観性状⁽¹⁹⁾を比較し、表 4-32 にまとめた。また、焼成したサンプルの写真を図 4-17 に示す。

釉薬については、ナマコ釉・朱泥以外はバッチ炉と同等な外観性状を示した。青く発色すべきナマコ釉のポットが黒く発色した。（図 4-18）電気炉にて比較試験を行い。連続炉と同様な 2 時間の冷却速度では、同様な黒い発色となった。連続炉では、バッチ炉に比べ冷却速度が速いために変色した。マイクロ波焼成の影響ではないことが確認できた。

また、朱泥も黒味をおびた発色となった。（図 4-19）ナマコ釉と同様に電気炉にて急冷試験で確認を行った。また、ナマコ釉・朱泥とも連続炉で除冷を行うとバッチ炉と同等な発色を呈した。

連続炉焼成において、焼成温度の高いサンプル（1275℃）で歪が発生した。（図 4-20）歪は連続炉の進行方向に平行に縦長に変形し、また、進行方向と直角に割れが発生したサンプルもあった。連続炉内でのマイクロ波のエネルギー分布・側壁との間の温度分布が原因であり、確認が必要である。



図 4-18 ナマコ釉
（左；従来ガス炉 右；マイクロ波連続炉）



図 4-19 朱泥
（左；マイクロ波連続炉 右；従来ガス炉）



図 4-20 進行方向に歪んだサンプル
(写真横方向が進行方向)

4-5-4-2 耐熱性 スポーリング試験

耐熱素地の土鍋に対してスポーリング試験を行った。耐熱素地の試験温度差は陶磁器用耐熱食器の熱衝撃試験法（JIS S2400）⁽²⁴⁾に基づき 280℃で行った。

スポーリング試験を行った結果を表 4-33 に示した。マイクロ波連続炉焼成は、メーカーの従来ガス炉・マイクロ波バッチ炉焼成と同様で問題はなかった。

表 4-33 スポーリング試験結果

素地種類	温度差℃	合否
耐熱素地－土鍋	280	○

4-6 総括

マイクロ波焼成炉の工業用生産炉として開発した普及価格帯のマイクロ波－ガス複合炉、また、大量生産用のマイクロ波連続炉での陶磁器製飲食器の焼成試験結果から「短時間・均熱・均質」の焼成炉としての実証ができ、得られた知見は、以下の通りである。

マイクロ波－ガス複合炉

- ・ マイクロ波－ガス複合炉は、酸化焰焼成も還元焰焼成も陶磁器を4時間で焼成できた。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時間以上必要である。
- ・ 炉内温度分布は還元焰4時間焼成で36℃となり実用範囲内であり、雰囲気のもうも見られなかった。従来ガス炉の50℃に比べ、均質な焼成が可能であった。
- ・ マイクロ波－ガス複合炉では、陶磁器製飲食器の外観性状・物性とも従来のガス炉と同等な焼成ができた。
- ・ 棚板は、SiC、アルミナ製が使える事が確認できた。

マイクロ波連続炉焼成（大量連続生産）

- ・ ナマコ釉、朱泥以外の釉薬・素地は、マイクロ波バッチ炉と同様に2時間で焼成ができ、冷却は2時間で可能であった。
- ・ ナマコ釉、朱泥等の鉄系顔料を含む飲食器は、連続炉の冷却速度の影響を受け、発色が異なるので、調合または冷却速度の調整が必要である。
- ・ 焼成温度によっては、連続炉の進行方向に平行に歪みが発生する場合があった。

本章の研究は、H15年度地域新生コンソーシアム研究開発事業「環境負荷低減型短時間・均質加熱焼成プロセスの開発」⁽²⁸⁾にて行われた成果である。

参考文献

- (1) 功刀雅長, 加藤悦郎, 長坂克巳: 無機材料, 共立出版社, p110-115 (1980)
- (2) 高嶋廣夫: 実践陶磁器の科学, 内田老鶴圃, p206-216(1996)
- (3) 小林雄一, 大平修, 大橋康男, 加藤悦郎: アルミナ強化磁器素地の強度とワイブル分布, 窯業協会誌, Vol.95, p887-892 (1987)
- (4) 素木洋一: 図解工芸用陶磁器, 技報堂出版, p78(1970)
- (5) 黒田永二: 焼物の謎に迫る, 裳華房, p82 (1995)
- (6) S.Takayama et al: Microwave Sintering of Ceramics at 2.45GHz in the Adiabatic Cascade Insulator, Proc. 8th International Conference on Microwave and High Frequency Heating, Bayreuth Germany, 2001
- (7) 佐藤元泰 et al: 日本電磁波応用研究会第 18 回研究会予稿集, p15 (2002)
- (8) マイクロ波応用技術研究会: マイクロ波応用技術、工業調査会, p122 (2004)
- (9) H. Fukushima, Y. Ishii, Y. Fukushima: Ultrahigh-speed heating of porous ceramics by microwave energy, Proc.of PACIFICHEM, 2005 Hawaii
- (10) M. Sato, H. Fukushima, et.al.: Experimental Investigation of Mechanism of Microwave Heating in Powder Metals, IRMMW2004/THz2004 Joint, Karlsruhe, Germany, 2004
- (11) H. Fukushima, "Microwave Heating System by Using Remote-Controlled Resonant Cavity", Microwave 2004, p244-247, Takamatsu, 2004
- (12) H. Fukushima, "Rapid Heating by Single-Mode Cavity Controlled at 6GHz", MAPEES04, 2004, Published from Elsevier Ltd
- (13) 佐藤元泰, 武藤敬, 居田勝巳, 下妻隆, 井上徳之, 江崎和弘, 高山定次, 水野正敏, 平井敏夫, 島田忠: 日本電磁波応用研究会第 16 回研究会予稿集, p18 (2000)
- (14) M.Sato et al: Insulation Blankets of 2.45GHz Microwave Sintering of Traditional Ceramics, Proc. 2nd World Congress on Microwave & Radio Frequency Processing, MWP-CE-13, Florida, 2000
- (15) 日本セラミックマシナリー協会: セラミックマシナリーハンドブック, 日刊工業新聞, p288-292
- (16) 佐藤元泰, 平井敏夫, 水野正敏, 渡辺隆, 長島崇: マイクロ波工業炉の幕開け, 工業加熱, Vol.40. No.3 (2003)
- (17) マイクロ波応用技術研究会: マイクロ波応用技術、工業調査会, p126(2004)
- (18) 素木洋一: セラミック製造プロセスⅢ、技報堂出版, p164-167(1979)
- (19) 素木洋一: セラミック製造プロセスⅢ、技報堂出版, p130 (1979)
- (20) 日本セラミックス協会: セラミック工学ハンドブック, 技報堂出版, p176-180 (1989)
- (21) 小山富士夫, 荒川豊蔵: 日本のやきもの 美濃, 淡交社, p141-150 (1963)
- (22) 大西政太朗: 陶芸の伝統技法, 理工学社, p4-37-41 (1978)
- (23) セラミックス編集委員会講座小委員会: セラミックスのキャラクターゼーション, 日本セラミックス協会, 技報堂出版, p2-3 (1987)
- (24) 日本規格協会: JIS-S2400 陶磁器製耐熱食器の熱衝撃試験法 (1991)
- (25) 窯業読本編集委員会: 窯業計測, 日本セラミックス協会, p204-207 (1974)
- (26) 日本セラミックス協会: JCRS203-1996 給食用磁器食器の曲げ強さ試験方法 (1996)
- (27) 梶野五郎: 陶磁器欠点防止技術, 総合通信社, p56 (1976)
- (28) 佐藤元泰, 渡辺隆, 土本光正, 長島崇 et al: H15 年度地域新生コンソーシアム研究開発事業報告書「環境負荷低減型短時間・均質加熱焼成プロセスの開発」, 経済産業省(2003)

第5章 マイクロ波ーガス複合炉の活用

マイクロ波ーガス複合炉の生産現場での実用的な可能性を拡大する実践的な評価を行い、以下の知見を得られた。

強制冷却試験では、1320℃－4hr－1hr の焼成においても6時間の強制冷却が可能であった。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、焼成品にヒビ・割れの発生はなく、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、焼成サンプルの内部温度と表面温度を測定することにより、投入するマイクロ波エネルギーとガスエネルギー量を調整して、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を行うことができ均質加熱が可能となった。花瓶・大型罫子・風呂桶などの大物の焼成が可能であった。大物の焼成時間は、従来ガス炉の1／4以下の2時間～9時間となった。

窯詰め状況が及ぼす製品への影響について、磁器製品について積載間隔を詰めた方法で窯詰めをして3.5時間の短時間焼成をした。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。

5-1 緒言

マイクロ波焼成の「短時間・省エネルギー・低燃費^(1～5)・均熱⁽⁶⁾⁽⁷⁾・均質」の効果を活かした陶磁器の工業用生産炉としてマイクロ波ーガス複合炉を開発した。第4章では、工場での標準的な生産条件における評価を行った。4時間の短時間焼成で従来ガス炉に比べ短時間・省エネルギー・低燃費・均熱・均質な焼成ができることを実証できた。

本章では、マイクロ波ーガス複合炉により、短時間焼成サイクル確立のための強制冷却試験、陶磁器焼成では焼成時間が長く歩留まりが悪いとされてきた大物・厚物の短時間焼成、生産現場の変動的な無理をした生産条件への対応を想定し、マイクロ波ーガス複合炉の生産現場で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

短時間焼成サイクルを確立するために、強制冷却試験を行った。他品種少量生産・短納期対応等の市場の要望に答える生産効率のより高い生産システムの一助となる。マイクロ波ーガス複合炉では4時間の短時間焼成ができることを確認できた。4時間の焼成パターンを1日2回焼成できるよう6時間の冷却⁽⁸⁾パターン(100℃まで200℃/hrで冷却)で、10時間／回の焼成サイクルの可能性を試験した。断熱材にシリカ・アルミナ系のファイバーブランケットを使っているので炉の構造においては急冷の問題はなく、強制冷却の可能性を評価した。

大物焼成

マイクロ波ーガス複合炉では、陶磁器製飲食器の短時間・省エネ焼成の実証を行った。本章では、短時間で均質に歪みなく焼成できる特徴を活かして、花瓶・大型罫子⁽⁹⁾・風呂桶などの大物・厚物焼成について短時間焼成試験を行った。

従来のガス炉による大物焼成は、炉内の温度分布・輻射熱による熱伝導の差によりヒビ・割れが発生しやすく、炉内の温度分布と焼成体内の均熱を得るために焼成時間を長くせざるを得なかった。また、長時間焼成を行っても歩留まりが悪く高価な商品となり普及の妨げとなっていた。マイクロ波焼成では、自己発熱を利用した均質加熱により短時間に割れなく焼成することが期待できる。

陶磁器の焼成ではサンプルの表面温度と内部温度の差が焼成結果に影響を与える。大物焼成では肉厚が厚いために均熱を保ちながら昇温することが重要である。従来ガス炉焼成では輻射熱により表面温度が高く、熱伝導により昇温する内部温度が低くなる。その温度差を緩

和するために長い焼成時間が必要である。しかし、マイクロ波ーガス複合炉による大物焼成では、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バランス調整がサセプター（等温熱障壁）に換わって重要となる。そこでまず、大物の内部温度と表面温度を測定しながら、投入するマイクロ波エネルギーとガスエネルギーの調整を行い、焼成パターンを検討した。この結果を基に大物の焼成を行った。

窯詰め状況が及ぼす製品への影響

マイクロ波ーガス複合炉では従来ガス炉の標準的な焼成に比べ、短時間焼成ができることを実証できた。しかし、食器メーカーのより高い信頼を得るためには、従来ガス炉での標準的な焼成条件だけではなく、メーカーの変動的な生産条件・無理を行わざるを得ない現場に即した評価も必要である。メーカーの従来ガス炉焼成では生産変動や、生産効率を上げるために隣同士の製品間隔を空けずに積載効率を上げて窯詰めをしたために製品に歪みが入ってしまったり、棚板⁽¹⁰⁾と棚板の間隔を適切に空けないために積載量が過剰となり製品の裏底部の釉薬がきれいな光沢面に溶けない場合など、熱が均一に廻りきらないために問題が発生する。

そこで、磁器製品について積載間隔を詰めた方法で窯詰めをし、短時間焼成における歪みや裏底部の釉薬の溶けの評価を行い、生産現場の変動的な無理をした生産条件への対応を評価した。

5-2 マイクロ波ーガス複合炉の強制冷却試験

5-2-1 焼成サンプル

試験条件ができるだけ過酷となるよう、焼成温度・焼成サンプル・焼成重量を選択した。焼成温度を高くし冷却温度差が大きくなるよう、表 5-1 に示す磁器蕎麦猪口と磁器フリーカップを焼成した。蕎麦猪口には、ゴスによる下絵印刷が施してあり、焼成・冷却による発色のムラを評価することができる。

表 5-1 焼成サンプル

サンプル	サイズ	個数
蕎麦猪口	φ 80×65mm	300 個
フリーカップ	φ 80×102mm	120 個

5-2-2 窯詰めと焼成重量

炉内の空間が狭くなるような窯詰めにより焼成重量を重くし、焼成速度と冷却速度が遅くなるような過酷な条件で短時間冷却の可能性を評価した。蕎麦猪口の配置は、炉内の上中下・火前・火中・前後に配置し、上 2 段・中 2 段・下 1 段に詰めた。焼成・冷却によるゴスの発色を評価した。

焼成重量を表 5-2 に、窯詰めの様子を図 5-1 に示す。

表 5-2 強制冷却試験のための焼成重量

品目	個数	重量
蕎麦猪口	300 個	42kg (140g/個)
フリーカップ	120 個	27kg (225g/個)
棚板	48 枚	146.88kg (3060g/枚)
ツク (大)	48 個	10.65kg (222g/個)
ツク (小)	120 個	16.8kg (140g/個)
合計	—	243.33kg

注) 標準焼成時の窯重量は、217.8kg



図 5-1 窯詰めの様子

5-2-3 焼成パターンと焼成温度

1320℃－4hr－1hr の還元焰焼成を行った。還元は 950℃以上で CO 濃度 3%で管理した。1 日 2 回の焼成が可能ないように 10 時間焼成サイクルを目指し、冷却速度は、6 時間 (100℃まで 200℃/hr) を目標とした。(図 5-2) 炉内の温度は、天井と扉下部に設置した熱電対にて測定し制御した。

冷却は、自然放冷・ダンパー調整・冷却エアードurch込み・扉からの放熱により行った。石英粒子の結晶転移点 573℃前後では製品の割れを防ぐために、冷却速度が急激に変わらないよう留意した。冷却エアードurch込みは、強制ガスバーナー口より空気を流した。500℃以下の低温時には打ち込みエアードurch込みだけでは、冷却速度が低下するので扉を開け冷却を促進した。

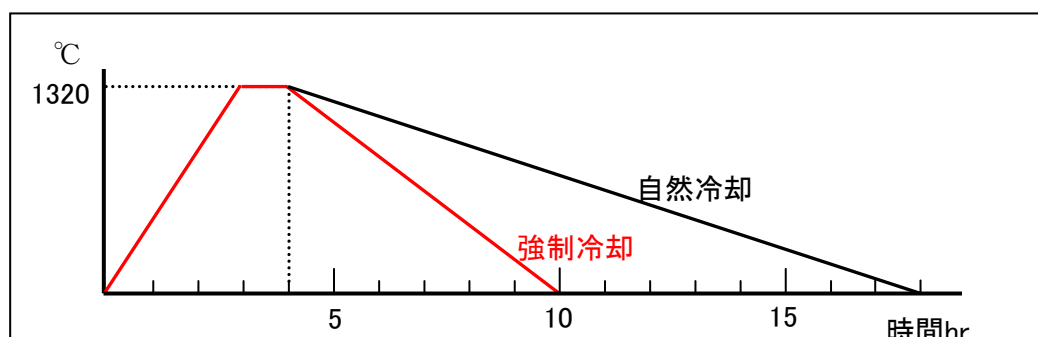


図 5-2 目標とする焼成・冷却パターン

5-2-4 冷却結果と考察

自然放冷・ダンパー調整・冷却エアードurch込み・扉からの放熱の組合せにより、6 時間で窯出しが可能であった。蕎麦猪口・フリーカップに冷め割れは見らなかった。また、均一な発色と釉薬の溶けが得られ短時間焼成・強制冷却を行っても良好な品質の製品を焼成することができた。(図 5-3、5-4)



図 5-3 焼成後の窯詰め状況



図 5-4 焼成したサンプル

焼成・冷却の温度状況を図 5-5 に、操作状況を表 5-3、図 5-6 にまとめた。焼成終了後ダンパーを全開にし、冷却を開始した。40 分後には冷却エアードurch込み始め、炉内温度の低下に伴いエアードurch込み圧を上げた。2 時間後にはダンパー下を閉じ煙突への熱気の流れを促進した。4 時間 30 分後には、扉を開け炉内上部の熱を逃がした。マイクロ波・ガス複合炉は強制冷却のための設計はしていないので、炉内上部の熱を効率よく逃がす構造となっておらず、441℃以下の冷却においては扉を開けることにより冷却を行った。扉を開け冷却を行う際には、炉内の熱気流が炉上部から急速に炉外に流れ出さないようにするためと、流れ出た熱気流でステンレス炉体の損傷を防ぐために、扉上部と上部両サイド(高さ 30cm)のファイバー部にコの字型のブランケットの帯を挟み込んだ。(表 5-3※1、図 5-6)更に冷却速度が遅くならないように、次の段階では扉下部のファイバー部に幅 10cm のブランケットを挟み込み、炉内への急激な冷気の進入を防ぐとともに、扉上部両サイド(高さ 30cm)のブランケットをはずして上部のみとして、炉体の両サイドから熱気流を逃がして冷却を行った。(表 5-3※2)3 時間後には、床下に冷却エアードurch込みを流したが、冷却の効果はみられなかった。

500℃以下の冷却においては、扉を開けることにより冷却を行った。炉内上部の熱を効率よ

く逃がすために、均熱温度焼成の妨げとならないような開閉式の熱気抜きを炉体上部に設置する設計改善により、冷却速度と操作性の向上を図ることができる。

炉の断熱材にはシリカ・アルミナ系のファイバーブランケットとボードを使っているので、炉材に急冷による損傷の問題はなく、強制冷却が可能であった。

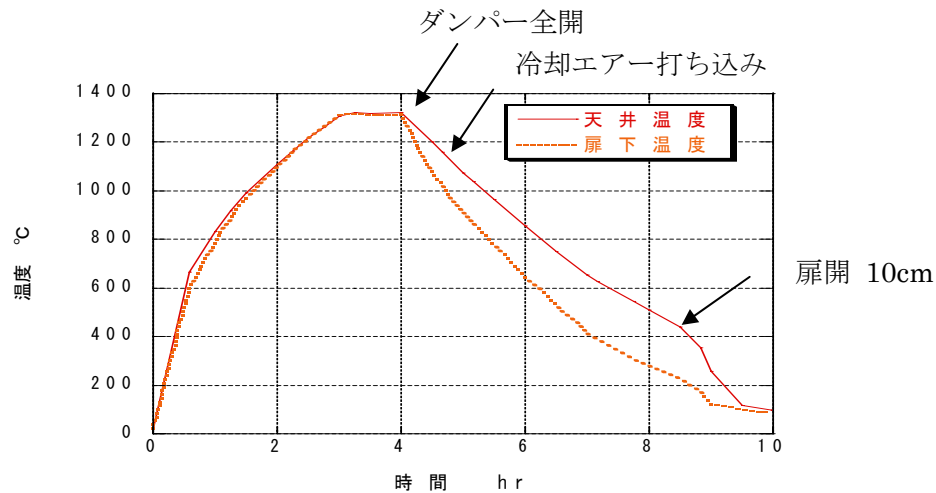


図 5-5 昇温・冷却カーブ

表 5-3 冷却時の操作

時間	温度℃ (上-扉)	操作	冷却速度℃/hr
冷却開始	1321-1314	ダンパー全開	—
40 分	1161-1023	冷却エア打ち込み 圧 500MPa	239
1 時間	1075-912	冷却エア 圧 1000 MPa	260
1 時間 10 分	1037-865	冷却エア 圧 2000 MPa	223
1 時間 30 分	964-774	冷却エア 圧 3000 MPa	221
2 時間	856-641	ダンパー下全閉	216
2 時間 30 分	752-525	冷却エア 圧 5000 MPa	208
3 時間	655-411	冷却エア 圧 4000 MPa、床冷却	194
3 時間 10 分	626-391	冷却エア 圧 5000 MPa、床冷却止め	170
4 時間	509-280	冷却エア 圧 5000 MPa	141
4 時間 30 分	441-225	冷却エア 圧 5000 MPa、扉開 10cm、※ 1	136
4 時間 50 分	354-172	冷却エア 圧 5000 MPa、扉開 10cm、※ 2	264
5 時間	255-122	冷却エア 圧 5000 MPa、扉開 100cm	300
5 時間 30 分	116-97	冷却エア 圧 5000 MPa、扉全開	278
6 時間	95-83	窯出し	42

※ 1 扉上部と上部両サイド (長さ 30cm) に幅 10cm のブランケットを設置し、炉内の熱気が急激に流出することと、炉本体のステンレス部の加熱を防いだ。

※ 2 扉下部に幅 10cm のブランケットを設置し、炉内への急激な冷気の進入を防ぐとともに、扉上部両サイドのブランケットをはずして上部のみとして、炉本体のステンレス部の加熱を防いだ。

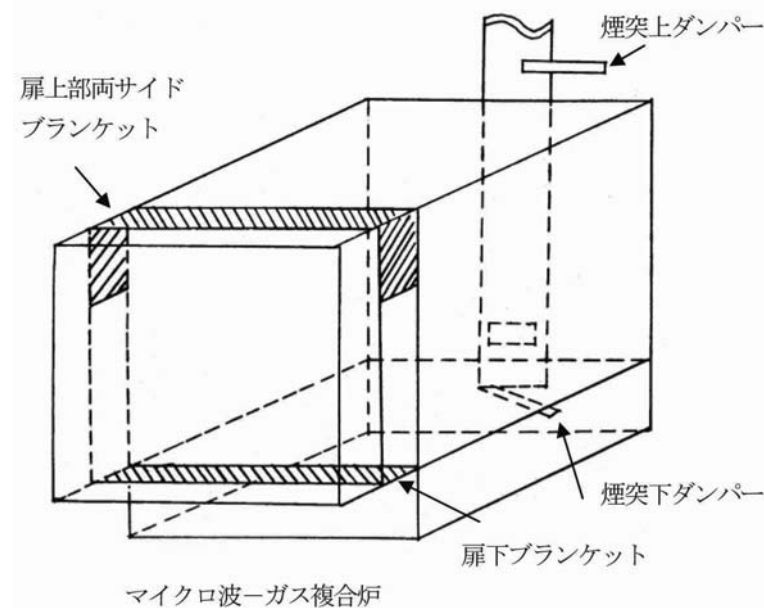


図 5-6 炉に設置したブランケット

5-2-5 結 論

マイクロ波-ガス複合炉では、 $1320^{\circ}\text{C}-4\text{hr}-1\text{hr}$ の焼成において、6 時間の強制冷却が可能であった。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。この焼成パターンでは、焼成品にヒビ・割れの発生はなく、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。本試験炉では、強制冷却のための専用設計はしていないので熱気抜きを設置すれば冷却速度と操作性の向上を図ることができる。

5-3 マイクロ波-ガス複合炉による大物焼成試験

5-3-1 大物焼成の内部温度と表面温度測定

5-3-1-1 焼成サンプルと温度測定

マイクロ波-ガス複合炉による大物焼成では、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バランス調整がサセプター（等温熱障壁）に換わって重要となる。そこでまず、大物の内部温度と表面温度を測定しながら、投入するマイクロ波エネルギーとガスエネルギーの調整を行い、焼成パターンを試験した。この結果を基に大物の焼成を行った。

肉厚 40mm のブロック状サンプル（ $300 \times 120 \times 40\text{mm}$ ）に穴（ $\phi 6\text{mm}$ —深さ 60mm）を開け、シース熱電対（ $\phi 3\text{mm}$ ）によりブロック肉厚の中央と表面の温度を炉内温度とともに測定した。ブロックとシース熱電対の取り付け位置を図 5-7 に示す。ブロックは、大物作成用の陶器質の素地を使った。



図 5-7 温度測定を行ったブロックと熱電対

5-3-1-2 焼成パターン

1250℃-4hr-1hr の昇温パターンで 1200℃までガス圧をコントロールしながら昇温した。ブロック表面・内部温度と雰囲気温度を調整できるようマイクロ波パワーを調整した。マイクロ波パワーは12台のマイクロ波発振器を1台毎にON-OFF操作することにより行った。

5-3-1-3 内部温度と表面温度測定の結果と考察

炉内温度（天井・扉）とブロック表面（外）・内部温度（中）の測定結果と炉に投入したマイクロ波パワーの関係を図 5-8 に示した。

焼成時間の経過とともに炉内温度（天井）とブロック表面は同じ温度を示し上昇した。しかし、ブロックの内部温度は、炉内温度が 800℃を越えると急上昇し始め、表面温度よりも高くなった。そこで、マイクロ波のパワーを下げた内部温度と表面温度の差が小さくなるような調整が必要となった。マイクロ波発振器の数を2個に減らすとブロック表面と内部温度の均熱が調整できた。昇温速度を上げる際には、マイクロ波発振器の個数を増やすと調整できた。1200℃以上では、シーす熱電対の耐久性がないので、ブロック内部と表面の温度測定は行わなかった。

ブロックはマイクロ波を吸収して発熱する。表面は放熱をしながら雰囲気温度とのバランスを保つ。肉厚が厚いサンプルの内部は、蓄熱した熱が表面に熱伝導する速度よりも発熱の速度が速い場合に、内部温度の上昇が速くなる。陶磁器の焼成においては、800℃以下の生素地では緩やかな発熱を呈するが、約 800℃を境にマイクロ波による発熱特性が急激に変化する。800℃以上では発熱をすることが、温度と誘電損失の関係（図 5-9）と碍子素地・窯業材料のマイクロ波発熱試験（図 5-10）で確認されている。本試験においても 800℃近辺にて陶磁器素地のマイクロ波吸収特性が急激に高くなり、ブロックの内部温度と雰囲気温度とのバランスがとれず、内部のみ温度が高くなった。

800℃以上で内部のみ温度上昇することを防ぐために、マイクロ波のパワーを減少させ表面と内部の温度バランスをとることができた。また、キープ時には温度上昇の必要がなく、マイクロ波のパワーは最小限とすることができる。

また、マイクロ波-ガス複合炉は、食器類約 220kg を4時間で焼成するためにマイクロ波エネルギーが設計されており、それより軽くより焼成時間の長い大物にフルパワーをかける必要はない。そのために、マイクロ波エネルギーを絞る必要がある。

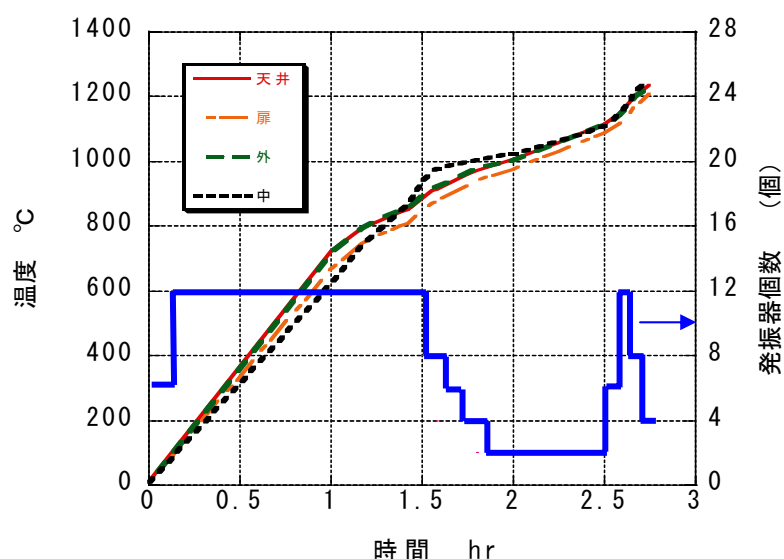


図 5-8 マイクロ波投入量と焼成温度の関係

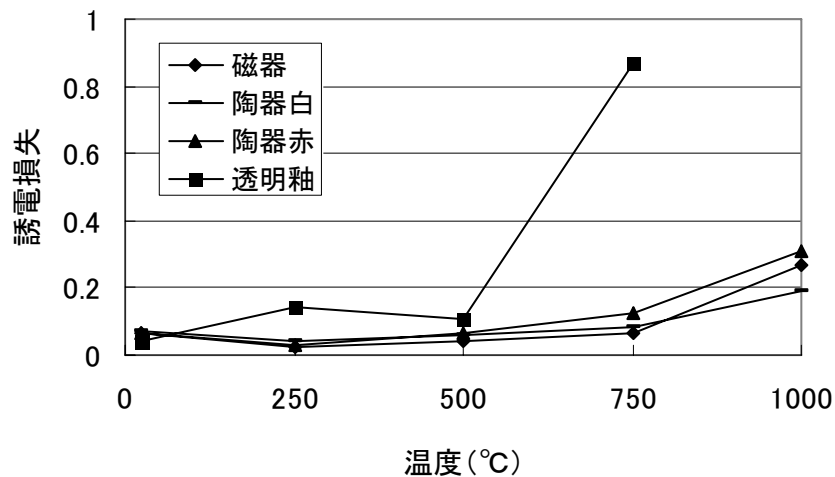


図 5-9 マイクロ波吸収特性の評価（誘電損失測定結果）

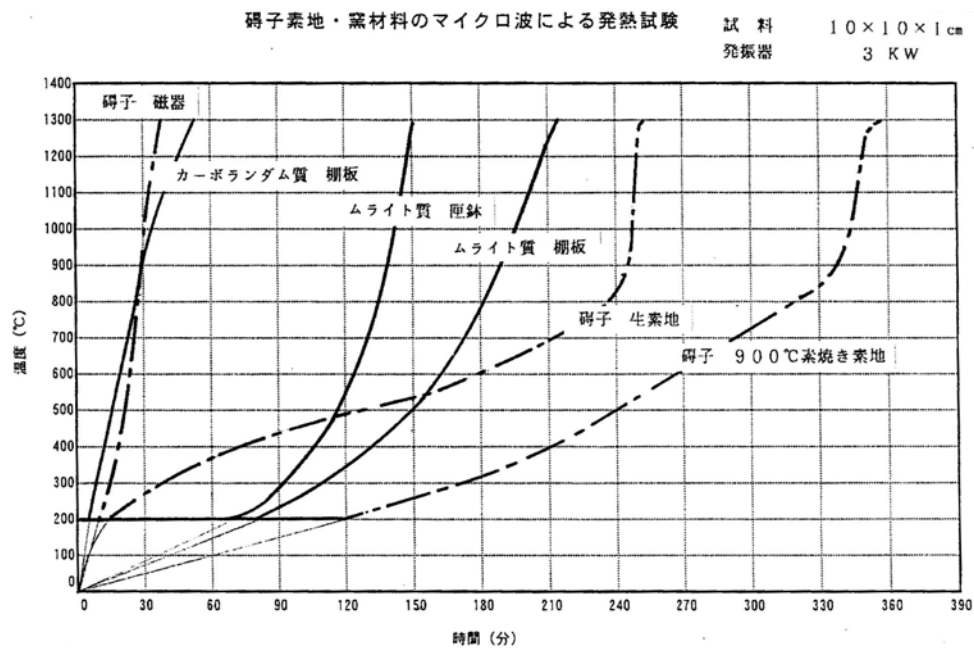


図 5-10 磚子素地・窯業材料のマイクロ波による発熱試験⁽¹⁾

5-3-2 大物の焼成試験

5-3-2-1 焼成サンプル

焼成した大物サンプルの寸法を炉内寸法と比較して表 5-4 に示す。花瓶は手ロクロ成形、磚子は自動成形機により、掛け湯壺と風呂桶は手びねりで作成した。掛け湯壺は炉内高さ寸法一杯のサイズで成形し、棚板の上に設置したときの天井との隙間は 20mm とした。風呂桶は炉内横幅寸法一杯のサイズで作成し、直径は炉内有効巾より 50mm 大きいサイズとして過酷な条件での焼成試験を行った。

表 5-4 焼成サンプルと炉内寸法

サンプル	材質	寸法	厚み
花瓶	陶器	φ 350×220h	10mm
碇子	磁器	φ 125×220h	50mm
掛け湯壺一大	陶器	φ 550×700h	40mm
風呂桶	陶器	φ 750×500h	60mm
炉内有効寸法 (炉内最大寸法)	—	70w×110d×700h 900w×115d×750h	—

5-3-2-2 サンプルの窯詰め

掛け湯壺と風呂桶の窯詰め状況を図 5-11 に示す。掛け湯壺では、天井熱電対が製品の中に入り込んだ。また、風呂桶ではガスバーナーのガス吹き出し口（4本）の上に製品がせり出した。風呂桶焼成では、8本のガスバーナーの内、製品に近い4本のガスバーナーは塞いで、マイクロ波と4本のバーナーのみで焼成した



図 5-11 掛け湯壺（左）と風呂桶（右）の窯詰め状況

5-3-2-3 焼成パターン

あらかじめ測定したブロックによる製品の内部と表面温度を参考にして、焼成時間と焼成パターンを決定した。サンプルの焼成条件を従来ガス炉焼成時間と比較して表 5-5 に示す。

表 5-5 焼成サンプルと焼成条件

サンプル	材質	焼成温度	雰囲気	焼成時間（従来ガス炉焼成時間）	
花瓶	陶器	1250℃	酸化	2hr	(8hr)
碇子	磁器	1280℃	還元	9hr	(36hr)
掛け湯壺一大	陶器	1250℃	酸化	6.75hr	(36hr)
風呂桶	陶器	1250℃	酸化	8hr	(36hr)

5-3-2-4 サンプルの焼成結果

各サンプルの焼成時の焼成パターンを比較して図 5-12 に示す。

すべてのサンプルにおいて割れ・クラック等の欠点は見られず、外観性状も問題なく良好に焼成できた。焼き上がったサンプルの写真を図 5-13～5-16 に示す。また、各サンプルの焼成パターンとマイクロ波投入量の関係を図 5-17～5-20 に示す。ガス圧とマイクロ波パワーを調整することにより、あらかじめ設定した焼成パターンに従って昇温できた。

製品厚みが 10tmm の花瓶は、10tmm 以下の飲食器と同様に内部発熱による温度差が少ないためマイクロ波フルパワーで 2 時間焼成ができた。製品厚みが 40tmm 以上ある罫子・掛け湯壺・風呂桶は、800℃以上でマイクロ波の投入パワーを減少させ焼成することができた。罫子においては、950℃以上で昇温速度を上げたのでマイクロ波の投入パワーを増加した。

掛け湯壺は天井との隙間を 20mm にセッティングしたため従来ガス炉では掛け湯壺の内部に熱がまわらないが、マイクロ波ガス複合炉では自己発熱により掛け湯壺の中にも熱がまわり、均一に焼成できた。風呂桶はバーナーを 4 本（通常 8 本）にしてもサンプル内部と雰囲気温度の調整ができ均質に焼成できた。

花瓶・罫子・掛け湯壺・風呂桶は、従来ガス炉では製品内部の均熱性を保つために長時間の焼成時間が必要であるが、自己発熱と雰囲気温度の調整により焼成体内が均質加熱され、大物の短時間・省エネ焼成を実証できた。

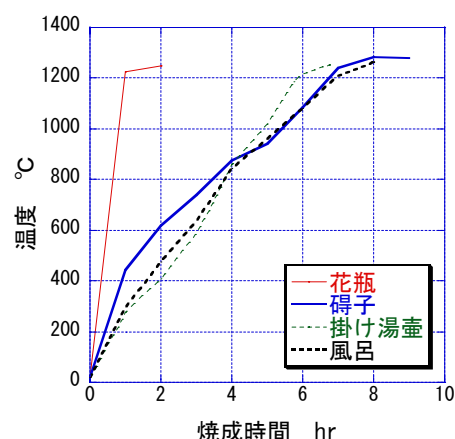


図 5-12 各サンプルの焼成パターン



図 5-13 花



図 5-14 風呂桶



図 5-15 罫子



図 5-16 掛け湯

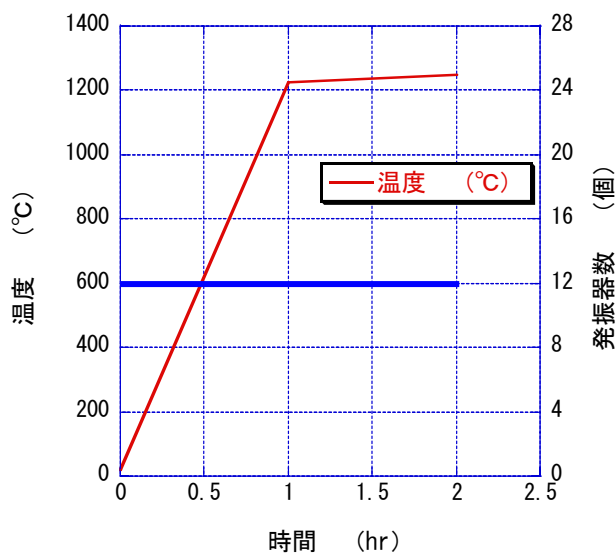


図 5-17 花瓶の焼成パターン

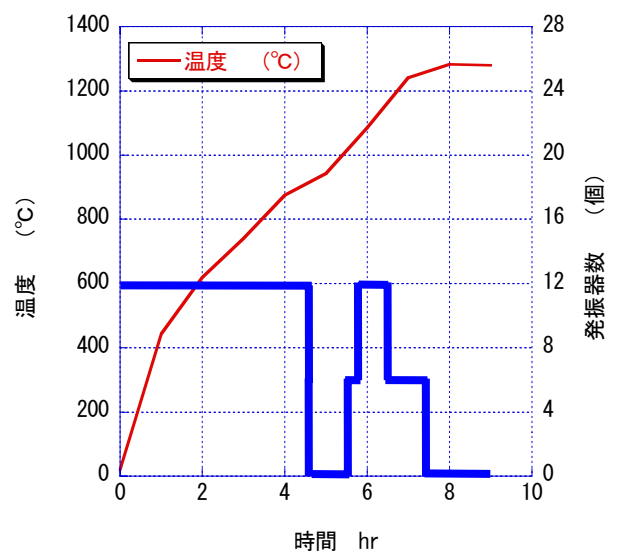


図 5-18 磚子の焼成パターン

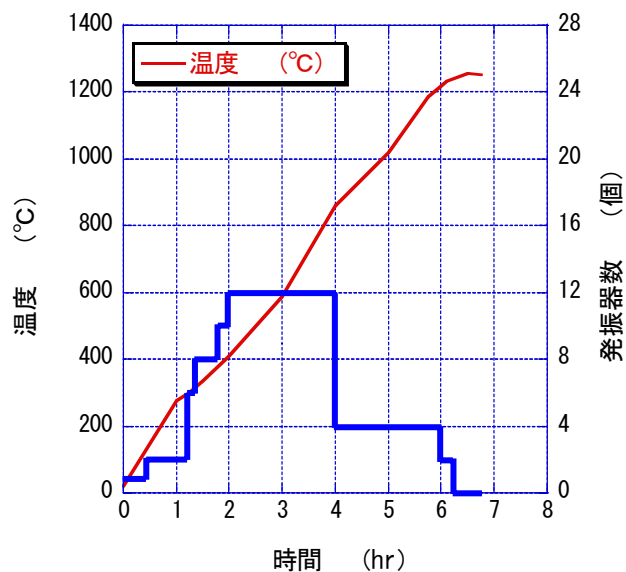


図 5-19 掛け湯壺の焼成パターン

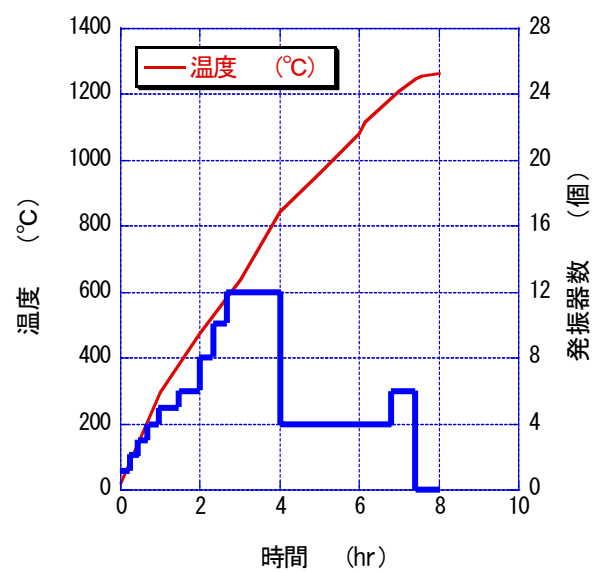


図 5-20 風呂桶の焼成パターン

5-3-2-5 焼成後の炉の状況

重量物や9時間の長時間焼成による炉の損傷もなく焼成できた。リフターを使つてのサンプルのセッティングと取り出しも可能であり問題もなかった。

掛け湯壺と風呂桶の焼成後の炉内での状況の写真を図 5-21 に示す。掛け湯壺では、天井熱電対が製品の中に入り込み温度測定結果が心配されたが、内側の釉薬の溶け状況から所望の温度で均一に焼成できた。また、風呂桶はマイクロ波と4本のバーナーのみで焼成しても、予定した焼成パターンと、均一な焼き上がりが得られた。ガス焼成の熱気が均一に炉内に回り込まなくても、サンプルの外観性状が均一に焼成できたのはマイクロ波焼成の効果である。



図 5-21 掛け湯壺（左）と風呂桶（右）の焼成後の炉の状況

5-3-2-6 結論

マイクロ波ーガス複合炉では、花瓶・大型罫子・風呂桶などの大物の焼成が短時間で可能であった。

焼成サンプルの内部温度と表面温度を測定することにより、投入するマイクロ波エネルギーとガスエネルギー量を調整することができた。これにより、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を行うことができ、均質加熱が可能となり、短時間・省エネルギー焼成を達成できた。

マイクロ波ーガス複合炉による大物の焼成時間は、従来ガス炉の 1/4 以下の 2 時間～9 時間となった。

5-4 窯詰め状況が及ぼす製品への影響

5-4-1 焼成サンプル

試験条件ができるだけ過酷となるよう、焼成サンプル・窯詰め・焼成時間を選定した。

焼成による歪みが発生しやすく、釉薬の溶けを観察しやすい磁器をサンプルとし、表 5-6 に示す小皿を評価した。小皿以外は、磁器のフリーカップを焼成した。

表 5-6 焼成サンプル

サンプル	サイズ	個数
磁器小皿ー小	φ 85×11mm	24 個
磁器小皿ー大	φ 100×13mm	8 個

5-4-2 窯詰めと焼成重量

従来ガス炉で問題が発生しやすい条件で、隣どおしの製品を接触させて並べた。また、サイズ（重量）の違いにより輻射熱の影響が出やすいようにサイズの違う皿を組み合わせ、棚板上に製品を並べ（図 5-22）、棚板の間隔が狭くなるような窯詰めを行った。（図 5-23、5-24）焼成重量を表 5-7 に示す。

表 5-7 焼成重量

品目	個数	重量
小皿一小	24 個	1.70kg (71g/個)
小皿一大	8 個	9.28kg (116g/個)
フリーカップ	290 個	65.25kg (225g/個)
棚板	39 枚	119.34kg (3060g/枚)
ツク (大)	116 個	25.75kg (222g/個)
ツク (小)	16 個	2.24kg (140g/個)
合計	—	223.56kg

注) 標準焼成時の窯重量は、217.8kg



図 5-22 小皿の並べ方



図 5-23 窯詰め—小皿



図 5-24 窯詰め—全体

5-4-3 焼成パターンと焼成温度

1340℃－3.5hr－0.5hr の還元焰焼成を行った。焼成による変形の影響が出やすいように通常より 20℃高温にて焼成し、また、裏底部の釉薬の溶けが悪くなる短いキープ時間を選択した。還元は 950℃以上で CO 濃度 3%で管理した。

5-4-4 焼成結果

棚板上に、隣同士の製品を接触させて並べた小皿は焼成により収縮したが、歪みはなく円形に焼成できた。(図 5-25) 従来ガス炉で熱のまわりが悪く歪みが発生しやすい状況で隣同士を接触させても、また、サイズ(重量)の違う製品どうしを並べても、正常に焼成できた。

小皿の裏底部の釉薬は綺麗に溶け、短時間焼成でも正常に溶けることが確認できた。(図

5-26) 同様に短時間でマイクロ波－ガス複合炉で焼成（1320℃－4hr－1hr）した磁器蕎麦猪口の裏底部の釉薬も綺麗に溶けていた。（図 5-27）従来ガス炉では、棚板との相面では熱が廻りにくく焼成時間が短いと釉薬の溶けが悪くなる傾向にある。

従来ガス炉焼成で歪みの発生や釉薬の溶けが悪くなる条件でも、マイクロ波－ガス複合炉では、マイクロ波がサンプル各々に均一に吸収され自己発熱することにより均質に焼成できた。



図 5-25 焼成後の小皿



図 5-26 小皿の裏底部の釉面



図 5-27 蕎麦猪口の裏底部の釉面

5-4-5 結論

磁器製品について積載間隔を詰めた方法で窯詰めをして短時間焼成をしても、歪みの発生はなく、裏底部の釉薬は綺麗に溶け、問題なく正常に焼き上がった。

焼成炉を食器メーカーで使用する場合には、生産変動や積載効率・生産効率を上げるために、隣同士の製品間隔を空けずに窯詰めをしたり、棚板と棚板の間隔を適切に空けずに焼成する場合がある。そのために、歪みが発生したり、製品の裏底部の釉薬がきれいな光沢面に溶けない問題が発生する。従来ガス炉で熱が廻りきらないため発生する問題点にもマイクロ波－ガス複合炉は対応できることが確認できた。

5-5 総括

マイクロ波ーガス複合炉の生産現場での実用的な可能性を拡大する実践的な評価を行い、得られた知見を以下にまとめる。

強制冷却試験

- ・マイクロ波ーガス複合炉では、1320℃－4hr－1hr 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、焼成品にヒビ・割れの発生はなく、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。
- ・本試験炉では、強制冷却のための設計はしていないので、熱気抜きを設置すれば冷却速度と操作性の向上を図ることができる。

大物焼成

- ・マイクロ波ーガス複合炉では、花瓶・大型碍子・風呂桶などの大物の短時間焼成が行えた。
- ・マイクロ波ーガス複合炉による大物の焼成時間は、従来ガス炉の 1/4 以下の 2 時間～9 時間となった。
- ・焼成サンプルの内部温度と表面温度を測定することにより、投入するマイクロ波エネルギーとガスエネルギー量を調整して、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を行うことができ、均質加熱が可能となり、短時間・省エネルギー焼成を達成できた。

窯詰め状況が及ぼす製品への影響

- ・磁器製品について積載間隔を詰めた方法で窯詰めをして 3.5 時間の短時間焼成をしても歪みの発生はなく、裏底部の釉薬は綺麗に溶け、問題なく正常に焼き上がった。
- ・マイクロ波ーガス複合炉では、従来ガス炉で隣同士の製品間隔を空けずに窯詰めをしたり、棚板と棚板の間隔を適切に空けないために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点にも対応できることが確認できた。

参考文献

- (1) マイクロ波応用技術研究会：マイクロ波応用技術、工業調査会， p122 (2004)
- (2) H. Fukushima, Y. Ishii, Y. Fukushima : Ultrahigh-speed heating of porous ceramics by microwave energy, Proc.of PACIFICHEM, 2005 Hawaii
- (3) M. Sato, H. Fukushima, et.al,: Experimental Investigation of Mechanism of Microwave Heating in Powder Metals, IRMMW2004/THz2004 Joint, Karlsruhe, Germany, 2004
- (4) H. Fukushima, “Microwave Heating System by Using Remote-Controlled Resonant Cavity”, Microwave 2004, p244-247, Takamatsu, 2004
- (5) H. Fukushima, “Rapid Heating by Single-Mode Cavity Controlled at 6GHz”, MAPEES04, 2004, Published from Elsevier Ltd
- (6) 佐藤元泰，武藤敬，居田勝巳，下妻隆，井上徳之，江崎和弘，高山定次，水野正敏，平井敏夫，島田忠：日本電磁波応用研究会第16回研究会予稿集， p18 (2000)
- (7) M.Sato et al : Insulation Blankets of 2.45GHz Microwave Sintering of Traditional Ceramics, Proc. 2nd World Congress on Microwave & Radio Frequency Processing, MWP-CE-13, Florida, 2000
- (8) 素木洋一：工業用陶磁器，技報堂出版， p280 (1978)
- (9) 高嶋廣夫：実践陶磁器の科学，内田老鶴圃， p179-190 (1996)
- (10) 素木洋一：セラミック製造プロセスⅢ、技報堂出版， p164-167 (1979)
- (11) 籠橋章，安藤英夫：高砂工業，東濃碍子：実験データ

第6章 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

地球規模での環境問題が顕在化するようになり、地球環境保全のためCO₂排出量の抑制と、エネルギー価格の高騰による省エネルギー・低コストで陶磁器を焼成する技術開発が必要とされている。

開発したマイクロ波炉について消費エネルギーの測定と焼成コストおよびCO₂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て、マイクロ波の短時間焼成により、消費エネルギーは 1/5、焼成コストは 1/2 となった。また、マイクロ波ーガス複合炉では、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炉焼成とマイクロ波ー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CO₂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。

6-1 緒言

陶磁器産業は、環境負荷低減のためCO₂排出量の抑制⁽¹⁾、エネルギー価格の高騰⁽²⁾による焼成コストの低減、個人消費の落ち込みに対する多品種少量生産と短納期対応、東南アジアをはじめとする諸外国との価格競争、顧客を満足させる品質と付加価値の創出等の様々な問題に直面している。

これまでに、マイクロ波炉・マイクロ波ーガス複合炉により、陶磁器の焼成が短時間^(3~7)で均質⁽⁸⁾⁽⁹⁾にまた品質面の向上を可能とする焼成ができることが確認できた。

本章では、従来ガス炉焼成と比較して、マイクロ波焼成における消費エネルギーの測定と焼成コストおよびCO₂排出量の算出により環境負荷の定量（LCA）を行った。消費エネルギー・焼成コスト・環境負荷についての評価を行った。

マイクロ波焼成が従来ガス炉に比べ、消費エネルギー・焼成コストに優れているだけでなく、地球環境保全に適した焼成技術であることを実証できた。

6-2 陶磁器焼成の消費エネルギー量の測定と焼成コストの算出

6-2-1 マイクロ波炉による消費エネルギー量の測定と焼成コストの算出

マイクロ波焼成の効率を確認するために、マイクロ波焼成における消費エネルギー量と従来ガス炉の消費エネルギー量を測定し比較した。酸化焰、還元焰の各々について焼成サンプルと窯道具を同一にして、表 6-1 に示す条件にて消費電力量と消費ガス量を評価した。マイクロ波炉における消費電力量は積算電力計の数値を、従来ガス炉における消費ガス量はガスメーターの数値を読みとった。

焼成炉の容量はマイクロ波炉・従来ガス炉ともに 0.15m³である。窯詰したサンプルの重量はマイクロ波炉・従来ガス炉ともに、炉内総重量 25kg（サンプル 7.5kg、棚板・ツク・コロ 17.5kg）とした。マイクロ波炉における還元焰焼成のための還元ガスは、昇温のためには使われなかったのを除外した。また、あぶりは行わなかった。従来ガス炉において、あぶり時間のガス使用量は除外した。

表 6-1 エネルギー量比較のための焼成条件

焼成炉	雰囲気	設定温度	焼成時間	サンプル	サンプル重量
マイクロ波炉	酸化	1280℃	2hr	酸化磁器ーマグカップ・ポット	7.5Kg
	還元	1360℃	2hr	磁器ーマグカップ・湯呑	7.5Kg
従来ガス炉	酸化	1230℃	8hr	酸化磁器ーマグカップ・ポット	7.5Kg
	還元	1320℃	8.5hr	磁器ーマグカップ・湯呑	7.5Kg

マイクロ波炉と従来ガス炉の消費エネルギーと焼成コストを比較した。測定したエネルギー量から次式によりエネルギー換算とコスト計算を行い、表 6-2 と図 6-1・図 6-2 に示した。ガス代は 75 円/kg (50～100 円/kg)、電気代は 13 円/kWh で計算した。

酸化焰焼成に比べ、還元焰焼成では焼成温度が高いため消費エネルギーは大きくなった。

マイクロ波の消費エネルギーは、従来炉に比べ約 1/5 となり、焼成コストも約 1/2 に低減できる。

マイクロ波炉焼成

酸化焰焼成電気エネルギー消費

電 気 代 ; 13 円 × 62kWh = 806 円

還元焰焼成電気エネルギー消費

電 気 代 ; 13 円 × 81kWh = 1053 円

ガス炉焼成

酸化焰焼成ガスエネルギー消費量

ガ ス 使 用 量 ; 7.386m³ → 7.386m³ × 3 倍 = 22.158kg

熱 量 ; 22.158kg × 12000cal/kg = 265.896kcal

消費エネルギー ; 265.896kcal × 4.2 ÷ 3600 = 310.212kWh

ガ ス 燃 料 代 ; 22.158kg × 75 円 = 1661.85 円

還元焰焼成ガスエネルギー消費量

ガ ス 使 用 量 ; 8.788m³ → 8.788m³ × 3 倍 = 26.364kg

熱 量 ; 26.364kg × 12000cal/kg = 316.368kcal

消費エネルギー ; 316.368kcal × 4.2 ÷ 3600 = 369.096kWh

ガ ス 燃 料 代 ; 26.364kg × 75 円 = 1977.3 円

表 6-2 エネルギー量比較結果

焼成炉	雰囲気	設定温度	メジャーリング 指示温度	焼成時間	消費エネルギー	焼成コスト
マイクロ波炉	酸化	1280℃	1194～1200℃	2hr	62 kWh	806 円
	還元	1360℃	1273～1290℃	2hr	81 kWh	1053 円
従来ガス炉	酸化	1230℃	1207～1245℃	8hr	310 kWh	1662 円
	還元	1320℃	1286～1324℃	8.5hr	369 kWh	1977 円

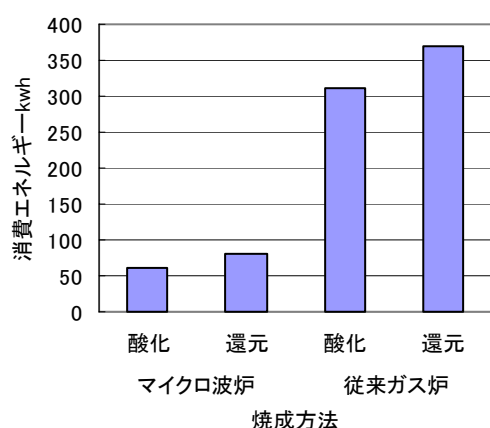


図 6-1 焼成方法と消費エネルギー

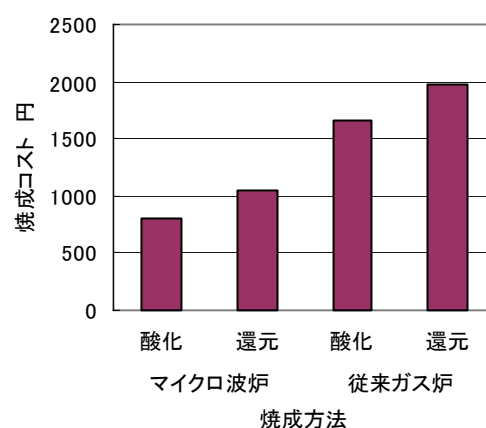


図 6-2 焼成方法と焼成コスト

6-2-2 マイクロ波炉による上絵付け焼成の消費エネルギー量の測定と焼成コストの算出

上絵付け焼成においてマイクロ波焼成の消費エネルギーを測定し、焼成コストを算出した。従来の電気炉の消費エネルギー量と比較し、消費エネルギーと焼成コストを評価した。表6-3に示す条件にて焼成を行った。

表6-3 焼成エネルギー量比較のための焼成条件

焼成炉	設定温度	焼成条件	炉サイズ	サンプル	炉内重量
マイクロ波炉	800℃	800℃-1hr-0min	0.15m ³	磁器10インチ大皿 5.5インチフルーツ	25.2Kg
電気炉	800℃	800℃-4hr-10min	0.15m ³		

上絵付焼成におけるマイクロ波炉と従来電気炉の消費エネルギーの測定結果と焼成コストを表 6-4 に示した。マイクロ波炉の消費エネルギーは、電気炉と同等になった。なお、コスト計算は次式によった。

マイクロ波炉焼成
電気炉焼成

電気代 ; 11円/kWh×31kWh=341 円
電気代 ; 11円/kWh×31.73kWh=349 円

マイクロ波炉で消費エネルギーを測定したときには、サセプター（等温断熱壁）に隙間が見られ焼成室内部の熱が外部に放熱していた。焼成時の消費エネルギー測定時には、等温断熱壁が正常で隙間がない状態で、1280℃-2hr-0min 焼成時の消費エネルギーが 62kWh であったが、等温断熱壁に隙間ができると 75kWh と約 20%消費電力が大きくなった。等温断熱壁に隙間が無い状態を想定すると、上絵付焼成の測定値も 20%程度差し引けると予想される。なお、電気炉には大きな隙間等はみられなかった。

表6-4 エネルギー消費量測定結果

焼成炉	焼成条件	消費エネルギー	焼成コスト
マイクロ波炉	800℃-1hr-0min	31KWh	341円
電気炉	800℃-4hr-10min	31.73KWh	349円

6-2-3 マイクロ波-ガス複合炉による消費エネルギー量の測定と焼成コストの算出

マイクロ波-ガス複合炉の消費エネルギーと焼成コストを測定し、従来ガス炉と比較した。表 6-5 に示す焼成条件にて酸化焰焼成、還元焰焼成を行い、焼成時の消費ガス量および消費電力量を測定した。測定された消費ガス量、消費電力量から焼成コストを算出した。焼成炉の容量はマイクロ波炉・従来ガス炉ともに 0.5m³である。炉内総重量は、マイクロ波-ガス複合炉・従来ガス炉ともに 217.8kg とした。

消費エネルギーおよび焼成コストの算出結果を表 6-6、図 6-3、図 6-4 にまとめた。マイクロ波-ガス複合炉では従来炉と比較して消費エネルギーは、1/4 以下、また、焼成コストは約 1/3 となった。ガス代は 75 円/kg(50～100 円/kg)、電気代は 11 円/kWh で計算した。

マイクロ波-ガス複合炉では、従来ガス炉に比べ還元焰焼成の消費エネルギーが従来ガス炉に比べ小さく、また、酸化焰焼成の場合と同等になる。従来ガス炉では、還元焰焼成のためにガスを不完全燃焼させながら昇温と雰囲気制御を行うが、マイクロ波-ガス複合炉では昇温をマイクロ波エネルギーにより行い、雰囲気制御はガス燃焼により行えるので効率よく昇温させることができ、消費エネルギーが小さくなった。また、ガス燃焼は雰囲気制御のために使用できるので、雰囲気調整も簡単に行えるようになる。

表 6-5 ガス複合炉評価のための焼成条件

焼成炉	サンプル	窯重量	焼成条件	雰囲気	棚板
マイクロ波 ガス複合炉	フリーカップ	217.8kg	1250℃-4hr-1hr	酸化	アルミナ
			1280℃-4hr-1hr	還元	
従来ガス炉	フリーカップ	217.8kg	1250℃-10.5hr-1hr	酸化	SiC
			1280℃-10.5hr-1hr	還元	

マイクロ波-ガス複合炉焼成

酸化焰焼成電気エネルギー消費（4 時間焼成）

電 気 代 ; 11 円×74.6kWh=821 円
 ガ ス 使 用 量 ; 5.623m³ → 5.623m³×3kg/ m³=16.869kg
 ガ ス 燃 料 代 ; 16.869kg×75 円=1265 円
 焼成コスト計 ; 821 円 + 1265 円 = 2086 円

還元焰焼成電気エネルギー消費（4 時間焼成）

電 気 代 ; 11 円×71.0kWh=781 円
 ガ ス 使 用 量 ; 5.944m³ → 5.944m³×3kg/ m³=17.832kg
 ガ ス 燃 料 代 ; 17.832kg×75 円=1337 円
 焼成コスト計 ; 781 円 + 1337 円 = 2118 円

従来ガス炉焼成

酸化焰焼成ガスエネルギー消費量（10.5 時間焼成）

ガス使用量； $26.12\text{m}^3 \rightarrow 26.12\text{m}^3 \times 3\text{kg/m}^3 = 78.36\text{kg}$

ガス燃料代； $78.36\text{kg} \times 75 \text{円} = 5877 \text{円}$

還元焰焼成ガスエネルギー消費量（11 時間焼成）

ガス使用量； $33.33\text{m}^3 \rightarrow 33.33\text{m}^3 \times 3\text{kg/m}^3 = 99.99\text{kg}$

ガス燃料代； $99.99\text{kg} \times 75 \text{円} = 7499 \text{円}$

表 6-6 マイクロ波ーガス複合炉と従来ガス炉の消費エネルギーと焼成コスト

焼成炉	焼成条件	雰囲気	消費エネルギー		焼成コスト
			電気	ガス	
マイクロ波ー ガス複合炉	1250℃－4hr－1hr	酸化	74.6 Kwh	16.87 kg	2086 円
	1280℃－4hr－1hr	還元	71.0 Kwh	17.83 kg	2118 円
従来ガス炉	1250℃－10.5hr－1hr	酸化	－	78.36 Kg	5877 円
	1280℃－10.5hr－1hr	還元	－	99.99 Kg	7499 円

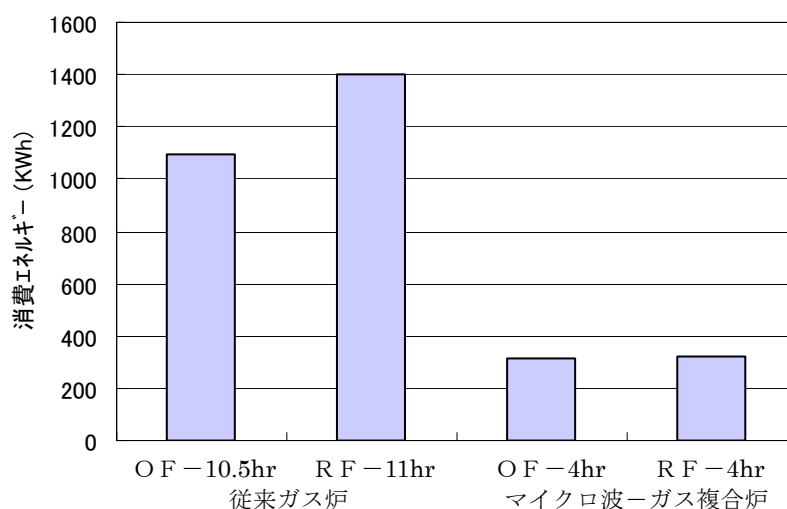


図 6-3 焼成方法と消費エネルギーの比較

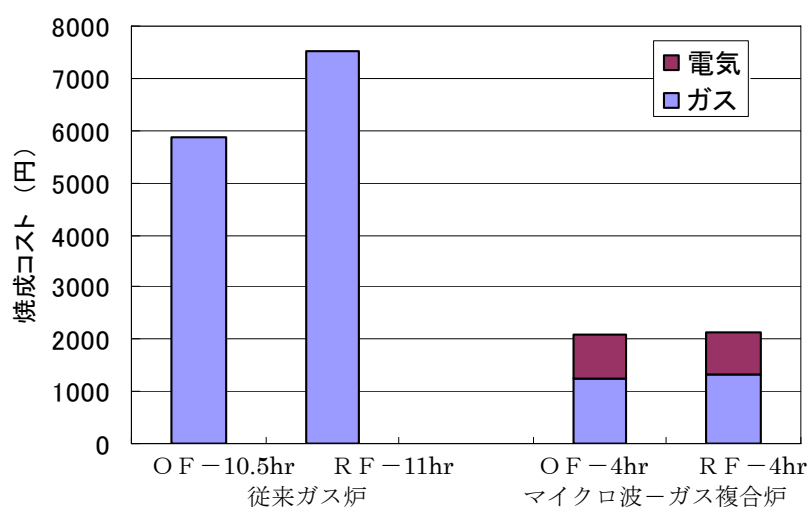


図 6-4 焼成方法と焼成コストの比較

6-3 マイクロ波焼成の環境負荷の定量－CO₂排出量の定量

6-3-1 マイクロ波炉による陶磁器焼成のCO₂排出量

マイクロ波炉の焼成に伴うCO₂排出量を求め、環境負荷の定量（LCA）を行い、従来ガス炉と比較した。

6-2-1 陶磁器焼成における消費エネルギー量の測定と焼成コストの項で、表 6-1 に示す条件にて酸化・還元焰焼成を行い、焼成時の消費電力量・ガス量を測定した。測定された消費電力量・ガス量からCO₂排出量を次式により算出した。

$$\text{CO}_2\text{排出量} = E \times k$$

E ; 焼成の消費エネルギー
k ; CO₂排出係数

CO₂排出係数は環境省の温室効果ガス排出量算定に関する検討結果総括報告書⁽¹⁰⁾ の排出係数から表 6-7 に示す値を用いた。

マイクロ波と従来ガス炉の消費ガス量と消費電力量からCO₂排出量を算出し、表 6-8 と図 6-5 にまとめた。マイクロ波では従来ガス炉と比較して、焼成により発生するCO₂排生量は1/3 以下となり、環境負荷が小さい事が実証できた。

表 6-7 焼成エネルギーのCO₂排出係数

エネルギー種	二酸化炭素排出係数
電気	0.357 kg CO ₂ /kWh
ガス	3.00 kg CO ₂ /kg

表 6-8 焼成に伴うCO₂排出量

焼成炉	雰囲気	焼成温度 メジャーリング測定	焼成時間	消費 エネルギー	CO ₂ 排出量 kgCO ₂ /kg
マイクロ波炉	酸化	1194～1200℃	2hr	62kWh	22.13
	還元	1273～1290℃	2hr	81kWh	28.92
従来ガス炉	酸化	1207～1245℃	8hr	7.39m ³	66.47
	還元	1286～1324℃	8.5hr	8.79 m ³	79.09

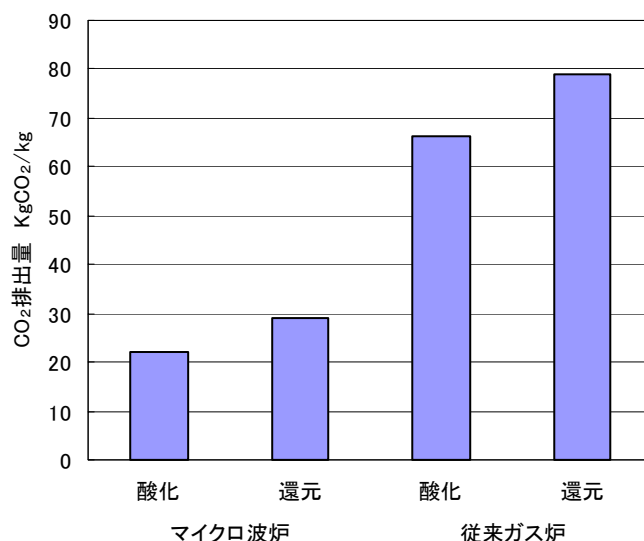


図 6-5 マイクロ波炉と従来ガス炉のCO₂排出量

6-3-2 マイクロ波炉による上絵付け焼成のCO₂排出量

上絵付け⁽¹⁾焼成において6-3-1と同様にマイクロ波炉における上絵付け焼成のCO₂排出量を求めた。従来の電気炉のCO₂排出量と比較し、環境負荷を評価した。6-2-2 上絵付け焼成における消費エネルギー量の測定と焼成コストの項で、表6-3に示す条件にて焼成を行い、焼成時の消費電力量を測定した。測定された消費電力量からCO₂排出量を算出した。

マイクロ波炉と従来電気炉の上絵付け焼成における消費エネルギーの測定結果とCO₂排出量を表6-9に示した。上絵付け焼成におけるマイクロ波炉のCO₂排出量は、電気炉と同等になった。エネルギー消費量・CO₂排出量は同等であったが、マイクロ波焼成では焼成時間が短く産業上の効果大きい。

表6-9 エネルギー消費量測定結果

焼成炉	焼成条件	消費エネルギー	CO ₂ 排出量
マイクロ波炉	800℃-1hr-0min	31.0KWh	11.1 kgCO ₂ /kg
電気炉	800℃-4hr-10min	31.7KWh	11.3 kgCO ₂ /kg

6-3-3 マイクロ波-ガス複合炉による陶磁器焼成のCO₂排出量

マイクロ波-ガス複合炉における陶磁器焼成のCO₂排出量を 6-3-1 と同様に求めた。表6-5に示す焼成条件にて酸化焰焼成、還元焰焼成を行い、焼成時の消費ガス量および消費電力量を測定した。測定された消費ガス量、消費電力量からCO₂排出量を算出した。その結果を表6-10と図6-6に示す。

マイクロ波-ガス複合炉では従来ガス炉と比較して、焼成により発生するCO₂排出量は1/3以下となり、環境負荷が小さい事が実証できた。

表6-10 マイクロ波-ガス複合炉と従来ガス炉のCO₂排出量

焼成炉	焼成条件	雰囲気	消費エネルギー		CO ₂ 排出量 kgCO ₂ /kg
			電気	ガス	
マイクロ波-ガス複合炉	1250℃-4hr-1hr	酸化	74.6 Kwh	16.87 kg	77.24
	1280℃-4hr-1hr	還元	71.0 Kwh	17.83 kg	78.84
従来ガス炉	1250℃-10.5hr-1hr	酸化	—	78.36 Kg	235.08
	1280℃-10.5hr-1hr	還元	—	99.99 Kg	299.97

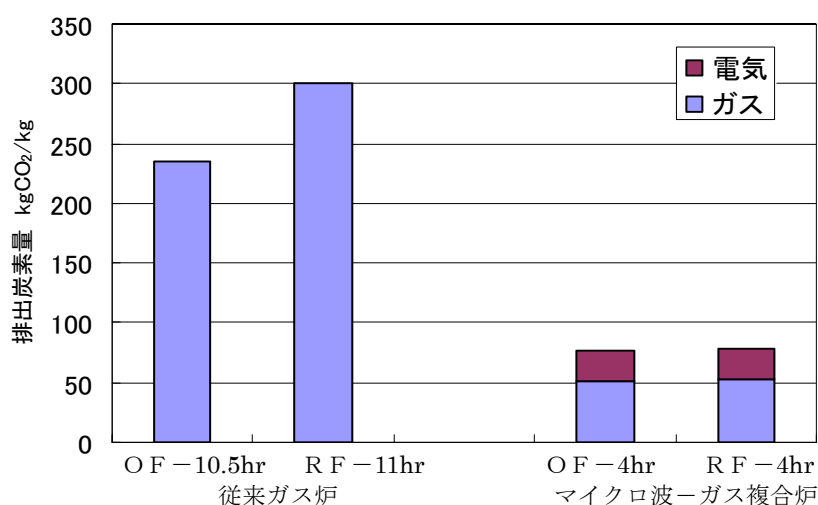


図6-6 マイクロ波-ガス複合炉と従来ガス炉のCO₂排出量

6-4 マイクロ波焼成炉のエネルギーバランスと省エネルギーの関係

マイクロ波炉と従来ガス炉との焼成時間と消費エネルギーの関係を図 6-7 にまとめる。マイクロ波炉が 2 時間焼成で消費エネルギーは 62kW、従来ガス炉が 8 時間焼成で 310kW であった。マイクロ波炉の消費エネルギー量は、従来ガス炉に比べ 1/5 となり小さくなった。

マイクロ波焼成と従来ガス炉焼成の熱収支を分析し、エネルギー消費配分を図 6-8、図 6-9 にまとめた。被焼結物の加熱のために使われたエネルギー比率は、マイクロ波焼成では全消費エネルギーの 4%・従来ガス炉焼成では 1%である。マイクロ波焼成では、マイクロ波入力電力の 40%が発振機のコレクター損失となり、サセプターの昇温と熱放散に 39%消費され、残りは窯道具の加熱と貫流熱として消費される。従来ガス炉では、48%が排気ガスとなり残りの大部分の 39%も炉壁の昇温と熱放散として消費される。

陶磁器の加熱に必要なエネルギーは、マイクロ波炉も従来ガス炉も全消費エネルギーの 1～4%にすぎず、マイクロ波焼成で消費エネルギーを低減させる要因とはなっていない。図 6-7 からわかるように、焼成時間の短いマイクロ波焼成では消費エネルギーが小さくなる。焼成のためのエネルギー消費量の差は焼成時間の差にあり、マイクロ波焼成の短時間焼成に起因している。^(1 2)

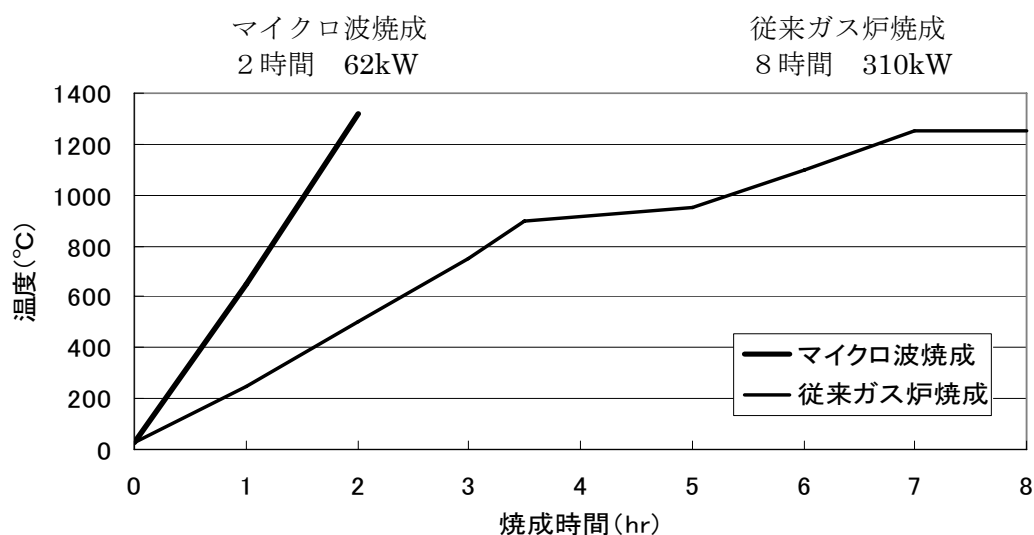


図 6-7 マイクロ波焼成と従来ガス炉焼成の焼成パターンと消費エネルギー

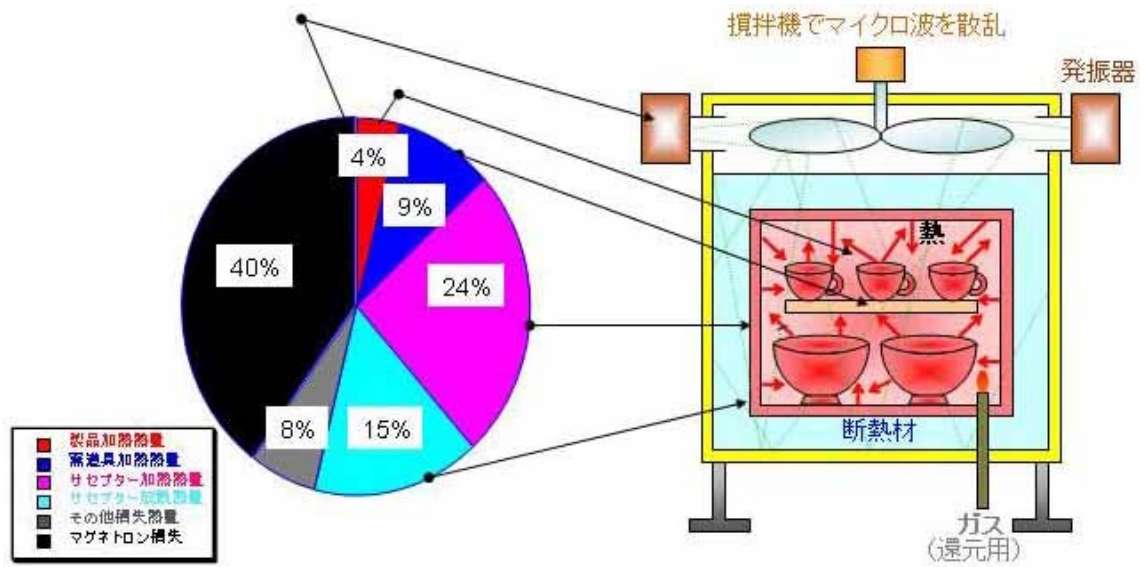


図 6-8 マイクロ波のエネルギーバランス

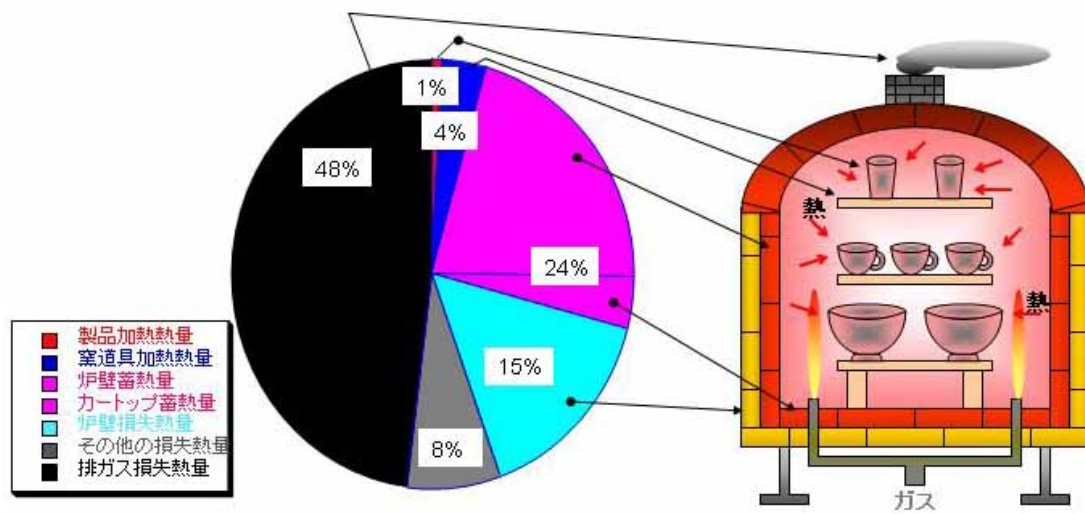


図 6-9 従来ガス炉のエネルギーバランス

6-5 CO₂排出量を基にした環境負荷低減型の炉の設計指針

これまでに、マイクロ波ーガス複合炉はCO₂排出量が小さいことを実証することができた。得られた実験データを基に環境負荷低減型の炉の設計指針を考察した。

マイクロ波ーガス複合炉でのマイクロ波とガスエネルギー比率は、4-2-4 マイクロ波ーガス複合炉の熱計算に示されるように、

$$\text{マイクロ波エネルギー} : \text{ガスエネルギー} = 10\text{kW} : 20\text{kW}$$

である。1250℃-4hr-1hr 焼成における消費エネルギーとCO₂排出量は、表 6-10 に示されるように、消費電気エネルギー74.6kW、ガス消費エネルギー16.87kgであった。

この結果とCO₂排出係数を基に、CO₂排出量と焼成時間および消費エネルギーの関係は、次式で表される。

$$\text{CO}_2 = 74.6 \times 0.357 \times x / 10 \times t / 4 + 16.87 \times 3.00 \times y / 20 \times t / 4$$

ここで、 x 、 y 、 t は、マイクロ波投入エネルギー、ガス投入エネルギー、焼成時間である。

CO₂排出量は、焼成時間とマイクロ波投入エネルギー・ガス投入エネルギーによりシミュレーションできる。CO₂排出量は焼成時間に比例することがわかり、焼成体と焼成時間に最適なマイクロ波とガスのエネルギー比率を決定すれば良いことがわかる。なお、マイクロ波ーガス複合炉では、バーナー方式をアンダーファイヤーからサイドファイヤーに改良すれば炉の上下の温度差はさらに小さくなり、短時間焼成が可能となる。焼成品質の維持と短時間・低環境負荷型の焼成が可能となる設計指針を示すことができる。

6-5 総括

マイクロ波炉焼成では、従来ガス炉焼成と比較して消費エネルギーは 1/5、焼成コストは 1/2 となった。また、マイクロ波ーガス複合炉では、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。上絵焼成においては、マイクロ波炉において従来の電気炉焼成と同等であった。

陶磁器のマイクロ波炉焼成とマイクロ波ー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、マイクロ波の短時間焼成により従来ガス炉焼成に比べCO₂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。

参考文献

- (1) 外務省：気候変動に関する国際連合枠組条約の京都議定書（1997）
- (2) 資源エネルギー庁：エネルギー白書 2005，平成 16 年度の重要事項 1.エネルギー価格の高騰（2005）
- (3) マイクロ波応用技術研究会：マイクロ波応用技術、工業調査会，p122（2004）
- (4) H. Fukushima, Y. Ishii, Y. Fukushima：Ultrahigh-speed heating of porous ceramics by microwave energy, Proc.of PACIFICHEM, 2005 Hawaii
- (5) M. Sato, H. Fukushima, et.al,: Experimental Investigation of Mechanism of Microwave Heating in Powder Metals, IRMMW2004/THz2004 Joint, Karlsruhe, Germany, 2004
- (6) H. Fukushima, “Microwave Heating System by Using Remote-Controlled Resonant Cavity”, Microwave 2004, p244-247, Takamatsu, 2004
- (7) H. Fukushima, “Rapid Heating by Single-Mode Cavity Controlled at 6GHz”, MAPEES04, 2004, Published from Elsevier Ltd
- (8) 佐藤元泰，武藤敬，居田勝巳，下妻隆，井上徳之，江崎和弘，高山定次，水野正敏，平井敏夫，島田忠：日本電磁波応用研究会第 16 回研究会予稿集，p18（2000）
- (9) M.Sato et al：Insulation Blankets of 2.45GHz Microwave Sintering of Traditional Ceramics, Proc. 2nd World Congress on Microwave & Radio Frequency Processing, MWP-CE-13, Florida, 2000
- (10) 環境庁：温室効果ガス排出量算定に関する検討結果総括報告書，平成 12 年 9 月温室効果ガス排出量算定方法検討会，平成 10 年度の排出係数（2000）
- (11) 日本セラミックス協会：セラミック工学ハンドブック，技報堂出版，p1520（1989）
- (12) 佐藤元泰，平井敏夫，水野正敏，渡辺隆，長島崇：マイクロ波工業炉の幕開け，工業加熱，Vol.40.No.3，p27-28（2003）

第7章 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

マイクロ波焼成の特性である材料毎に異なる発熱特性を活かした材料開発を行った。一度焼成した磁器はマイクロ波による発熱特性に優れているので、その磁器を粉碎して原料に利用することにより、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、CO₂排出量を抑制できる循環型環境社会に向けた材料と焼成技術の開発が行えた。

そして、同じ成分の陶磁器材料でも一度焼成すると、なぜマイクロ波吸収が大幅に強くなるのか、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、長石微粒子またはガラス微粒子それぞれの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、ソーダガラス微粒子を混合した試験片を作成し、マイクロ波により加熱される状況を、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。ソーダガラスを混合した試験片では、ソーダ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ことが確認できた。このホットスポットの温度がガラスの融点を超えれば、マイクロ波の吸収が小さく温度が低い周辺の粒子中にガラスが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。マイクロ波加熱が在来の加熱の熱源の置き換えではないことを実験的に証明したものである。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。

7-1 緒言

マイクロ波焼成では、迅速焼成^(1~4)によるエネルギー面での効率化がはかられ、実用化に向けた試みがなされてきた。しかし、マイクロ波の選択加熱の特徴を活用した材料面での焼成効率の追求までには至っておらず、効率をさらに上げる研究も必要である。

マイクロ波により短時間で陶磁器の焼成をすることができ、焼成時間の短時間化により焼成エネルギーを削減することができる。⁽⁵⁾さらに、マイクロ波では陶磁器の再生材料を使用した素地を通常より低温で焼成することができ、さらなる省エネルギー効果が期待できる。マイクロ波焼成の特性である材料毎に異なる発熱特性を活かして、材料開発と低温焼成技術開発を試みた。一度焼成した陶磁器は、焼成前の原料に比べマイクロ波による発熱特性が高い。焼成した陶磁器粉（リサイクル磁器）を陶磁器原料に混合することにより、マイクロ波の高い自己発熱により通常の焼成温度より低温で焼成できることが期待され、低温焼成材料と焼成技術について検討を行った。陶磁器廃材の再利用により短時間で低温焼成が可能となり、環境負荷低減・省エネルギー・低コストのマイクロ波焼成の特徴をさらに活かす結果を得た。

しかし、なぜ低温で焼成できるのかについての機構と材料については解明がなされていない。陶磁器の材料成分の中からマイクロ波による発熱に着目して、低温焼成に係わるメカニズムを解明しようと試みてみた。マイクロ波の選択加熱を利用して、発熱特性の良い材料の組合せにより、さらに効率よく低温で焼成できるようになる。

本章の研究は、マイクロ波加熱の原理にさかのぼって、実験によって陶磁器などの液相焼結物⁽⁶⁾のマイクロ波加熱機構を明らかにしたものである。マイクロ波焼成では、焼結物の内部まで直接にマイクロ波、即ち電磁波エネルギーが侵入し、材料のマイクロ波誘電損失を通して、電磁波エネルギーが熱エネルギーに変換される。⁽⁷⁾陶磁器の構成組織⁽⁸⁾のソーダガラス・ムライトと珪石にマイクロ波電界を印可した時の昇温速度の測定を行った。また、ソーダガラスとムライトと珪石を混合した試験片にマイクロ波電界を印加した時の昇温プロセスを、高温非平衡場観測のために核融合科学研究所で開発された「可視モニター連動型イ

メージ分光器 (Microscope Image Spectrometer ; MIS)」を用いて、In-situ に光学顕微鏡での観察^(9~16)と発光分光を行い、サーモグラフィーで温度分布を測定した。この In-situ 測定の結果、ソーダガラス粒子程度のホットスポットが、焼結物の内部に分散した状態になっていることが明らかになった。マイクロ波の選択加熱を成分・構造からの検証と、その場観察により実証することができた。在来加熱では微視的に平衡となるのに対し、マイクロ波による選択加熱では非平衡⁽¹⁷⁾となることが確認できた。このホットスポットにより低温焼成が可能となることも明らかになった。

7-2 マイクロ波による陶磁器の低温焼成

7-2-1 焼成サンプルと評価方法

本山蛙目粘土 30%とリサイクル磁器 70%を湿式混合し乾燥後、粒度 1mm アンダーに粉碎し水分率 7%に調整した後、15MPa の成型圧力で 100×30×10mm のサイズの金型でプレス成形を行った。成形体を 50×30×10mm のサイズに切断し、サンプルとした。リサイクル磁器は、予めボールミルにて 7 μ m と 20 μ m に湿式粉碎し用いた。

焼成したサンプルの吸水率測定により磁器の焼き締まりを評価した。吸水率測定は、サンプルを 110℃の乾燥機中で 3 時間乾燥させデシケーター内で室温まで除冷した乾燥重量と、サンプルを 2 時間煮沸し室温まで除冷した飽水重量を用いて、サンプルの吸水前後の重量から、次式により算出した。

$$\text{吸水率 (\%)} = (\text{吸水重量} - \text{乾燥重量}) / \text{乾燥重量} \times 100$$

7-2-2 マイクロ波による低温焼成

マイクロ波による焼成は、図 7-1 に示すマイクロ波焼成炉にて行い、サンプルの表面温度を放射温度計にて測定しながら、2.5kW の出力で室温から所定の温度まで 30 分で昇温し 5 分間温度を保持した。焼成温度は、1000℃・1050℃・1100℃とした。メジャーリングをサンプルの隣に置き、焼成時のサンプルの発熱状況を比較評価した。

また、比較試験として電気炉にて 1050～1300℃ (昇温 200℃/hr－1hr 保持) にて焼成した。

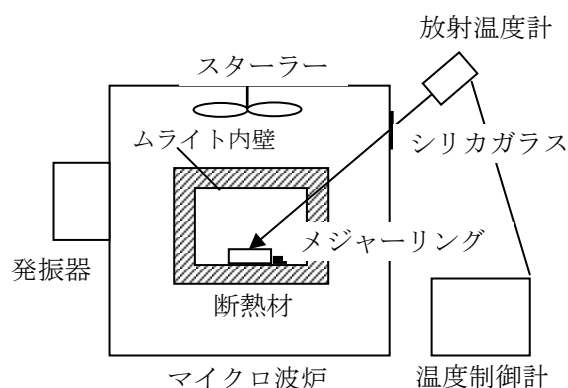


図 7-1 マイクロ波焼成炉

7-2-3 低温焼成の結果と考察

焼成したサンプルの吸水率を図 7-2 に示す。リサイクル磁器を混合したサンプルの吸水率は、1000℃では 0.93～2.42%となり焼成が進行していないが、1050℃以上の焼成温度では 0.2～0.3%と磁器化し焼結した。添加するリサイクル磁器は粒度が粗い 20 μ m より細かい 7 μ m の方が低温で焼き締まった。リサイクル磁器は細かい方が反応性が高く焼結に効果があると判断できる。一方、電気炉で焼成したサンプルでは、1280℃以上で吸水率が 0.2%となった。

また、サンプルの温度は放射温度計にて測定し同一温度となるよう制御した。メジャーリング温度の測定結果 (図 7-3) では、粒度の粗い 20 μ m の焼成で温度が高くなった。20 μ m と 7 μ m の素地では、サンプルが同じ温度になるためには 20 μ m の方がより多くのエネルギーが投入され炉内温度が高くなったことを示す。細かい 7 μ m リサイクル磁器を使用すると発熱性が高く、より小さなエネルギーで焼成が進行した。

リサイクル磁器を混合した磁器素地が通常素地より低温で焼結するのは、図 7-4 に示す磁器素地のマイクロ波による発熱試験結果からわかるように、焼成していない生の磁器素地に比べ、焼成した磁器ではマイクロ波吸収率が高くなり、より短時間で発熱するためである。

マイクロ波 2 時間焼成において、230℃の低温で焼成した場合のCO₂排出量をシミュレーションしてみる。第6章 6-3-1 で得られた 1273-1290℃-2 時間焼成時の排出量より 23.72kgCO₂/kg となり、1280℃焼成時の 18%の低減ができる。

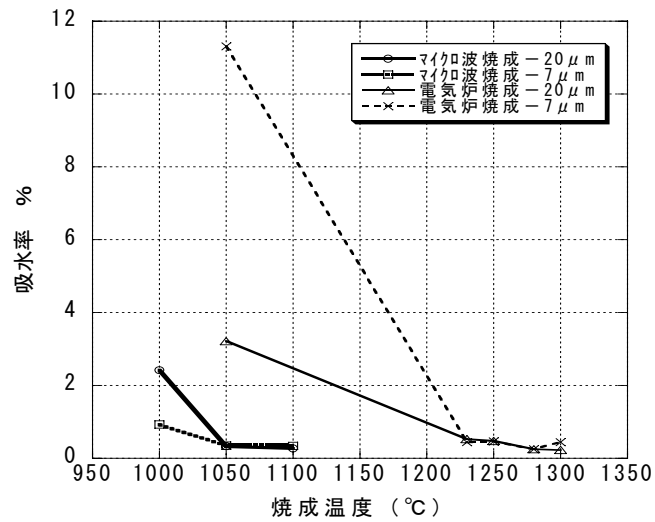


図 7-2 焼成温度と吸水率の関係

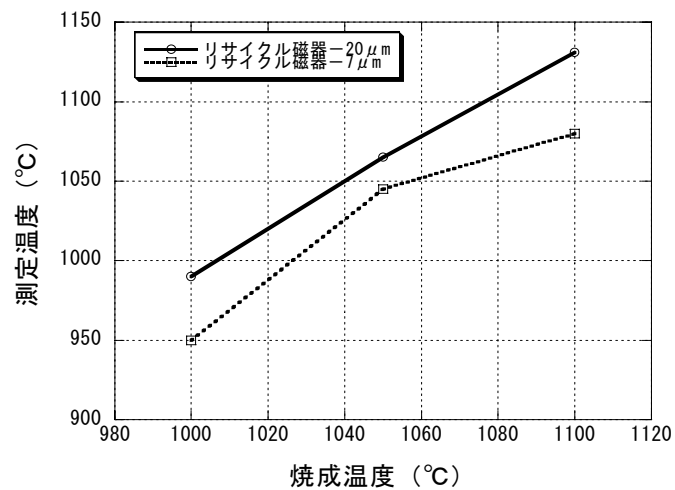


図 7-3 焼成温度とリサイクル磁器粒度の違いによる測定温度の関係

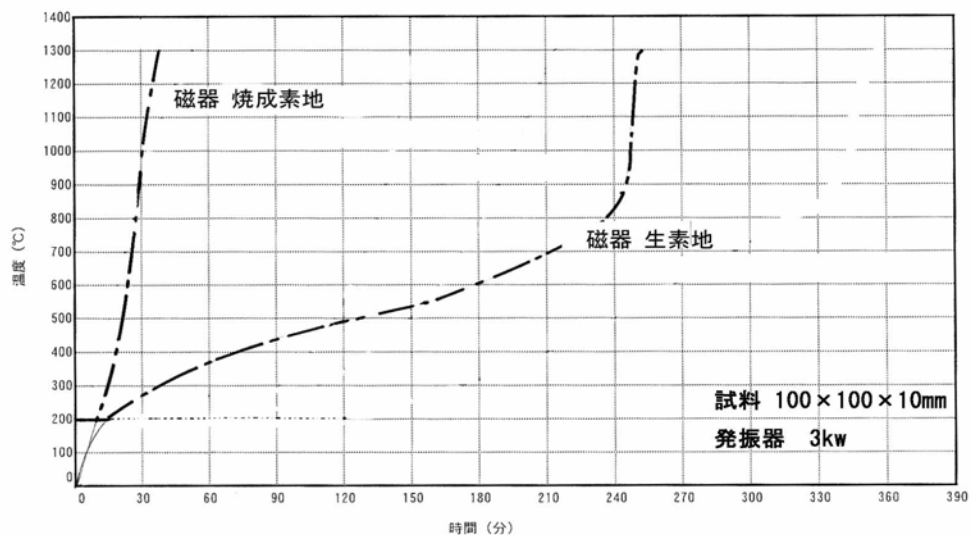


図 7-4 磁器素地のマイクロ波による発熱試験⁽¹⁸⁾

7-2-4 結 論

陶磁器のリサイクル磁器を 70%と蛙目粘土 30%の調合をマイクロ波焼成することにより、通常の焼成より 230℃低い 1050℃で陶磁器の低温焼成が可能となった。リサイクル磁器は生産工程から排出される不良品を再利用でき、また、特殊な原料を用いることもなく通常の粘土と既存生産設備の使用が可能⁽¹⁹⁾である。この焼成技術は、CO₂排出量・焼成エネルギー・焼成コストの低減等のマイクロ波焼成の特徴⁽²⁰⁾をさらに活かした高い省エネルギー効果が期待でき、環境社会・価格競争に対応できる焼成技術である。

7-3 選択加熱の観察による迅速焼成のメカニズム解明の実験の原理

7-3-1 マイクロ波加熱におけるエネルギー吸収と輸送

熱伝導方程式をマイクロ波加熱の過程に適用すると以下ようになる。⁽²¹⁾

$$\begin{aligned} \partial\theta_1 / \partial t = & \kappa_1 (\partial^2\theta_1 / \partial x^2 + \partial^2\theta_1 / \partial y^2 + \partial^2\theta_1 / \partial z^2) \\ & - \sigma (\theta_1^4 - \theta_2^4) \\ & + 2\pi f (E^2/2) \sum (1/c_i \rho_i) \varepsilon_i \tan \delta_i \end{aligned}$$

ここで、 θ 、 κ 、 σ 、 f 、 E 、 c 、 ρ は、それぞれ温度、熱伝導率、ステファンボルツマン定数、マイクロ波周波数、電界強度、比熱、密度を示し、サフィックス 1, 2 は製品と炉壁を表す。左辺は、焼結物に蓄積されるエネルギーあるいは昇温速度、右辺第 1 項は、焼結物内部でのマクロな熱伝導、第 2 項は焼結物表面からの放射熱損失、第 3 項がマイクロ波によるエネルギー入力である。マイクロ波加熱を特徴付けるのは、第 2 項の符号が逆、つまり炉壁などの外部からの熱入力に替わって熱放散になっていること、その代換えとして、マイクロ波による加熱の第 3 項、 $\varepsilon_i \tan \delta_i$ がある。特に、陶磁器は多成分系⁽⁸⁾⁽²²⁾であるから、各成分の総和 Σ をとる。サフィックス i は第 i 成分のマイクロ波吸収率を示している。本研究の基本は、各成分のマイクロ波吸収率を成分単体あるいは混合状態で実験的に調べることにある。単独の吸収と混合状態での吸収の差を調査し、ミクロな熱伝導による内部のその結果を使って、生の磁器とリサイクル磁器のマイクロ波による昇温速度が異なる機構を明らかにし、マイクロ波焼成のための陶磁器素材の最適化設計をおこなうことにある。なお、厳密にミクロなスケールで考えるならば、上式第 1 項も、各成分の総和を空間積分の形で採るべきであるが、ここでは、ミクロな温度分布は無視して、平均温度として θ_1 を定義している。

本研究では、素地単体およびその混合物を作製し、マイクロ波炉に投入して上式の左辺にあらわれる昇温速度の違いを測定した。実験条件を可能な限り揃えるために、第 1 項に現れる焼結物の寸法形状、第 2 項を支配する断熱材の材質・寸法形状、および第 3 項の E に関連するマイクロ波電力を一定にして、横軸にマイクロ波照射時間、縦軸に焼結物表面の平均温度をとってプロットしている。また、上式の昇温速度の違いを比較することにより、材料の誘電損失の大きさを比較した。

具体的には、リサクル磁器を使うと焼成速度が速くなる結果より、陶磁器原料として生の磁器をベースにリサイクル磁器が焼成速度に与える影響を調べた。生の磁器とリサイクル磁器を混合し、その混合比率を変えて発熱速度を測定した。次に、焼成した磁器の構成組織のムライト・珪石とガラスの中で、何が発熱速度に影響を与えるのかを調べるために、それぞれの発熱速度を測定した。また、陶磁器成分の一つであるナトリウム⁽²³⁾が与える影響について、磁器のガラスに溶け込んだ場合にその添加量の影響を調べた。

7-3-2 その場観察による選択加熱の観察方法

マイクロ波の 2.45GHz の基本モードの長方形キャビティの TE103 モードの電界最大点にテストピースを設置⁽²⁴⁾し、加熱状況を In-situ で観察すると同時に、分光分析により温度分布測定を行った。光学顕微鏡の光軸と同じ光軸に半透明ミラーを挿入し、像を顕微鏡と分

光器に導き測定した。このレンズ分光器は2次元空間を測定できる構造を持っている。顕微鏡画像と分光画像とを重ねることによって、目視と分光という定量分析を同時に行うことができる装置である。740nmの波長を分光分析し、スペクトルにプランクの黒体輻射式を使い、サンプル表面の $0.96 \times 1.24\text{mm}$ の範囲の温度分布測定を行った。^(25~28)

また、放射温度計によりサンプル表面の平均温度を $\phi 3\text{mm}$ の範囲で測定した。分光分析装置を図7-5、図7-6に示した。

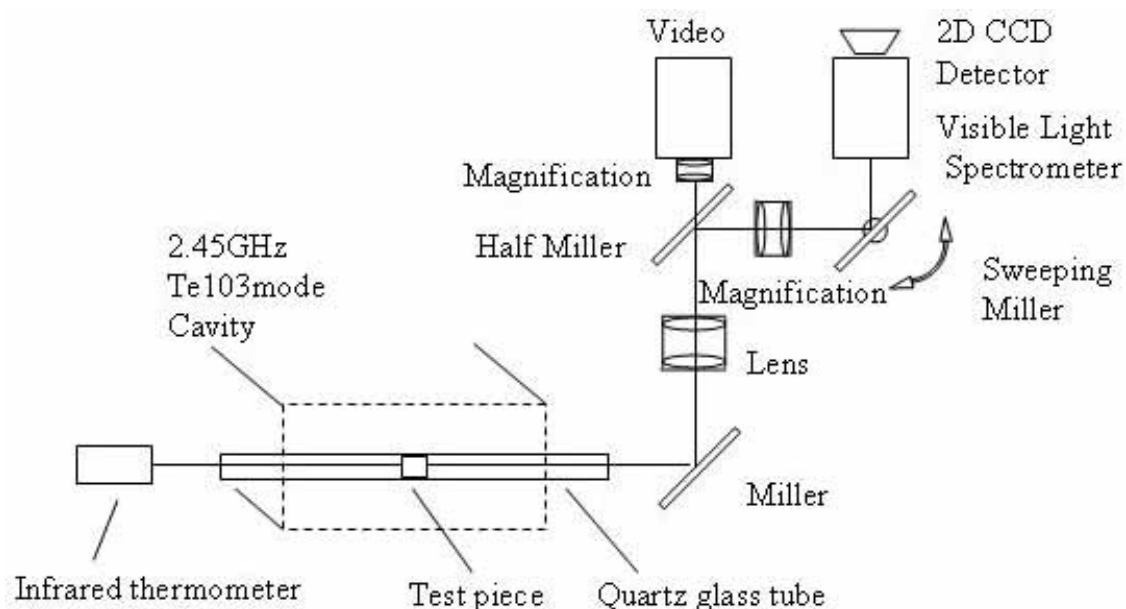


図 7-5 分光分析装置図の概略

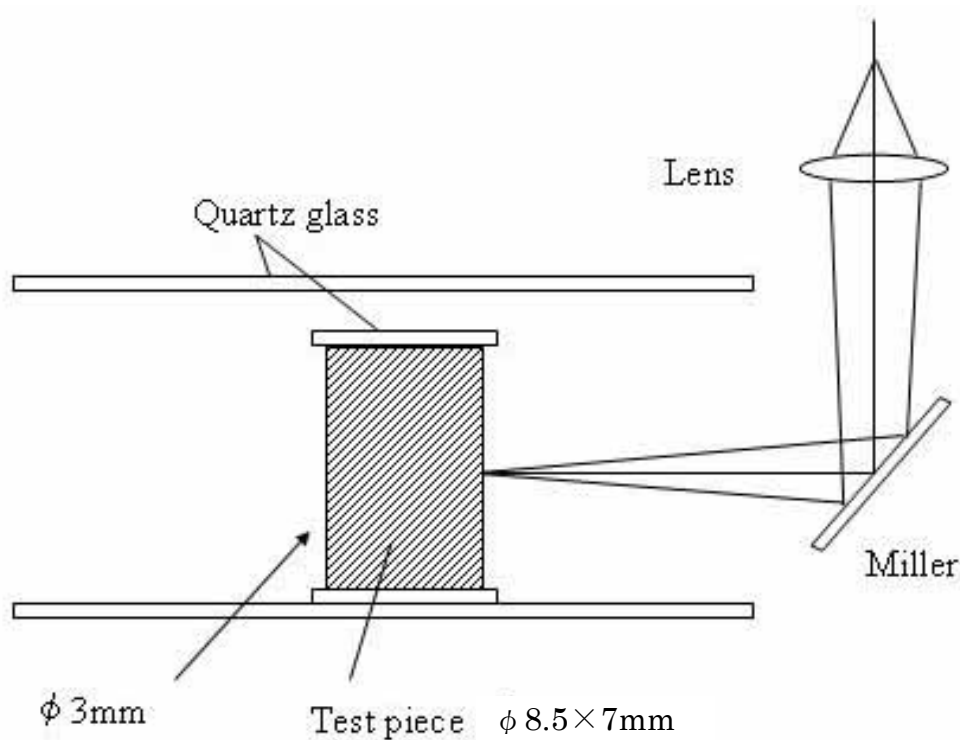


図 7-6 分光分析装置図の詳細

7-3-3 マイクロ波加熱装置の概略

多重反射式のマイクロ波焼成炉⁽²⁹⁾で、室温から 1000℃まで加熱し、加熱に要する時間を測定した。炉内に断熱材に入れたテストピースを設置し、放射温度計にてテストピース表面の温度を測定した。2.45GHz のマイクロ波発振器 3 台で出力は 7.5kW である。マイクロ波焼成炉を図 7-7 に示した。

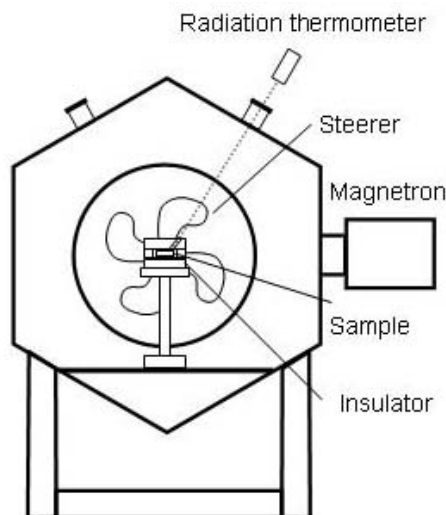


図 7-7 多重反射式マイクロ波炉の構造

7-3-4 テストピースの選定

マイクロ波加熱のテストピースとして、磁器とその原料の長石・珪石・粘土、および磁器の構成組織であるソーダガラス⁽²³⁾・ムライト・珪石を選んだ。磁器については、焼成のために調合された“生の磁器”と、その生の磁器を 1250℃で酸化焼成し粉碎したパウダーを”リサイクル磁器”として使用した。また、マイクロ波による加熱速度に影響を与える成分として、磁器原料の長石に含まれるナトリウムの成分比を変化させた。

磁器の原料は、長石・珪石・粘土である。粘土は、成形のために使用した。焼成により、長石と珪石は熔融してガラスになり、粘土はムライトとガラスになる。⁽³⁰⁾最終的にはガラス相がムライトと溶け残った珪石の隙間を埋めて焼成が完了する。^(31~33)磁器の微構造は、非晶質のソーダガラスと結晶構造を持つムライトと珪石よりなる。このように、磁器は焼成により新しい組織が生成される。また、長石には、ナトリウムやカリウムなどのアルカリ金属が含まれる。⁽²³⁾

7-4 マイクロ波による磁器の迅速焼成へのリサイクル磁器とアルカリ金属の影響

7-4-1 磁器素地の発熱特性の測定

マイクロ波焼成において、表 7-1 に成分を示すリサイクル磁器が発熱特性におよぼす影響を測定した。表 7-2 の No.1~6 に示す調合により、焼成前の生の磁器とリサイクル磁器の混合比の違いによる発熱特性を測定した。リサイクル磁器は、平均粒径 4.1 μm に粉碎して使用した。サンプルは、蛙目粘土により 35×35×10tmm (20g) に成形を行い、乾燥して用いた。外寸 80×80×60tmm・内寸 40×40×20tmm のアルミナシリカ質の断熱材容器に入れ、図 7-7 に示す多重反射式マイクロ波炉にて加熱した。

表 7-1 磁器素地の成分

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Na ₂ O	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	K ₂ O
磁器	70.8	23.8	1.26	0.28	0.08	0.36	0.39	2.90

表 7-2 サンプルの調合 wt.%

No.	蛙目粘土	リサイクル磁器	生の磁器	ナトリウム
1	25	75		0.96
2	25	50	25	0.96
3	25	25	50	0.96
4	25		75	0.96
5			100	1.26
6	100			0.25
7	25	75		1.56
8	25	75		2.16
9	25	75		2.76

磁器素地の発熱特性の測定結果を図 7-8 と図 7-9 に示す。図 7-8 では横軸にマイクロ波照射時間、縦軸に焼結物表面の平均温度をプロットした。図 7-9 では横軸に温度を縦軸に昇温速度をプロットして、7-3-1 の熱伝導方程式の左辺の昇温速度を比較した。

リサイクル磁器を 75% 含む素地は 1000℃ まで 999 秒で発熱し、50% 含む素地では 1357 秒で発熱し、25% 含む素地では 1814 秒で発熱した。リサイクル磁器を多く含む素地ほど、温度勾配が大きく発熱が速くなった。リサイクル磁器はマイクロ波吸収特性が高く、誘電損失が大きいことが確認できた。リサイクル磁器の温度測定では、600℃ 以上でランナウェイが発生するので、それ以下の温度について考察を行った。

焼成前の生の磁器は 439℃ まで発熱したが、1000℃ まで昇温しなかった。同様に、生の磁器と蛙目粘土の混合素地は、451℃ までしか発熱しなかった。また、蛙目粘土の単体は、306℃ までしか発熱しなかった。

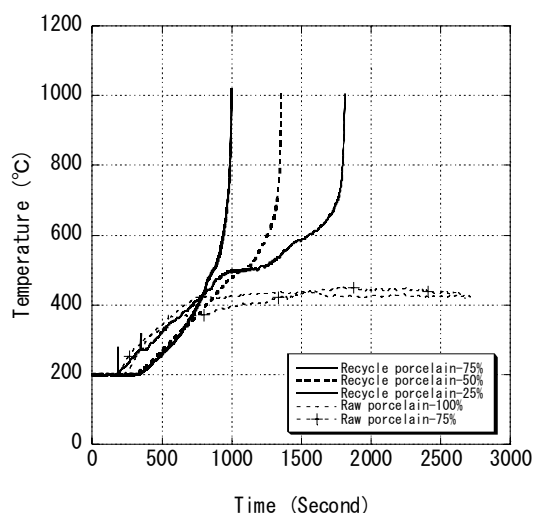


図 7-8 マイクロ波照射時間と発熱温度との関係

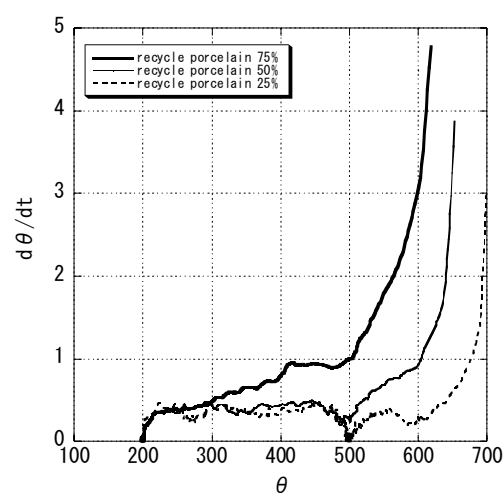


図 7-9 温度と昇温速度の関係

7-4-2 磁器構成材料と原料の発熱特性の測定

陶磁器の構成組織であるソーダガラス、ムライトと珪石およびソーダガラスの原料の長石を、外寸 80×80×60mm・内寸 40×40×20mm のアルミナシリカ質の断熱材に粉末の状態でそれぞれ 20g 入れ、図 7-7 に示す多重反射式マイクロ波炉にて加熱した。ソーダガラスとその原料の長石の成分は、SiO₂ 35.69%, Al₂O₃ 17.63%, Na₂O 10.08%, CaO 0.55%である。温

度測定用の放射温度計の温度測定範囲は、ソーダガラス・長石用の測定では 200～1700℃用を用い、ムライトと珪石用は 0～400℃用を用いた。

図 7-10 に、ソーダガラスとムライト・珪石・長石の発熱特性をまとめる。横軸にマイクロ波照射時間を、縦軸に試験片表面の平均温度をプロットした。ソーダガラスは、242 秒で 1000℃まで昇温した。また、珪石・ムライトと長石には 200℃以上の発熱はみられなかった。

ムライト・珪石と長石は 200℃以上発熱しなかったことと、また、7-3-1 で確認できたように成形のために使用した蛙目粘土も 306℃までしか発熱しなかったことより、磁器の構成組織のソーダガラス相が選択的にマイクロ波を吸収して発熱することが確認できた。

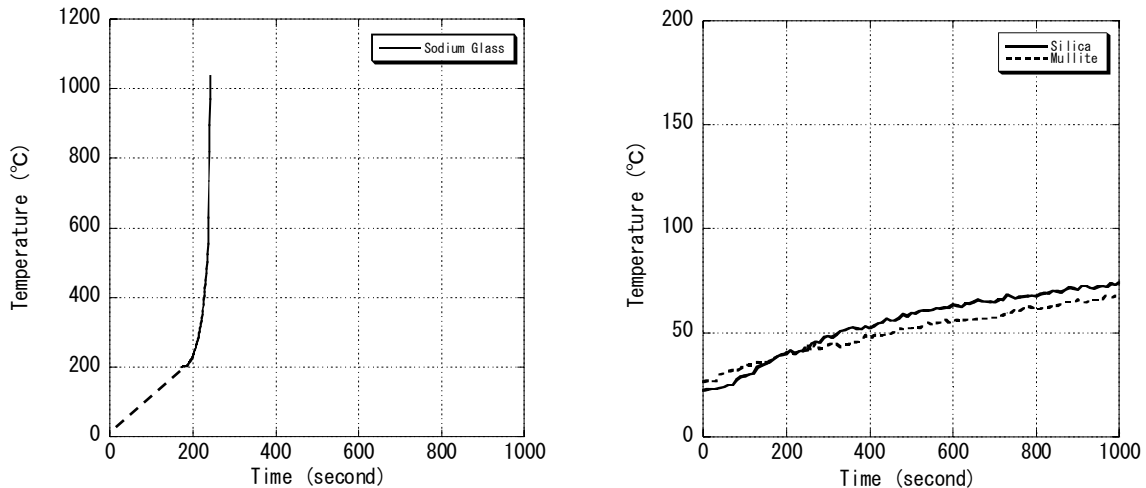


図 7-10 ソーダガラスと磁器構成材料へのマイクロ波照射時間と発熱温度の関係
ソーダガラスの原料の長石には、200℃以上の発熱は認められなかった。

7-4-3 発熱特性へのナトリウムの影響

マイクロ波焼成において、ナトリウムが磁器素地の発熱特性におよぼす影響を調べた。表 7-2 に示す No.7～9 の調合により磁器素地へのナトリウムの添加による発熱特性への影響を測定し、ナトリウムを外部添加していない No.1 と比較した。ナトリウムの添加の仕方は、生の磁器に所定量を添加し 1250℃で酸化焼成し粉碎してリサイクル磁器として用いた。ナトリウムは過炭酸ナトリウム $\text{Na}_2\text{CO}_3 \cdot 1.5\text{H}_2\text{O}_2$ を水に溶かし調合した。サンプルの作成方法とマイクロ波による加熱方法および温度測定方法は、7-4-1 と同様に行った。

また、磁器の構成組織であるムライトと珪石へのナトリウムの添加による発熱特性への影響を調べた。ムライトと珪石それぞれの粉末に 1.2%のナトリウムを湿式で混合して、外寸 80×80×60tmm・内寸 40×40×20tmm のアルミナシリカ質の断熱材に粉末の状態で 20g 入れ、図 7-7 に示す多重反射式マイクロ波炉にて加熱し、7-4-1 と同様に発熱特性を測定した。

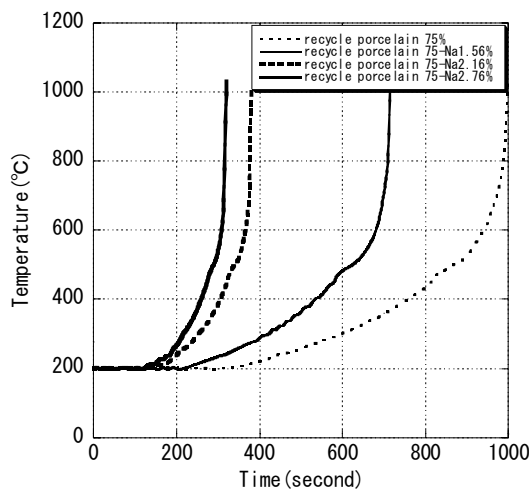


図 7-11 マイクロ波照射時間と発熱温度との関係

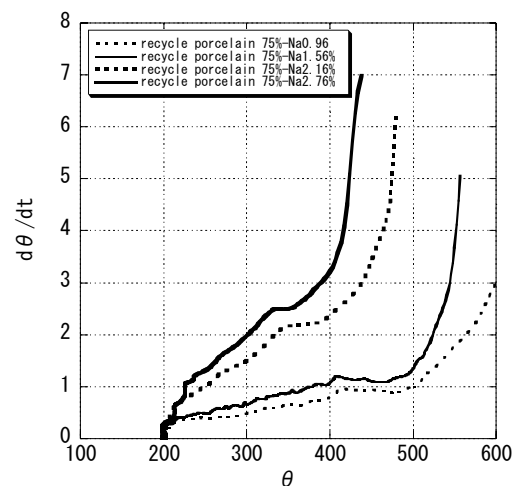


図 7-12 温度と昇温速度の関係

ナトリウムを添加したリサイクル磁器のマイクロ波による発熱特性を図 7-11 に示す。横軸にマイクロ波照射時間、縦軸に試験片表面の平均温度をとってプロットした。また、図 7-12 では横軸に温度を縦軸に昇温速度をプロットして、7-3-1 の熱伝導方程式の左辺の昇温速度を比較した。生の磁器にナトリウムを混合して 1250℃で焼成したリサイクル磁器を添加すると、ナトリウムを添加しない場合に比べ 28～68%昇温速度は速くなった。ナトリウムの添加量が多いほど昇温速度は速くなり、マイクロ波吸収特性が高く、誘電損失が大きいことが確認できた。

また、磁器成分であるムライトと珪石へのナトリウムの添加による発熱特性への影響はみられなかった。

7-4-4 考 察

7-2 の低温焼成で示したように、同じ成分の陶磁器材料でも一度焼成すると、なぜマイクロ波吸収が大幅に強くなるのかを磁器の成分と構成組織について検証を行った。

表 7-2 の調合 No. 1 ～4 において、磁器素地の割合と含有するナトリウムの量は同一であり、生の磁器とリサイクル磁器の割合が異なる。リサイクル磁器が多く含まれるほど、発熱速度が速くなった。また、磁器成分のソーダガラスの発熱が速く、ムライトと珪石は発熱しないことが確認できた。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、焼成すると熔融してガラス化する。生の磁器には含まれていないソーダガラスがリサイクル磁器には含まれている。このソーダガラス成分が発熱速度に影響を与えており、ナトリウム量が多いほど発熱が速かった。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、加熱速度の差を測定することによって検証できた。

7-4-5 結 論

磁器の再生材料を使用して、マイクロ波による低温焼成を可能にする要因を検証した。磁器の再生材料であるリサイクル磁器と、磁器成分の一元素のナトリウムの添加量、および磁器の構成組織について、マイクロ波による発熱特性を評価した結果、以下のことが判明した。

- ① リサイクル磁器を含む再生磁器は、リサイクル磁器が多く含まれるほど発熱速度が速かった。
- ② リサイクル磁器を含む再生磁器は、ナトリウムが多く含まれるほど発熱速度が速かった。
- ③ 焼成前の生の磁器は 439℃までしか発熱しなかった。
- ④ 生の磁器と蛙目粘土の混合素地は、451℃までしか発熱しなかった。
- ⑤ 陶磁器原料の蛙目粘土は、306℃までしか発熱しなかった。
- ⑥ ムライトと珪石には、200℃以上の発熱はみられなかった。
- ⑦ リサイクル磁器の構成組織のソーダガラスが発熱することが確認できた。
- ⑧ ソーダガラスは、同じ成分であっても焼成前の結晶状態と焼成後のガラス化後では、電磁波の吸収に大きな差が確認できた。

7-5 マイクロ波の選択加熱によるその場観察

7-5-1 その場観察による温度分布の測定

磁器の構成組織であるソーダガラス・ムライトと珪石を 1 : 1 : 1 で混合し、図 7-5、7-6 に示す装置にてマイクロ波加熱を行い、サーモグラフィーにより温度分布を測定した。ソーダガラスの成分は、SiO₂ 35.69%, Al₂O₃ 17.63%, Na₂O 10.08%, CaO 0.55%である。その粒度は、250～500 μm である。ムライトと珪石の平均粒度は、それぞれ 3.7 μm、3.3 μm である。

また、表 7-1 に成分を示すリサイクル磁器による測定も行った。リサイクル磁器と蛙目粘土を 1 : 1 の比率で混合し、φ 6mm×8mm に成形後、乾燥してサンプルとした。リサイクル磁器の粒度は、250～500 μm と平均粒径 4 μm の 2 種類について比較を行った。観察エリ

アのサイズは $1.24 \times 0.9 \text{ mm}$ であり、 128×99 のメッシュに分割されている。その分解能は約 $10 \mu\text{m}$ である。サンプリングタイムは、1 フレーム 10 秒で行った。

ソーダガラス・ムライトと珪石の混合物をマイクロ波加熱した結果を図 7-13 に示す。図 7-13 a) 図の顕微鏡写真で珪石とムライトの微粒子の中に、約 $500 \mu\text{m}$ のガラス粒子が外形とサイズで識別でき、その様子を図 7-13 b) に示す。

図 7-13 c) と図 7-13 d) の分光分析によるサーモグラフィーにより、赤い点は温度の高く、青い範囲は低い部分に相当する。7-4-2 で確認されたようにソーダガラスは発熱し、ムライト・珪石は発熱しなかったことにより、図 7-13 a) に見られるソーダガラスの粒子が選択的にマイクロ波を吸収して発熱し、約 300°C 高いことが確認できた。テストピースの内部にガラス粒子のホットスポットが存在し、マイクロ波による選択加熱が実証できた。ホットスポットは数秒間存在し、新たな点に新しいホットスポットが出現する。図 7-13 c) と図 7-13 d) の異なったサンプリングタイムのサーモグラフィーで見られるように、赤い点はガラス粒子にのみ確認できる。また、図 7-14 の加熱中の可視画像にみられるようにホットスポットは一定の場所に出現し、移動は認められなかった。マイクロ波はソーダガラスを選択的に加熱し、熱エネルギーはソーダガラスから珪石とムライトに伝熱する。

テストピースのエネルギーバランスを考察する。加熱後のテストピースの写真を図 7-15 a) に示し、テストピース全体のエネルギーの流れのイメージを図 7-15 b) に、ホットスポットのエネルギーの流れのイメージを図 7-15 c) に示す。

まず、ミクロな熱的非平衡な状況でのエネルギーバランスを考察する。 $1.24 \times 0.9 \text{ mm}$ の面積のエネルギーバランスはサーモグラフィーの分析結果により推定される。観察面積のエネルギー損失は、各メッシュの温度データの合計で表される。

$$\Delta E = \sigma \sum \Delta s_{ij} T_{ij}^4 \quad (1)$$

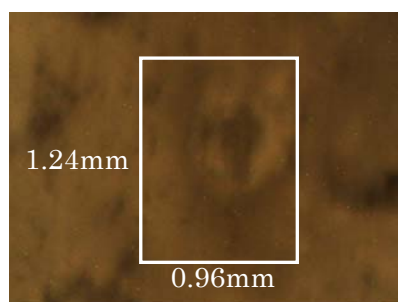
ここで、 ΔE 、 σ 、 Δs 、 T は、熱放散ロス、ステファンボルツマン常数、1 メッシュの面積、温度と、サフィックス i 、 j はそれぞれマトリクスを表す。

テストピース全体において均一と仮定すると、 $1.24 \times 0.9 \text{ mm}$ の面積で推定された部分的なエネルギーバランスは、テストピース全体に推定される。全体的なエネルギー損失は、式 (1) に $S/\Delta s$ (S は全表面積) の面積比をかけて次式により推定される。

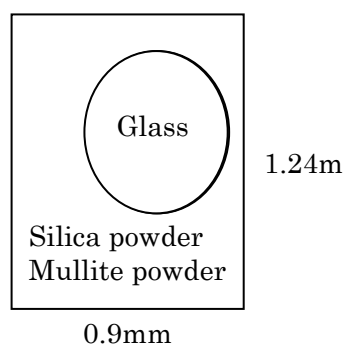
$$E = \sigma \sum s_{ij} T_{ij}^4 \times S/\Delta s = 40.6 \text{ W} \quad (2)$$

一方、図 7-14 に示されるようにディレクショナルカプラーにより測定されたテストピースへの入力パワーは 41.5 W である。ミクロな熱的非平衡の状態から求めたテストピースからのエネルギー損失は、マクロなスケールでのエネルギー入力に良く一致する。

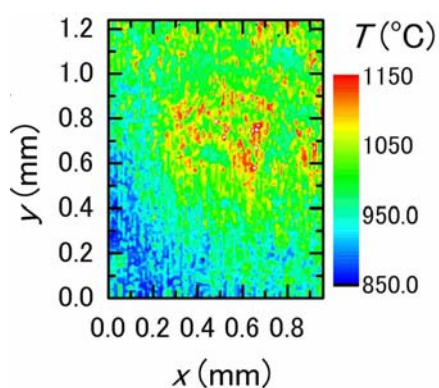
テストピースの平均温度とホットスポットの微構造の関係を考察する。サーモグラフィーのマトリクスの平均温度は 990.7°C と計算される。しかし、従来加熱による焼成の温度より低く、マイクロ波焼成は低温で液相焼結が進行する。ソーダガラスのホットスポットは、その融点より高い 1122°C 以上に加熱され、他の粉末はガラスより低い温度で保たれる。ガラス粉末は局所的に溶解し、珪石とムライト粉末の粒界を埋める。これが、ホットスポットがガラス粒子の中を動く理由であり、また、マイクロ波による低温焼成のメカニズムである。言い換えるとマイクロ波による発熱特性の良いソーダガラス相が素地中に一様に分散しているので、焼結物の内部にミクロなヒーターを一様に散りばめたイメージとなる。ミクロスケールの選択機構が全体に一様に存在しているので、体積的に迅速に昇温できる。熱伝導によってガラス (液相) から固相に熱は伝わるが、液相の昇温速度がこのミクロな熱放散を凌駕していれば、固相成分は液相よりも低温となり製品全体の平均温度は低下する。このホットスポットの温度がガラスの融点を超えれば、マイクロ波の吸収が小さく温度が低い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、磁器の焼結温度は液相の発生温度で決定されるため、液相焼結が進行し低温で迅速な焼成が可能となる。



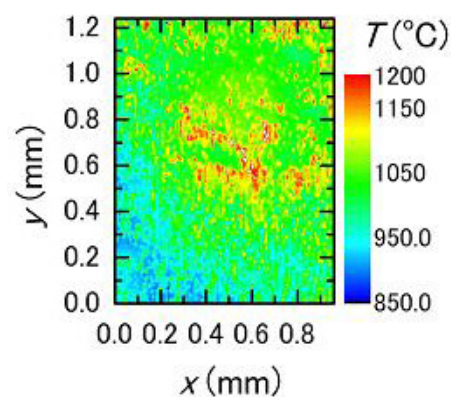
a) 常温の顕微鏡写真と観察範囲



b) 観察範囲のガラス・珪石とムライト



c) 観察範囲のサーモグラフィー (サンプリング-1)



d) 観察範囲のサーモグラフィー (サンプリング-2)

図 7-13 ソーダガラスの選択加熱

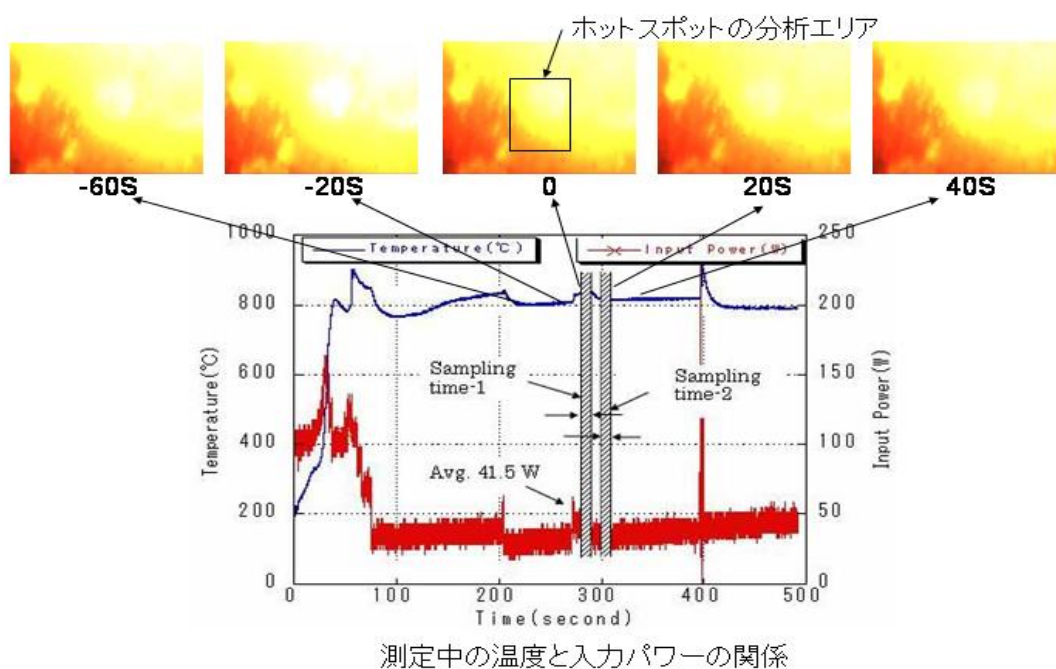


図 7-14 ホットスポット測定中の温度とサンプルへの入力パワーの関係と加熱中の顕微鏡写真

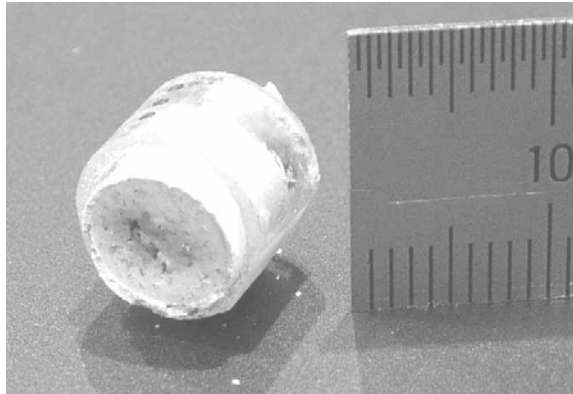


図 7-15a) 加熱後のサンプル

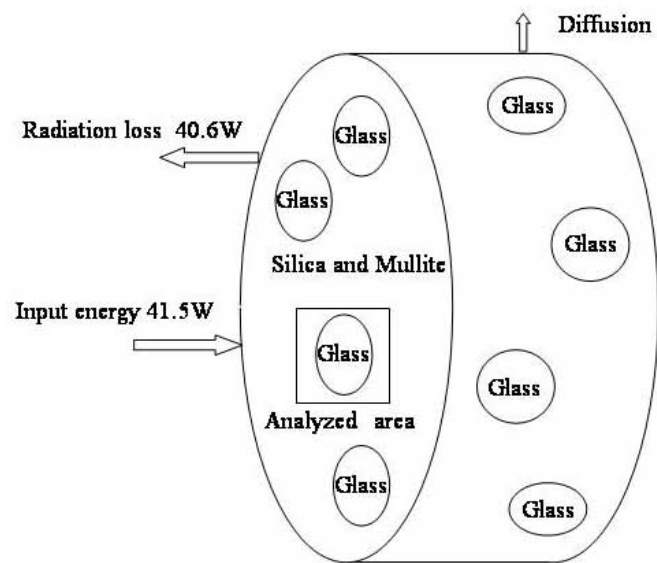


図 7-15b) サンプル内での熱収支のイメージ

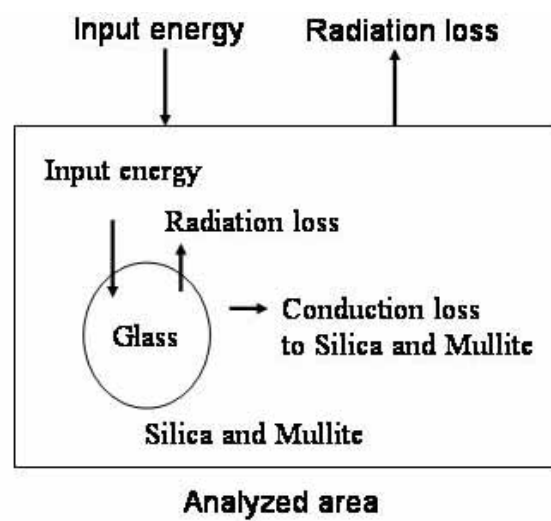
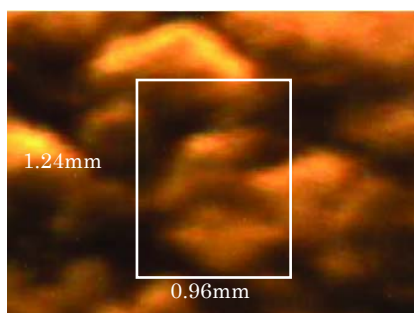
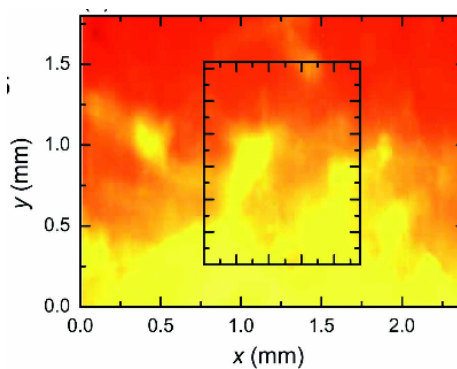


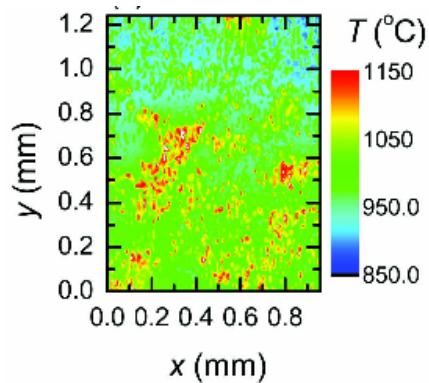
図 7-15c) ホットスポットでの熱の流れ



a) 常温の顕微鏡写真

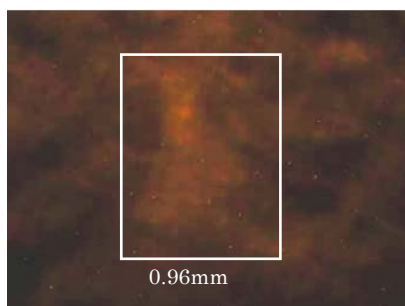


b) 加熱中の顕微鏡写真

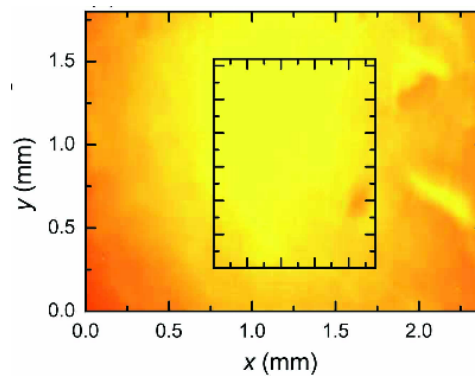


c) サーマグラフィー

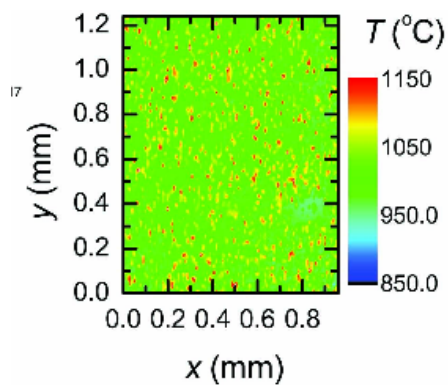
図 7-16 リサイクル磁器 250-500 μm の選択加熱



a) 常温の顕微鏡写真



b) 加熱中の顕微鏡写真



c) サーマグラフィー

図 7-17 リサイクル磁器平均粒径 4 μm の選択加熱

リサイクル磁器と蛙目粘土で作成したサンプルをマイクロ波加熱し、サーモグラフィーによる温度分布を測定した結果を図 7-16 と図 7-17 に示す。リサイクル磁器の粒度が 250~500 μm のサンプルでは、リサイクル磁器の粒子が約 300°C 高いホットスポットが確認された。また、リサイクル磁器の粒度が 4 μm のサンプルでは、細かなホットスポットが均一に分散している状況が確認できた。ホットスポットと周辺との温度差は、約 150°C であった。

リサイクル磁器の微細構造は、X線回折の結果（図 7-18）が示すように、ムライト・珪石の結晶とガラス相よりなっている。7-4-1 で確認されたようにリサイクル磁器は 1000°C まで発熱したが、蛙目粘土は約 300°C までしか発熱しなかったことと、7-4-2 で確認されたように磁器の構成組織であるソーダガラスが選択的に加熱したことにより、リサイクル磁器の粒子サイズ程度のホットスポットが形成され、リサイクル磁器が選択的にマイクロ波を吸収して発熱した。

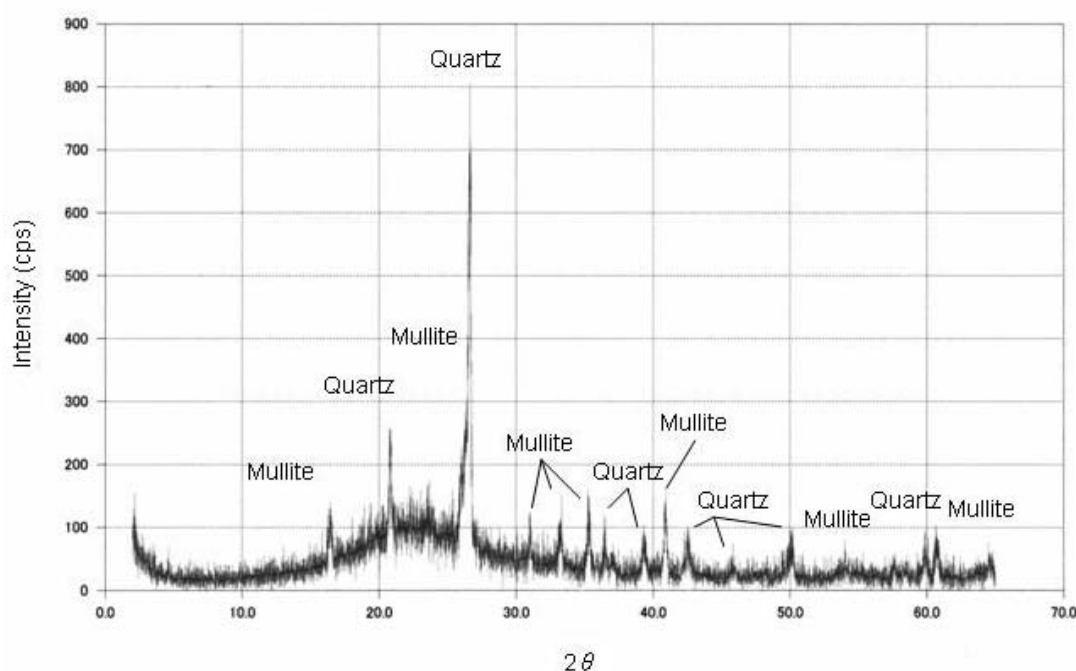


図 7-18 リサイクル磁器のX線回折結果

7-5-2 結 論

マイクロ波加熱において、In-situ の顕微鏡画像確認と分光分析による定量的な温度分布測定により、ソーダガラスと磁器組成の中でガラス相とガラス相を含む磁器が選択的に加熱されることが確認できた。在来の加熱では均一な温度分布となるが、マイクロ波加熱では選択加熱を受けた材料がホットスポットとして存在する。

磁器の構成組織のガラス粒子が選択的に加熱されホットスポットとなり、このホットスポットの温度がガラスの融点を超えれば、マイクロ波の吸収が小さく温度が低い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、低温で迅速な磁器焼成が可能となる。

本実験は、誘電体に微視的なスケールで熱的非平衡⁽¹⁷⁾が存在することを実証した世界で最初の実験である。マイクロ波加熱が在来の加熱の熱源の置き換えではないことを実験的に証明したものであり、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。

7-6 総 括

マイクロ波焼成の特性である材料毎に異なる発熱特性を活かして、材料開発と低温焼成技術開発を試みた。その結果、リサイクル磁器を 70%と蛙目粘土 30%の調合でマイクロ波焼成することにより、通常の陶磁器焼成より 230℃低い 1050℃で陶磁器の低温焼成が可能となった。リサイクル磁器は生産工程から排出される不良品を粉砕したものであり、また、特殊な原料を用いることもなく通常の粘土と既存生産設備の使用が可能である。この焼成技術は、CO₂排出量・焼成エネルギー・焼成コストの低減等のマイクロ波焼成の特徴をさらに活かして高い省エネルギー効果が期待でき、循環型環境社会・価格競争に対応できる焼成技術である。

また、マイクロ波による選択加熱を、磁器の成分・構造の違いによる発熱速度の測定と加熱状況のその場観察により実証し、微視的な熱的非平衡の検証を行うことができた。

焼成した磁器の構成組織であるソーダガラスが、マイクロ波により選択的に加熱を受け発熱する。ソーダガラスは同じ成分であっても、焼成前の結晶状態と焼成後のガラス化後では、電磁波の吸収に大きな差があり焼成速度が異なることが確認できた。ガラス相を含む一度焼成した磁器はソーダガラスの成分であるナトリウムを多く含むほど選択加熱の影響を強く受け、焼成速度が速くなった。

マイクロ波加熱において、加熱される状況の In-situ の顕微鏡画像確認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た定量的な温度分布測定により、磁器材料の中でガラス相への選択加熱とガラス相を含む磁器が選択的に加熱されることを実証した。

磁器の構成組織の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ことが見出された。このホットスポットの温度がガラスの融点を超えれば、マイクロ波の吸収が小さく温度が低い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、低温で迅速な磁器焼成が可能となる。

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。在来の加熱では均一な温度分布となるが、マイクロ波加熱では選択加熱を受けた材料がホットスポットとして存在する。マイクロ波加熱が在来の加熱の熱源の置き換えではないことを実験的に証明したものであり、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。

参考文献

- (1) H. Fukushima, Y. Ishii, Y. Fukushima : Ultrahigh-speed heating of porous ceramics by microwave energy, Proc.of PACIFICHEM, 2005 Hawaii
- (2) M. Sato, H. Fukushima, et.al.: Experimental Investigation of Mechanism of Microwave Heating in Powder Metals, IRMMW2004/THz2004 Joint, Karlsruhe, Germany, 2004
- (3) H. Fukushima, "Microwave Heating System by Using Remote-Controlled Resonant Cavity", Microwave 2004, p244-247, Takamatsu, 2004
- (4) H. Fukushima, "Rapid Heating by Single-Mode Cavity Controlled at 6GHz", MAPEES04, 2004, Published from Elsevier Ltd
- (5) 佐藤元泰, 渡辺隆, 土本光正, 長島崇 et al : H14 年度地域新生コンソーシアム研究開発事業報告書「環境負荷低減型短時間・均質加熱焼成プロセスの開発」, 経済産業省 p24 (2002)
- (6) 素木洋一 : 工業用陶磁器, 技報堂出版, p169-171 (1993)
- (7) マイクロ波応用技術研究会編 : マイクロ波応用技術, 工業調査会, p122 (2004)
- (8) 素木洋一 : 工業用陶磁器, 技報堂出版, p275-276 (1993)
- (9) M.Sato, A.Matsubara, K.Kawahata, O.Motojima, T.Hayashi, S. Takayama, D.Agrawal, R.Roy,: Microscopically In-situ Investigation for Microwave Processing of Metals by Visible Light Spectroscopy, Proc. 11th International Conference on Microwave and High Frequency Heating, O-24, Sep.11-15, 2005 Italy
- (10) M. Sato, H. Fukushima, et.al.: Experimental Investigation of Mechanism of Microwave Heating in Powder Metals, IRMMW2004/THz2004 Joint, Karlsruhe, Germany, 2004
- (11) M.Sato, T. Mutoh, T. Shimotuma, K.Ida, T. Inoue, K.Esaki, O.Motojima, M.Fujiwara, S.Takayama, M. Mizuno, S. Obata, K.Ito, T.Hirai, T. Shimada: RECENT DEVELOPMENT of MICROWAVE KILNS for INDUSTRIES in JAPAN (Invited) American Ceramic Society "Microwave and radiofrequency Applications" (2003) 281-289
- (12) M. Sato "Modeling of microwave kilns with isothermal barrier walls", Conference Proceedings of Progress in Electromagnetics Research Symposium (PIERS)", 2003
- (13) M. Sato, A. Matsubara: "Microwave Magnetism Selective Heating・In-Situ Measurement of Microscopic Isothermal Process", Submitted to Phy. Rev. Letter, on Nov. 2005
- (14) N. Nishino, K. Takahashi, H. Kawazome, Y. Fukagawa, T. Mizuuchi, K. Kondo, F. Sano, K. Nagasaki, H. Okada, S. Kobayashi, and S. Yamamoto: High-speed 2-D image measurement for plasma-wall interaction studies, Journal of Nuclear Materials (2004)
- (15) N.Nishino, TAKAHASHI Koichi, KAWAZOME Hayato, FUKAGAWA Yohei, MIZUUCHI Tohru, KONDO Katsumi, SANO Fumimichi, NAGASAKI Kazunobu, OKADA Hiroyuki, KOBAYASHI Shinji, and YAMAMOTO Satoshi: Visible imaging of edge fluctuations in Heliotron-J, Journal of Plasma and Fusion Research (2004)
- (16) S.J.Zweben, R.J.Maqueda, D.P.Stotler, A.Keesee, J.Boedo, C.E.Bush, S.M.Kaye, B.LeBlanc, J.L.Lowrance, V.J.Mastrocola, R. Maingi, N.Nishino, G.Renda, D.W.Swain, J.B.Wilgen, NSTX-Team: "High-speed imaging of edge turbulence in NSTX" Nuclear Fusion (2004) vol.44, no.1 pp134-53
- (17) Rustum Roy, Ramesh Peelamedu, Larry Hurtt, Jiping Cheng, Dinesh Agrawal : Definitive experimental evidence for Microwave Effect : radically new effects of separated E and H fields, such as decrystallization of oxides in seconds, Springer-Verlag, Mat Res Innovat 6:128-140 (2002)
- (18) 籠橋章, 安藤英夫 : 高砂工業, 東濃碍子 : 実験データ
- (19) 長谷川善一, 渡辺隆, 加藤弘二: セラミックデータブック 2000 工業と製品 Vol.28 No.82
- (20) 佐藤元泰 et. Al. : 「工業加熱」 Vol.No.3, p25 (2003)
- (21) マイクロ波応用技術研究会編 : マイクロ波応用技術, 工業調査会, p123 (2004)
- (22) マイクロ波応用技術研究会編 : マイクロ波応用技術, 工業調査会, p121 (2004)
- (23) 日本セラミックス協会 : セラミック工学ハンドブック, 技報堂出版, p1540 (1989)
- (24) 越島哲夫 : 普及版マイクロ波加熱技術集成, エヌ・ティー・エス p.157 (1994)
- (25) Mansoor A. Khan, Chary allemande, Thomas W. Eagar : Noncontact temperature measurement. II. Least squares based techniques, American Institute of Physics,

- Rev. Sci. instrum. RSI 62 392 (1991) 403
- (2 6) S V Egorov, A G Ereemeev, I V Plotnikov, V E Semenov, A A Sorokin, N A Zharova, Yu V Bykov : Edge effect in microwave heating of conductive plates, Institute of Physics Publishing, Journal of Physics D, 39 3036 (2006)
- (2 7) D.Teyssieux, L.Thiery, B.Cretin : Near-infrared thermography using a charge-coupled device camera : Application to microsystms, American Institute of Physics, Review of scientific instruments, RSI 78 034902 (2007)
- (2 8) Peter Poulsen, Stanly K.Ault : New method of high precision thermometry, American Institute of Physics, Review of scientific instruments, RSI 77 094901 (2006)
- (2 9) マイクロ波応用技術研究会編 : マイクロ波応用技術, 工業調査会, p125 (2004)
- (3 0) 日本セラミックス協会 : セラミック工学ハンドブック, 技報堂出版, p872 (1989)
- (3 1) マイクロ波応用技術研究会編 : マイクロ波応用技術, 工業調査会, p121 (2004)
- (3 2) 浜野健也 : ファインセラミックスハンドブック, 朝倉書店, p62 (1984)
- (3 3) 窯業読本編集委員会 : セラミック化学, 日本セラミックス協会, 技報堂出版, p91 (1974)

第8章 結 論

本研究は、「伝統的な陶磁器焼成の手法」と「誘電体中の電磁波伝搬とその減衰による加熱過程の解明、ミクロンスケールの微視的な熱伝導過程の物理学的研究」を結合して、新しい陶磁器焼成技術を開発したものである。マイクロ波による陶磁器焼成のプロセスを解明し、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。その結果に基づき、環境負荷を低減できる短時間・均質加熱焼成プロセスの実現、実用可能な工業炉の開発、消費エネルギーの評価と環境負荷の定量（LCA）を行った。さらに陶磁器の循環再生材料を使用したマイクロ波焼成による低温焼成技術の開発と、その焼成メカニズムの解明を選択加熱のその場観察により行った。これらの研究の報告は他になく、世界で初めて行った研究成果である。

以下に各章で得られた成果をまとめる。

第1章では、陶磁器産業の現在おかれている状況を論じながら、焼成技術について求められている環境問題への対応・生産コストの削減・顧客を満足させる品質と付加価値の創出・労働環境の改善等の様々な課題を抽出した。本研究では、循環型環境社会に対応したマイクロ波による焼成技術の確立を目的とし、マイクロ波焼成による陶磁器の環境負荷低減型の短時間・均質加熱焼成プロセスと、循環再生材料を使用した低温焼成技術について研究をした。

第2章では、陶磁器のマイクロ波焼成について理論的考察を行った。陶磁器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マイクロ波エネルギーを熱エネルギーに変換し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導いた。

高温型の顕微鏡観察を案出し、マイクロ波による陶磁器の焼成過程を微視的にその場観察した。熱伝導型の赤外炉と比較をすることにより、マイクロ波炉では従来炉での焼成と同様に陶磁器の焼成が可能であることと、また、従来の熱伝導型の焼成に比べ短時間で焼成できることが確認できた。そして、従来の熱伝導による陶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焼成できることを検証した。

第3章では、マイクロ波による陶磁器焼成について実験を行い、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。6種類（磁器・陶器・耐熱・高強度・半磁器・朱泥）の素地と伝統釉薬から量産用陶磁器釉薬まで30種類の釉薬について、外観性状と耐熱性・強度の物性は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。磁器素地の吸水率は同等であり、鉄分を含む陶器素地ではマイクロ波焼成では小さくなり良く焼き締まった。また、上絵付け・イングレイズ・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かった。金・プラチナの焼成も可能であった。

マイクロ波炉焼成室内の温度分布は従来ガス炉の38℃に比べ、6℃と小さくなった。還元焰焼成時のCOガス濃度分布も従来ガス炉に比べ小さく、均一に焼成ができることが確認できた。

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・焼成できることを検証できた。

第4章では、第3章で得られたマイクロ波焼成技術を基に、マイクロ波焼成を工業的に可能とするマイクロ波とガス炉を複合させたマイクロ波ーガス複合炉の開発を行った。マイクロ波ーガス複合炉では、酸化焰焼成も還元焰焼成も陶磁器を4時間で焼成できた。

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に比べ、短時間焼成が可能であった。炉内温度分布は還元焰4時間焼成で36℃となり実用範囲内であり、雰囲気のみ見られなかった。従来ガス炉の50℃に比べ、均質な焼成が可能であった。

マイクロ波ーガス複合炉では、陶磁器製飲食器の外観性状と耐熱性・強度の物性とも従来のガス炉と同等な焼成ができた。

消費エネルギーおよび焼成コストのみならず設備コスト・メンテナンス性を備えた経済性の高い工業炉として「短時間・省エネルギー・均熱・均質・低燃費」の実証ができた。

大量連続生産用の工業炉としてのマイクロ波連続炉での陶磁器製飲食器の焼成試験では、2時間焼成・2時間冷却が可能であった。鉄系顔料を含むナマコ釉・朱泥は冷却速度の影響を受け、冷却時間の調整が必要であった。また、焼成温度によっては連続炉の進行方向に平行に歪みが発生する場合があった。

第5章では、第4章で開発したマイクロ波ーガス複合炉の生産現場で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℃-4hr-1hrの焼成において、6時間の強制冷却が可能であった。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、焼成品にヒビ・割れの発生はなく、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、焼成サンプルの内部温度と表面温度を測定することにより、投入するマイクロ波エネルギーとガスエネルギー量を調整して、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を行うことができた。均質加熱が可能となり、花瓶・大型罎子・風呂桶などの大物の焼成が可能であった。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、磁器製品を積載間隔を詰めた方法で窯詰めをして3.5時間の短時間焼成をした。歪みの発生はなく、また、裏底部の釉薬は綺麗に溶け、問題なく正常に焼き上げることができた。従来ガス炉で均一に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、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CO₂排出量の算出を行い環境負荷の定量(LCA)を行った。

その結果、マイクロ波焼成では、従来ガス炉焼成と比較して消費エネルギーの310kWhに比べ1/5以下の62kWh、焼成コストは1662円に比べ1/2の806円で焼成できることを確認できた。マイクロ波ーガス複合炉焼成では、従来ガス炉焼成の消費エネルギーの1400kWhに比べ1/4以下の320kWh、また、焼成コストは7499円に比べ1/3以下の2118円となった。

CO₂排出量はマイクロ波炉・マイクロ波ーガス複合炉ともそれぞれ22.13 kgCO₂/kgと78.84 kgCO₂/kgの1/3以下となった。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、陶磁器の循環再生原料を使用したマイクロ波焼成による低温焼成材料の開発を行った。また、マイクロ波の選択加熱のその場観察により低温焼成のメカニズムの解明を行った。

一度焼成した磁器は、焼成前の生の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利用することにより、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と低温焼成により、CO₂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、なぜマイクロ波吸収が大幅に強くなるのか、その機構を学理的に検証した。マイクロ波による選択加熱を、成分・構成組織の違いによる発熱速度の測定と加熱状況のその場観察により実証し、微視的な熱的非平衡の検証を行うことができた。

焼成した磁器の構成組織であるソーダガラスは、同じ成分であっても焼成前の結晶状態と焼成後のガラス化後では、電磁波の吸収に大きな差があり発熱速度が異なることが確認できた。ガラス相を含む一度焼成した磁器はソーダガラスの成分であるナトリウムを多く含むほど選択加熱の影響を強く受け、発熱速度が速くなった。

マイクロ波加熱において、加熱される状況を **In-situ** の顕微鏡画像確認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い、定量的な温度分布測定を行った。磁器の構成組織の中で、ガラス粒子とガラス相を含む磁器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ことを実証した。このホットスポットの温度がガラスの融点を超えれば、マイクロ波の吸収が小さく温度が低い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、低温で迅速な磁器焼成が可能となる。

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。在来の加熱では均一な温度分布となるが、マイクロ波加熱では選択加熱を受けた材料がホットスポットとして存在する。マイクロ波加熱が在来の加熱の熱源の置き換えではないことを実験的に証明したものであり、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。

謝 辞

本論文に関して、研究の貴重な機会とご支援を賜りました自然科学研究機構 核融合科学研究所 本島修 所長に、深甚な感謝の意を捧げます。

本研究を遂行し、本論文をまとめるにあたり、ご指導とご鞭撻を賜りました核融合科学研究所 佐藤元泰 教授に、心より感謝申し上げます。佐藤元泰 教授には研究の進行段階において適切なご指導を頂いたおかげで、筆者をして方向性を見失うことなく研究をすすめ、本論文にまとめる研究ができましたことに対して重ねて感謝申し上げます。

長期に渡った本研究の遂行にあたり寛大なるご配慮と多くの有益なご助言を賜りました、名古屋工業大学 池田哲夫 名誉教授、名城大学 都市情報学部 一伊達稔 教授に深く感謝申し上げます。

本研究を進めるにあたり貴重なご意見とご指導を賜りました核融合科学研究所 野田信明 教授、佐藤国憲 教授、東京工業大学 永田和宏 教授、名古屋工業大学 小澤正邦 教授、核融合科学研究所 高山定次 准教授に、深甚なる謝意を申し上げます。

研究を行うに際して、共同研究ならびに実験および解析にご協力いただきました中部大学 研究員 松原章浩 博士、株式会社豊田中央研究所 主任研究員 福島英冲 博士に厚くお礼申し上げます。

また、本研究の一部は NEDO および経済産業省の地域新生コンソーシアム研究開発事業の助成によりなされたことを付記し、様々な面でお世話になった地域新生コンソーシアム研究開発事業のプロジェクトメンバーの財団法人ファインセラミックスセンター 道下和男 部長、酒井武信 部長、主任研究員 東田豊 博士、高砂工業株式会社 酒見定三 会長、籠橋章 取締役開発部長、鈴木一好 課長、主任 佐藤俊雄 様、黒瀬博則 様、大島士月 様、東濃碍子株式会社 安藤英夫 会長、安藤榮紀 社長、共栄電気炉製作所株式会社 牛田拓造 社長、北野浩 部長、パナソニック半導体子ディスクリートデバイス株式会社 野村純 部長、野村英司 課長、佐藤康夫 係長、株式会社 I T M 藤井幹也 部長、ニコー物産株式会社 工藤正浩 社長、株式会社デンソー 奥村和平 部長、株式会社 T Y K 主任研究員 安永吉宏 様、産業技術総合研究所 グループリーダー 渡利広司 博士、NEDO 主査 中森孝 様、岐阜県セラミックス研究所 島田忠 所長、平井敏夫 所長、水野正敏 部長、伊藤正剛 様、土岐市立陶磁器試験場 土本光正 次長、主任研究員 磯山博文 博士、研究員 星野知子 様、研究員 長島崇 様の諸氏に心から感謝申し上げます。

本研究の実施に際し、適切なご協力を頂いた核融合科学研究所 井道哲志 様、難波忠清 様、井上まさみ 様、水野和子 様、河本善子 様に心よりお礼申し上げます。

日頃からの友人の暖かい励ましに心から感謝いたします。また、いつの日も変わらぬ心で、私のことを念じ続けてくださった両親（故人）朝子夫妻、神谷正夫・とき江夫妻に心よりお礼申し上げますとともに、論文完成のご報告を申し上げます。妻 恵・長女 葵の家族の暖かい思いやりと協力に、心から感謝いたします。