

三重県窯業試験場年報

平成4年度 (Vol.27)

三重県窯業試験場

目 次

1. 概 要	
(1) 沿 革	1
(2) 敷地と建物	1
(3) 組織と業務分担	2
(4) 予 算	2
(5) 職員構成	3
(6) 主要試験研究設備	4
2. 依頼試験業務	7
3. 指導業務	7
(1) 技術相談指導	7
(2) 技術アドバイザー指導事業	7
(3) 中小企業先端技術研修	8
(4) 講習会・講演会等	8
(5) 試験場研修生の指導	9
4. その他	
(1) 客員研究会（職員の技術研修）	9
5. 研究報告	
(1) 人工粘土の合成技術（総括及び合成カオリナイトの粘土化）	10
(2) セラミックスと金属の接合に関する研究（第2報） 「有機接着剤によるアルミナと金属の接着」	14
(3) セラミックスと金属の接合に関する研究（第3報） 「低融点酸化物溶剤によるアルミナ同士の接合」	21
(4) セラミックスと金属の接合に関する研究（第4報） 「金属溶剤法によるアルミナと金属の接合」	31
(5) セラミックスの耐熱衝撃抵抗性と高周波特性に関する研究（1）	42
－LAS系の高周波特性について－	
(6) 成形自動化に適した泥漿の研究	46
(7) 複合材料設計支援エキスパートシステムに関する研究	49
(8) 窯業原料・窯業製品の高品質化に関する研究	57
(9) 赤萬古土をデザインする	58
(10) 伊賀焼CIマニュアル研究	61
(11) 伊賀焼陶磁器工業協同組合土の開発試験	72

1. 概 要

(1) 沿革

明治42年4月	津市に三重県工業試験場窯業部として設置
昭和元年12月	三重県工業試験場四日市分場として四日市市東阿倉川224番地に設置
昭和9年4月	三重県窯業試験場として独立
昭和14年1月	阿山郡阿山村丸柱に伊賀分場開設
昭和20年6月	戦災により本場建物、設備の全部を焼失
昭和22年9月	仮庁舎により業務一部開始
昭和35年3月	旧庁舎完備
昭和37年3月	国庫補助（技術指導施設費補助金）をうけ機器類設置
昭和43年2月	四日市市東阿倉川788番地に新庁舎建設着工
昭和44年3月	新庁舎落成
昭和44年3月	国庫補助（技術指導施設費補助金）をうけ開放試験室設置（第2回）完了
昭和45年3月	国庫補助（技術指導施設費補助金）をうけ機器類設置（第3回）完了
昭和50年3月	国庫補助（技術指導施設費補助金）をうけ機器類設置（第4回）完了
昭和55年3月	国庫補助（技術指導施設費補助金）をうけ機器類設置（第5回）完了
昭和59年3月	国庫補助（技術指導施設費補助金）をうけ機器類設置（第6回）完了
昭和60年3月	国庫補助（技術開発研究費補助金）をうけ機器類設置（第7回）完了
昭和63年3月	国庫補助（技術開発研究費補助金）をうけ機器類設置（第8回）完了
平成3年3月	国庫補助（技術開発研究費補助金）をうけ機器類設置（第9回）完了
平成4年3月	国庫補助（技術指導施設費補助金）をうけ機器類設置（第10回）完了
平成5年3月	国庫補助（地域研究者養成事業補助金）をうけ機器類設置（第11回）完了

(2) 敷地と建物

A 本 場

敷 地	11,147㎡
建 物	2,855㎡
[内 訳]		
本 館鉄筋コンクリート造2階建.....	1,433㎡
試 作 棟鉄骨平屋建.....	413㎡
調 土 棟鉄骨平屋建.....	455㎡
窯 場鉄骨平屋建.....	196㎡
原 料 置 場鉄骨平屋建.....	103㎡
変 電 室鉄骨平屋建.....	59㎡
廃水処理装置機械室鉄骨平屋建.....	45㎡

車 庫鉄骨平屋建..... 29㎡
 その他（ボイラー室、プロパン倉庫、渡り廊下等） 122㎡

B分 場

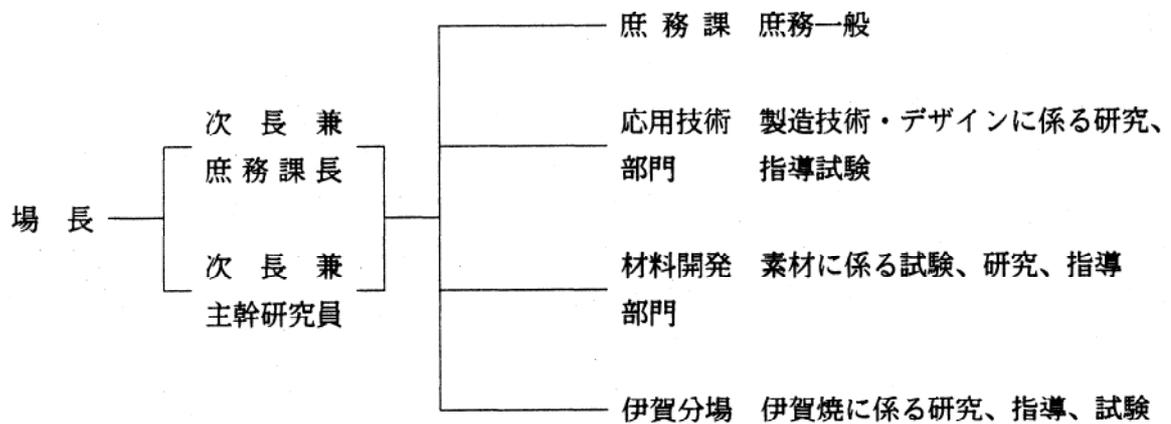
敷 地 423㎡
 建 物 258㎡

[内 訳]

本 館鉄筋2階建..... 258㎡

(3) 組 織 と 業 務 分 担

(平成5年4月1日現在)



(4) 予 算 平 成 4 年 度

歳 入

(単位：千円)

科 目	金 額
県 費	35,110
使用料及び手数料	6,372
財 産 収 入	727
諸 収 入	410
計	42,619

歳 出

(単位：千円)

科 目	金 額
賃 金	896
報 償 費	119
旅 費	1,610
需 要 費	11,465
役 務 費	624
委 託 料	2,433
工 事 請 負 費	12,123
使用料及び賃借料	5,473
原 材 料 費	1,040
備 品 購 入 費	7,634
公 課 費	18
計	43,435

(5) 職 員 構 成

平成5年4月1日現在

職 名	氏 名
場 長	西 田 正 義
次 長 兼 庶 務 課 長	遠 山 富 美
次 長 兼 主 幹 研 究 員	國 枝 勝 利
主 事	川 瀬 千 里
技 能 員	古 市 美 智 子
主 幹 研 究 員	青 島 忠 義
”	佐 波 平 三 郎
”	岡 田 征 之
主 任 研 究 員	小 林 康 夫
”	北 川 幸 治
”	伊 濱 啓 一

職 名	氏 名
研 究 員	稲 垣 順 一
”	林 茂 雄
”	日 比 野 剛
”	岡 本 康 男
”	庄 山 昌 志
”	佐 野 茂 樹
伊 賀 分 場 長 兼 主 幹 研 究 員	熊 谷 哉
主 任 研 究 員	伊 藤 隆
研 究 員	榑 谷 幹 雄

(6) 主要試験研究設備

機器名	メーカー	仕様	備考
走査型電子顕微鏡	日本電子	JSM-T300、分解能6nm(30kV WD3.8mm倍率×15~200000)	
万能表面形状測定器	東京精密	粗さ測定範囲0.005~100μm、最長 100mm	国補
自動成形機	高木製作所	ニューセラモルダーMTN-04、容 積4ℓ	国補
熱処理炉	ニイミ産業	炉内容積0.1m ³ 、最高温度1750℃	国補
精密自動切断研削盤機	笠井商工	試料送り方式、前後150mm、上下50mm	
蛍光X線分析装置	理学電機	System3080Ez、データ処理システ ム、オートサンプラー付	
高温度恒温器	鵬製作所	温度制御域40~500度、デジタルプ ログラムコントロール式	
イオンクロマトグラフ	ダイオネックス社	日立データ処理装置付	
恒温恒湿器	ダバイエスペック製	温度-20℃~85℃、湿度40%~95%	
示差熱膨張計	理学電機	測定温度範囲RT~1500℃	
精密測長計	ハイデンハイン社	測定距離60mm、システム精度±0.1μm	
実用化試験機器	ニイミ産業	1.8m ³ シャトルキルン(最高1350℃)	
高温曲げ引張り試験装 置	東京試験機製作所	クロスヘッド速度0.00001~100mm/ min高温試験装置300~1500℃セラミ ックス用高温曲げ治具付	
熱分析装置	理学電機	加熱範囲RT~1500℃	
熱的電気物性測定装置	理学電機	温度RT~1500℃、炉内寸法20φmm	
スプレードライヤー	大川原工機	乾燥室1200φ×1100Hmm	
全自動高温電気炉	広築	炉内寸法200×200×300mm、常用 温度1600℃	
原子吸光/炎光共用分 光分析装置	日本ジャーレルアッシ ュ社	測定方式D ₂ ランプ式、水冷式スリ ットバーナ、高温バーナ付	

機 器 名	メ ー カ ー	仕 様	備 考
デザイン開発装置	三菱レイヨン エンジニアリング	本体、タブレット、カラーモニター、 スキャナ、カラープリンター	
X線回折装置	理学電機	回折線湾曲結晶モノクロメーター、 試料高温装置付	国 補
粉体比表面積測定装置	カンタクロム社	B E T方式、データー処理機付	国 補
赤外線放射率測定装置	日本電子	フーリエ変換方式、赤外線放射測定 ユニット	
超微粉化装置	三井三池化工機	ゴムライニング、タンク容量5.5ℓ	
真空乾燥器	東京理化工械	内容量91ℓ(450mm角)	
全自動小型電気炉	羽根田商会	炉内寸法 300×400×250(mm) SiC発熱体、最高1500℃	
オートクレーブ	日東オートクレーブ(株) NAC-10型	内容量2ℓ Max 295気圧	
遊星型微粒砕機	フリッチェ・ジャパン (株)P-7型	メノー及び アルミナ容器	
フリーズドライヤー	大洋サービスセンター (株)VD-30型	-80℃ドライチャンバー付2ポート	
酸素分析計	日本ガイシ(株) PA-110型	CO, O ₂ 測定 ジルコニアセンサー式	分 場
実体顕微鏡装置	オリンパス光学(株) SZH-111型	カラーモニター 写真撮影装置付	加連的 転換技術
金属顕微鏡装置	オリンパス光学工業(株) BHM-313MW	4眼鏡筒及び電源12V 100W ダルトン(株)製架台付	日自振
赤外線反射測定 ユニット	日本電子(株)製 IR-DRA110	ハードディスクユニット ライブラリサーチプログラム付	国 補
迅速測定用粒度分析装 置	(株)堀場製作所製 LA-500	レーザービーム式 オートサンプラー付	国 補
熱膨張測定装置	真空理工(株)製 DLY-7000RH	赤外線集中加熱式 多試料同時測定	国 補
接合強度評価用引張り 治具	(株)東京試験機製作所製	材質 SUS 304	日自振

機 器 名	メ ー カ ー	仕 様	備 考
水銀ポロシメータ	湯浅アイオニクス(株)製 オートスキャン・33 ポロシメータ	測定範囲：200 μ ～400nm（半径） 測定用付属品、データ処理装置一式	国 補
プレス付き真空熱処理装置	東京真空(株)製 PRESS-VAC-II型	1,300℃（MAX真空状態） 油圧プレス0.2～2.0TON （オイルクーラー付）	日自振
誘電率測定装置一式	黄河・ヒューレット・ パッカード(株)製	高周波測定器HP8753C一式 低周波測定器HP4284A一式 データ処理装置、測定治具一式	国 補
還元焼成仕様電気炉	丸二陶料(株) OEL-8型	200V・40A電気炉RF1,300℃ プロパン装置付き一式	伊賀分場

平成4年度設置

機 器 名	メ ー カ ー	仕 様	備 考
マイクロ波加熱装置	日本高周波(株)	マグネトロン出力4.9KW以上 （水冷式）出力可変 チャンバー容積0.5 m^3 ターンテーブル 600 ϕ mm、付属品一式	
ヤング率測定装置 （動的弾性率測定装置）	京都電子工業(株)	DEM-11R型 JIS R1602及びASTM C848規格に準 拠した曲げ共振法による。 データ処理装置一式	国 補 （地域研）
分光光度計	(株)日立製作所	ダブルビーム分光光度計U-2000形一 式、データ処理装置一式	国 補 （地域研）
高速ミキサー一式	(株)日本精機製作所、 (株)ダルトン	ウルトラホモミキサーUM-3一式 パワーホモジナイザーPM-1一式 マルチディスペルザー40型一式	国 補 （地域研）
分析データ処理装置	ソニーコンピュータシ ステム(株)	EWS装置一式、マニュアル一式、プ ログラム作成用ソフトウェア一式 端末装置一式	国 補 （地域研）
データベース作成装置	日本電気(株)、キャノン (株)、(株)コンテック	コンピュータNEC PC-H98 model105 -100一式、プリンタ装置キャノンLB P-B406G 一式、付属品一式	国 補 （地域研）
酸素計一式	日本ガイシ(株)	日本ガイシPMB形小型酸素分析計RE -110、Bタイプ、付属品一式	

2. 依頼試験業務

項 目	件 数	項 目	件 数
定性分析	210	顕微鏡試験	80
定量分析	840	加工試験	268
測定	361	試料調整	159
物理試験	172	その他	21
熱的試験	108		
焼成試験	202	合 計	2,421

3. 指導業務

(1) 技術相談指導

項 目	内 容	件 数
原 材 料	窯業原材料（陶石、長石、粘土、金属酸化物等）の選定適正利用法、処理法	169
素地・成形、焼成	素地の調整法、成形技術、窯、焼成法	246
釉・顔料	釉・顔料の調整法、配合の調整	597
デ ザ イ ン	デザイン（パターン、形状、着彩法）装飾技法、試作	128
ファインセラミックス	原料、製造技術	53
そ の 他	陶磁器に関すること	169
計		1,362

(2) 技術アドバイザー指導事業

対 象	地 区 名	指導企業数	指 導 日 数		指 導 内 容
			アドバイザー	職 員	
陶磁器製造業	北 勢	5 社	30 日	16 日	陶磁器デザイン製造 3社
	伊 賀	1	10	0	品質管理 1社 素地と釉薬 2社
計		6	40	16	

(3) 中小企業先端技術研修

課程名： 窯業製品へのマイクロ波の応用 参加人員：18名

月 日	時 間	科 目	講 師
平成4年 10月7日(水)	午後 1:00~5:00	マイクロ波の 理論	大同工業大学 教授 柴田 長吉郎
10月8日(木)	午後 1:00~5:00	マイクロ波の 応用	大同工業大学 教授 柴田 長吉郎
10月13日(火)	午後 1:00~5:00	マイクロ波の 利用の実例	中電(株)電気利用技術研究所 産業担当 青木 弘 栄

(4) 講習会・講演会・展示会等の開催

名 称	年 月	場 所	人 員	内 容
陶磁器デザイン展	H4. 11	北勢地域地場産業 振興センター	350	23機関 76点の作品の展示
研究成果発表会及び 窯業技術啓発講演会	H4. 11	窯業試験場	39	水硬性材料を用いたセラミ ックスの研究他4テーマ及 び都市デザインから地域産 業を考える (他現地指導)
デザイン講習会	H5. 3	窯業試験場	20	盛絵の図案構成 (藤原 元 氏)
実技講習会	H5. 3	窯業試験場	15	盛絵の図案構成とその応用 (藤原 元 氏)
デザイン講演会	H5. 3	窯業試験場	30	百貨店(市場)の現状と今 後の方向性 (高橋 晋一 氏)
デザイン講演会	H5. 3	伊賀分場	20	今どきの商品開発と流通に ついて (神戸 憲二 氏)

(5) 試験場研修生の指導

研 修 内 容	期 間	人 員	担 当 者
現状製品の改良及び新製品の 開発研究 陶磁器製造研究 異素材との複合化による研究 強化半磁器の研究	H4. 6～H5. 3	4	國 枝 勝 利 青 島 忠 義 稲 垣 順 一

4. そ の 他

(1) 客員研究会（職員の技術研修）

名 称	年 月	講 師	内 容
陶磁器の総合技術に就 いて	H5. 2	中京短期大学 教 授 加 藤 悦 三 教 授 金 岡 繁 人	陶磁器の原料、素地、釉薬の 製造方法について (新採教育用)

5. 研究報告

(1) 人工粘土の合成技術（総括及び合成カオリナイトの粘土化）

研究員 稲垣 順一 岡本 康男
*後藤 靖司

1. 緒言

陶磁器、ニューセラミックス用可塑性原料として最も重要なカオリナイト質粘土は、その鉱床の多くが採掘され尽くされたり、宅地開発等で採掘不能となったりして、枯渇化が進んでいる。そこで、カオリナイトの水熱合成を行ない、インターカレーションによる粘土化を図った。

2. 方法

2.1 水熱合成

(1) 出発原料

① シリカ源原料

三重県津市半田一帯に存在する通称“伊勢硅砂”は、極微粒～細粒の軟質ガラス質火山灰で、灰白色を呈する。主成分は、アモルファスシリカで、他に結晶質の石英、微量の曹長石が存在する。Table 1 に分析値を示す。トロンメルで24時間粉碎後、さらに、アトライタで微粉碎し、これをシリカ原料に供した。

ELEMENT	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	K ₂ O	Na ₂ O	Ig. Loss
Wt. %	73.72	13.57	1.21	0.08	0.43	0.13	4.80	2.20	4.31

Table 1 Chemical Analysis of ISEKEISYA

② アルミニウム源原料

水酸化アルミニウムは、ギブサイト及びベーマイトを用いた。

(2) 実験方法

前記のシリカ源原料およびアルミニウム源原料を原子比でSi/Al=1になるように混合した出発原料2gに対し、水を20ml加え、塩酸、水酸化カリウムでpHを調整した。

伊勢硅砂-ギブサイト反応系 →KA系

伊勢硅砂-ベーマイト反応系 →KB系

と呼ぶことにする。調整したスラリーは、四フッ化エチレン製容器(25ml)に入れ、ステンレス製ジャケットで密閉し、PIDコントロール付の恒温槽で220±2℃に保つようにした。合成されたカオリナイトは、反応終了後急冷、吸引濾過を行なった後、110℃で乾燥し、評価試料に供した。

* 現 四日市市役所

2. 2 インターカレーション

2. 1で合成したカオリナイト及びリファレンスとしてClay Minerals Societyの標準カオリンKGa-1及びKBa-2を使って飽水ヒドラジンのインターカレーションを行い、ヒドラジン-カオリナイト複合体に水洗、乾燥処理を施し可塑性の発現を調べた。

3. 結果と考察

3. 1 水熱合成

144時間水熱合成を行なったときのPHの影響について、Fig. 1、2に示す。

アルミニウム源にギブサイト、ペーマイトを用いても、ともにアルカリ域ではカオリナイトは生成せず、酸性域で生成する。pH 2付近で最も生成率が高く、結晶も比較的良好に発達していた。pH 2におけるカオリナイト生成率は、KA系で80%、KB系で83%であった。また、ヒンクレイ指数はKA系で0.9、KB系で0.8であった。144時間後の生成物について同定された結晶は、カオリナイト及び伊勢硅砂中の石英であった。TEMによる観察でも、Tomuraらの指摘する球状カオリナイトの生成は認められなかった。

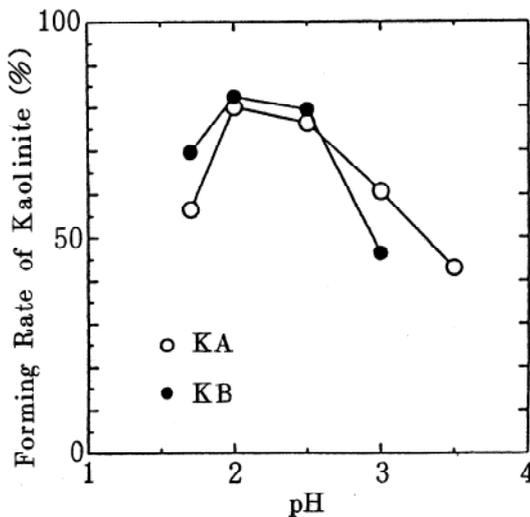


Fig. 1 pHと成生速度

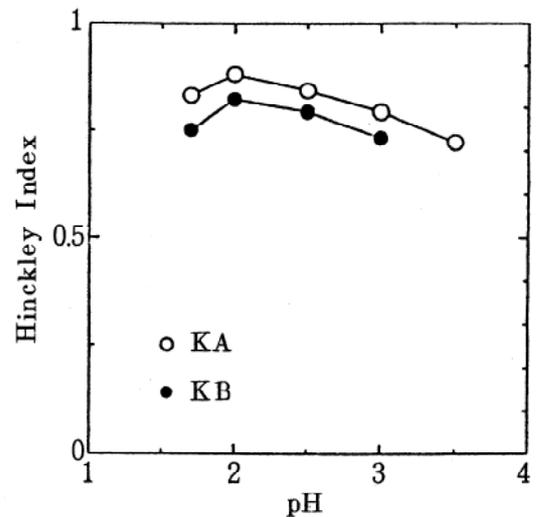


Fig. 2 pHとヒンクレイ指数

アルカリ域でカオリナイトが生成しないのは、伊勢硅砂が、高温高圧下において全てのpH域で溶解するのに対して、ギブサイトやペーマイトは、アルカリ域では溶解後アルミン酸イオンとして存在し、カオリナイトの生成に寄与しにくく、短時間でのカオリナイトの生成が困難なためと思われる。

また、強酸性域 (pH 1 付近) でも、カオリナイトを生成せず、Al-Si-O系のアモルファス物質になった。本研究では、 pAl^{3+} および pH_4SiO_4 は、0.15~0.19であり、高濃度のため、強酸性域では、カオリナイトが安定でないためである。

カオリナイトの生成過程は、KA系とKB系で異なる。KA系では、ギブサイトが水熱合成直後にペーマイトを中間物質として生成し、このペーマイトが伊勢硅砂と反応して、カオリナイトを生成する。これは、本実験条件 (220°C, 23.3atm) では、ギブサイトよりもペーマイト

の方が安定なため、中間生成物としてペーサイト (γ -Al(OH)) が生じるためである。KB系では、出発原料のペーサイトが徐々に反応してカオリナイトを生成する。

ペーサイトおよびシリカは、



で示す加水分解反応を起こす。これらの反応は、congruently に起こっており、カオリナイトの生成反応に供される。反応初期に、KA系の方がKB系よりカオリナイトの生成が早いのは、Kittrickの自由エネルギーの測定結果より、アモルファスAl(OH)₃、ギブサイトペーサイトダイアスポアの順に安定であり、本実験の結果と一致する。

3. 2 インターカレーション

飽水ヒドラジンのインターカレーション反応率をFig. 3に示す。反応率は、KGa-1が最も良く、人工粘土が最も悪かった。3者とも120分後には平衡に達したと思われる。

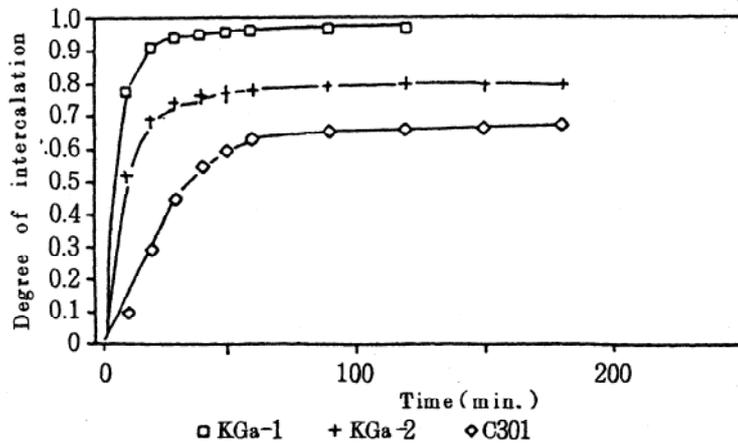


Fig. 3 インターカレーション率 [$I_{10.4\text{\AA}} / (I_{7.1\text{\AA}} - I_{10.4\text{\AA}})$]

Fig. 4に、ヒドラジンインターカレーションを行ったカオリナイトを、水洗、130°C乾燥、マイクロ波乾燥 (2,450MHz) した効果を示す。ヒンクレインデックスの低下、比表面積の向上が認められ、これらの操作は可塑性の発現に効果を与える可能性が確認された。

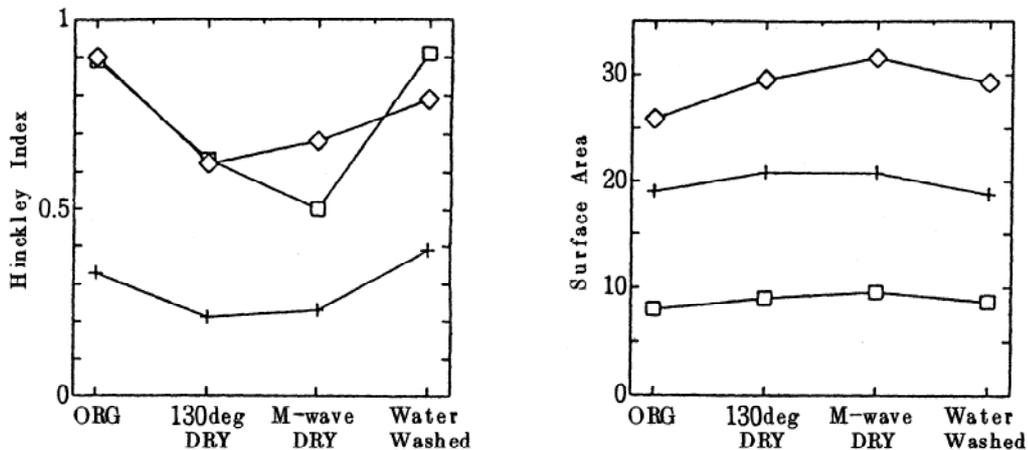


Fig. 4 マイクロ波乾燥の効果 (ヒンクレ指数、比表面積)

また、マイクロ波乾燥に関して可塑性値を測定したところ、Fig. 5 のようにいずれの場合も CV 値が向上した。

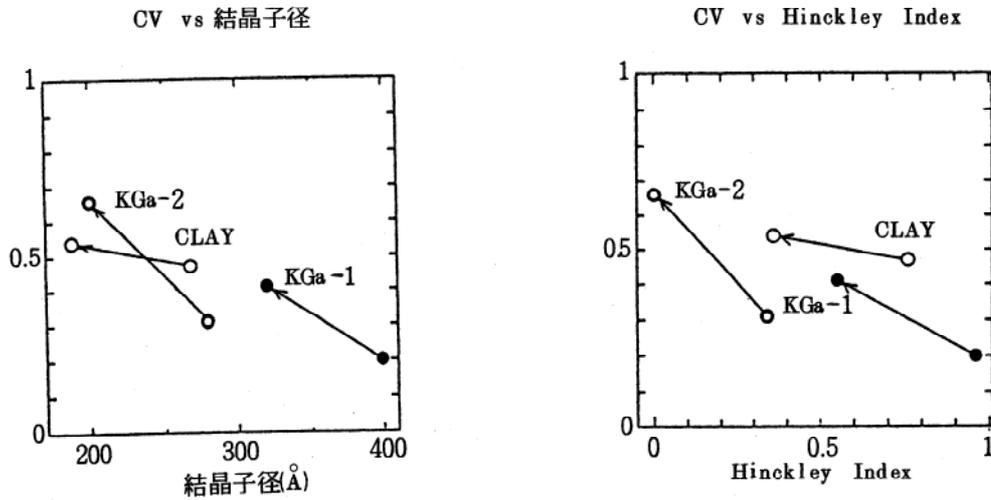


Fig. 5 結晶子径、ヒンクレイ指数と CV 値

4. まとめ

伊勢硅砂-ギブサイト、伊勢硅砂-ベーマイト系ともに、pH 2 の近傍でカオリナイトの生成率が高く、合成されたカオリナイトは、直径 $0.1\sim 0.5\mu\text{m}$ の六角板状微粒子になる。アルカリ域では、カオリナイトの生成が認められない。また、pH 1 でもカオリナイトの生成は認められなかった。

有機物複合体に乾燥処理等を施すことによって、カオリナイトの結晶が破壊され、可塑性の向上に効果があることがわかった。

(2) セラミックスと金属の接合に関する研究 (第2報)

「有機接着剤によるアルミナと金属の接着」

材料開発部門 日比野 剛 佐野 茂 樹
応用技術部門 伊藤 隆

1. はじめに

セラミックスは高硬度、耐摩耗性、耐熱性、耐食性等の優れた性質に着目されて構造用部材などの分野に使用されるようになってきた。しかし、これらの優れた性質を有する一方で、難加工性、脆性、大型・複雑形状物の作製が難しいなどの欠点を有している。構造用部材として使用する場合においてこれらの欠点が障害となっている場合が多いので、セラミックスの構造部材への使用場面の拡大を図るには、金属などの他材料と複合化してセラミックスの欠点を補うとともに、それぞれの材料の特長を生かして高機能化を図ることが必要である。

セラミックスと金属の接合は、セラミックスの難加工性、脆性等の欠点を金属との複合化により補うばかりでなく、複合化による高機能化、多様な組み合わせがあるなどのメリットがある。また、セラミックス同士の接合に応用することにより、大型・複雑形状物の作製が可能になることから接合技術の確立は重要な技術課題であるとされている。

本研究は、この接合手法について、できるだけ簡単な方法で複合化を図ることを目的として始めた。第1報¹⁾では、現在、広く実用されている有機接着剤による接着について、アルミナ焼結体を使用して若干の接着強度の試験を行い、評価・検討を行った。今回は、接着剤の種類を前回より少し多くするとともに、アルミナ同士、アルミナと金属を接着し室温および100℃、200℃に加熱した状況下での接着強度を測定し、比較・検討を行ったのでその結果を報告する。

2. 実 験

(1) 接合部材

接着試験にはセラミックス部材として、共立窯業原料(株)より購入した92%アルミナ焼結体を使用した。金属部材としては、構造用炭素鋼のS45C、ステンレス鋼のSUS304とSUS403を使用した。部材のサイズは7×10×30mmであり、7×10mmの面を接着面とした。アルミナ焼結体は予め接着面を10μmのダイヤモンド研磨材で仕上げたものである。金属部材は、接着前に回転式研磨盤で#400のSiC耐水紙で接着面を研磨してから使用した。

(2) 接着剤

実験に使用した接着剤は、先にアルミナ同士の接着試験を行いある程度強度があったものを選び、表1に示す6系14種とした。この中でシアノアクリレート系(瞬間接着剤)のみが1液性であり、他の接着剤は全て2液性であった。また、2液性のなかで構造用アクリル系は接着面両面にそれぞれ主剤と硬化剤を塗布し、2液をすり合わせて反応、硬化させるタイプのものであった。他は接着前に2液を混合してから使用するタイプであった。

耐熱性の有無で接着剤を分類すると^{2) 3)}、変成シリコンゴム系とポリイミド系が耐熱性の有る接着剤で、それ以外は耐熱性があるとされてはいるが実際あまり耐熱性がないものであった。

表1 使用した接着剤

1. シアノアクリレート系	①アロンアルファ・液状
	②アロンアルファ・ゼリー状
	③セメダイン・マルチ3000
2. エポキシ系	④ボンド・クイック5
	⑤ボンド・Eセット
	⑥アラルダイト・ラピッド
	⑦アラルダイト・スタンダード
3. 構造用アクリル系	⑧セメダイン・SGA
	⑨コニー1
4. ポリウレタン系	⑩KU10A
5. 変成シリコンゴム系(耐熱性)	⑪MOS10L
6. ポリイミド系(耐熱性)	⑫HT-10
	⑬HT-50
	⑭2092

(3) 接合体の作製

まず、部材の接着面に必要量の接着剤を塗布し、軽く擦り合わせて十分に広げた。次に図1に示すように接合体を立てた状態にして、上に約235gのアルミナブロックを乗せて1時間静置した。そして、アルミナブロックを取り除き室温で接着剤を硬化させた。

なお、1時間以内に硬化する接着剤は、十分硬化したと思われる時間が経過したらブロックを取り除いた。また、接着面からはみ出した接着剤は取り除くことなく、そのまま硬化させた。

接着剤の硬化は全て室温で行ったが、今回使用中でポリイミド系は本来、接着後に加熱して予備硬化、本硬化させるタイプのものである。

接合体は各接着剤について、部材の組み合わせ、加熱温度ごとに7本ずつ作製し、接着してから1週間後に行う強度試験までに5本未満になったものは再度作製してデータに加えた。

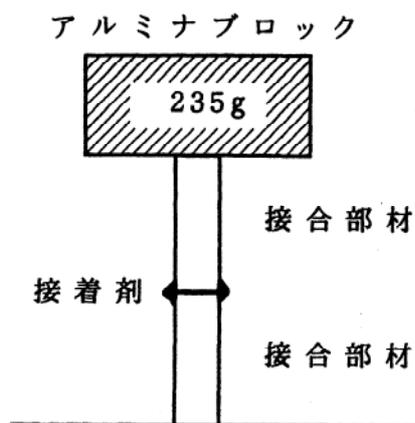


図1 接合体の接着方法

(4) 接着強度の評価

接着強度は接合体の接着後、1週間後に4点曲げ試験を行うことにより求めた。上下スパンはそれぞれ10mm、30mmとし、クロスヘッドスピードは0.5mm/minとした。なお、接着面からはみ出した接着剤は取り除くことをしないで測定した。

有機接着剤で接着した部品は室温付近で使用されることを前提条件と考えたが、使用中に周囲や部材の温度が上昇することも考えられるので、100℃、200℃に加熱して温度による強度の変化も調査した。加熱条件下で接着強度を測定する接合体は、予め100℃、200℃に調節しておいた乾燥器内で1時間保持し、取り出してから1分以内に荷重が加わるようにして測定を行った。

強度試験後の接合体は一部アルミナ同士の接着を除き、破断箇所と破断面の様子の肉眼観察を行った。

3. 結果と考察

(1) 接着強度の測定結果

表2に接着強度の測定結果を示す。強度測定前までに取扱いミスなどで接着強度が著しく低いものと、反応・硬化が十分でなかったものはデータから除いてある。

接合体は全て接着剤と接着面付近で破断し、部材自体が破壊したものはなかった。特に高い強度を示したものはいずれもアルミナ同士の接着であり、室温におけるエポキシ系の平均強度で約95MPa、200℃におけるポリイミド系の約98MPa、84MPaであった。

(2) 接着強度と温度

測定結果より変成シリコンゴム系とポリイミド系の接着剤以外は、耐熱性があまりないので加熱することにより強度が著しく低下していることがよくわかる。以下に各接着剤についての加熱による性状の変化と破断の様子等を述べる。

- ① シアノアクリレート系は接着強度が半減しているものもあるが、100℃に加熱した状況下では強度の低下はほとんどなかった。しかし、200℃に加熱した状況下では接着剤が白色に変質してしまい接着部を形成していなかった。接着部の破断形態は部材によって若干異なるが、凝集破壊と界面剝離の混在で金属側で剝離している部分が多く、界面剝離の占める割合が大きくなるほど接着強度が低くなる傾向を示した。温度による破断形態の変化はあまり認められなかった。
- ② エポキシ系は室温における接着強度が比較的高く、アラルダイトでは最高100MPa程度の強度が得られている。しかし、加熱温度が高くなるにつれて乳白色であった接着剤が褐色を帯びようになり、また加熱とともに軟化し強度が急激に低下した。このことはエポキシ系が熱に弱く室温付近での使用に限られることを示している。破断形態はアルミナ同士と金属では異なり、アルミナ同士では200℃に加熱しても凝集破壊であったのに対して、金属との接着では一部を除いて室温から200℃まで界面剝離の形で破断するものが多かった。

表2 接着強度測定結果

(強度単位: MPa)

接着剤	部材	室温			100℃			200℃		
		試料数	平均強度	標準偏差	試料数	平均強度	標準偏差	試料数	平均強度	標準偏差
シアノアクリレート系 アロンアルファ 液状	Al ₂ O ₃	8	45.1	11.47	10	44.6	10.83			
	S45C	7	16.9	2.21	7	17.0	4.49			
	SUS304	7	34.5	9.45	7	21.7	6.13			
	SUS403	7	28.9	11.53	7	30.1	7.78			
シアノアクリレート系 アロンアルファ ゼリー状	Al ₂ O ₃	7	42.4	5.65	10	26.3	5.51			
	S45C	7	11.8	1.72	7	14.7	5.66			
	SUS304	7	26.6	8.32	7	22.2	7.36			
	SUS403	7	23.8	5.73	7	25.3	4.38			
シアノアクリレート系 セメダイン マルチ3000	Al ₂ O ₃	7	25.1	2.05	7	29.6	7.30			
	S45C	7	22.3	3.31	7	13.7	6.16			
	SUS304	7	25.1	4.73	7	12.3	3.84			
	SUS403	7	23.0	6.76	7	14.2	3.94			
エポキシ系 ボンド クイック5	Al ₂ O ₃	8	37.6	4.60	10	11.1	2.63	10	5.8	1.56
	S45C	7	31.4	10.02	7	10.1	2.72	7	1.5	1.80
	SUS304	7	45.7	4.77	7	9.4	4.03	7	4.1	1.48
	SUS403	7	44.1	6.64	7	8.7	3.61	7	2.8	2.35
エポキシ系 ボンド Eセット	Al ₂ O ₃	8	48.1	4.77	10	10.7	2.41	10	8.3	1.46
	S45C	7	17.6	2.87	7	3.1	1.44	6	0.3	0.08
	SUS304	7	26.9	7.12	7	2.7	1.01	7	0.2	0.13
	SUS403	7	23.8	4.13	7	3.7	1.42	7	0.3	0.12
エポキシ系 アラルダイト ラビッド	Al ₂ O ₃	8	95.1	8.48	10	11.6	3.57	10	6.7	2.19
	S45C	7	53.7	15.32	7	13.8	3.68	7	4.9	1.99
	SUS304	7	45.4	8.13	7	12.3	3.09	7	5.3	2.14
	SUS403	7	53.0	12.59	7	7.2	1.63	7	5.2	1.30
エポキシ系 アラルダイト スタンダード	Al ₂ O ₃	8	61.9	5.82	10	20.0	4.10	10	12.9	1.57
	S45C	7	54.9	5.54	7	19.0	4.00	7	5.7	0.97
	SUS304	7	66.4	5.24	7	18.8	3.49	7	2.0	1.23
	SUS403	7	53.1	4.76	7	19.0	3.82	7	6.1	0.79
構造用アクリル系 セメダイン SGA	Al ₂ O ₃	8	34.4	9.63	10	8.8	4.25	10	0.9	0.33
	S45C	7	42.8	12.34	7	12.5	3.08			
	SUS304	7	55.2	14.61	7	18.8	6.41			
	SUS403	7	31.5	8.24	7	16.4	3.13			
構造用アクリル系 コニー1	Al ₂ O ₃	7	27.1	6.71	7	11.4	1.54			
	S45C	7	28.3	8.46	6	11.0	1.33			
	SUS304	7	24.4	3.61	7	10.1	4.10			
	SUS403	7	28.9	5.47	6	11.8	4.45			
ポリウレタン系 KU10A	Al ₂ O ₃	7	15.2	1.32	7	8.3	1.83	7	4.3	0.42
	S45C	7	20.6	3.35	7	13.7	4.45	7	1.4	1.63
	SUS304	7	16.1	1.79	7	12.5	3.46	12	3.8	2.94
	SUS403	7	21.0	4.33	7	11.8	3.22	14	7.6	2.02
変成シリコンゴム系 MOS10L	Al ₂ O ₃	6	14.4	0.83	7	14.3	1.89	7	10.3	1.66
	S45C	7	16.9	1.96	7	11.7	1.68	7	12.3	2.53
	SUS304	7	13.2	2.16	7	11.4	0.98	7	12.4	0.97
	SUS403	7	14.9	1.87	7	10.7	0.79	7	8.8	2.06
ポリイミド系 HT-10	Al ₂ O ₃	8	26.6	2.58	10	54.8	6.66	10	98.3	17.29
	S45C	7	18.3	3.35	7	27.1	5.07	14	59.1	5.06
	SUS304	12	24.5	5.37	13	18.6	9.12	8	19.2	19.07
	SUS403	14	27.9	4.39	14	36.5	8.31	14	61.0	8.42
ポリイミド系 HT-50	Al ₂ O ₃	8	50.5	9.17	10	62.5	6.06	10	60.4	7.29
	S45C	7	30.3	6.75	7	25.1	3.65	7	26.0	3.03
	SUS304	7	33.4	5.31	7	34.7	4.31	7	25.4	5.28
	SUS403	7	24.9	2.21	7	32.9	3.33	7	33.2	5.21
ポリイミド系 2092	Al ₂ O ₃	5	18.0	1.90	10	61.4	14.90	10	83.8	16.14
	S45C	7	25.1	3.65	7	30.3	3.19	7	5.0	3.50
	SUS304	7	36.4	13.01	7	30.0	3.60	6	4.4	2.56
	SUS403	7	47.7	14.79	7	32.0	3.66	6	12.4	2.40

- ③ 構造用アクリル系は室温においての接着強度は今回の結果の中で中程度であるが、加熱により強度が著しく低下した。200℃ではシアノアクリレート系のように接着していないということにはなかったが、室温では黄色である接着剤が褐色に変色するとともに焦げたような異臭を放つようになって、ほとんど強度を示さなくなりデータにはならなかった。このことはシアノアクリレート系についても言えることであるが、アクリル系接着剤は熱可塑性であるため加熱によって軟化、変質したために強度の低下が生じたと考えられる。
- ④ ポリウレタン系は1種類のみであるのであまり詳しいことはわからないが、これも他の接着剤と同様に加熱により接着強度が低下している。また、加熱とともに接着剤自体が淡く黄色を帯びた状態から濃い褐色へと変色するとともに堅くなっていった。破断形態も金属部材との接着では室温では金属部材側での界面剥離の占める割合が高かったのが、加熱により凝集破壊が占める割合が高くなり200℃ではアルミナ同士の場合と同様に凝集破壊になってしまった。
- ⑤ 変成シリコンゴム系も1種類であるので詳しいことはわからないが、耐熱性の有る接着剤であったので加熱による接着強度の低下があまりなかった。また、加熱による変質等もあまり認められなかった。しかし、破断形態は温度によりかなり異なる様子を示した。室温ではアルミナ側での界面剥離であった破断形態が、100℃では金属側で界面剥離、200℃では凝集破壊へと変化している。
- ⑥ ポリイミド系は耐熱性の接着剤で、アルミナ同士の接着では200℃において平均強度で約98MPaという高強度が得られている。この接着剤は本来、加熱して硬化させるタイプであるので室温で硬化させただけでは十分な強度が得られていないことが測定結果よりわかる。100℃、200℃に加熱することにより本来の使用方法に近づいて十分な強度が得られたと考えることができる。しかし、加熱硬化して十分な強度が得られるようになる反面、室温で硬化させた場合よりも接着剤自体が更に硬くなるために剥離に弱くなるようであった。金属との接着において室温では凝集破壊であったのが、加熱により硬くなって金属面で剥離する割合が高くなっている。特にSUS304ではその傾向が顕著でアルミナ同士の場合と逆に室温の方が高い強度を示している。

(3) 部材の種類による接着強度への影響

アルミナ同士の接着とアルミナと金属の接着を行ったが、総じてアルミナ同士の接着の方が高い強度が得られている。このことは、アルミナと金属部材とで接着面の仕上げ粗さの違いによる部分が大きいと考えられるが、接着剤と部材との親和性も影響していると考えられる。

現在、一般の接着では分子間力が主原因であると考えられているが、エポキシ系などのように水素結合を形成しやすい場合には分子間力による接着よりも接着強度が大きいとされている^{2) 3)}。金属とアルミナを比較して界面剥離の形態で破断した試験片が金属側が多かったことから、金属の方が接着剤に対する親和性が乏しく、そのためにこのような結果が生じたと考えられる。金属との接着でアルミナ同士の接着の場合と同程度の強度を得るには、親和性を補うために接着面の面粗さを変えたり、表面処理を行うなど何らかの処理を施す必要があるようである^{2) 3)}。

(4) 接着面の仕上げ粗さについて

アルミナ部材については10 μ mのダイヤモンド研磨材で仕上げたものを購入し、そのまま使用した。金属部材は#400のSiC耐水紙で仕上げて使用することに統一した。しかし、測定結果からアルミナと金属では接着強度に大きな差が生じている。そこで、高い接着強度が得られた接着剤2種類について金属部材の接着面を#240のSiC耐水紙で仕上げて#400の場合との接着強度を比較した。表3にその結果を示す。

表3 接着面の仕上げ粗さによる接着強度の違い

(強度単位:MPa)

接着剤	部材	仕上	室温			100℃			200℃		
			試料数	平均強度	標準偏差	試料数	平均強度	標準偏差	試料数	平均強度	標準偏差
エポキシ系 アラルダイト ラピッド	SUS403	#240	7	72.2	12.78	7	10.7	3.71	7	6.1	2.05
		#400	7	53.0	12.59	7	7.2	1.63	7	5.2	1.30
ポリイミド系 HT-10	SUS304	#240	7	26.5	2.52	7	38.3	4.85	6	57.6	6.36
		#400	12	24.5	5.37	13	18.6	9.12	8	19.2	19.07

エポキシ系については室温における強度は約1.5倍になっているが、加熱した状況下ではあまり差がなかった。ポリイミド系は室温における強度はあまり変わらないが、加熱状況下では強度がかなり高くなった。この結果から接着面の仕上げ粗さは接着強度を左右する重要な要因であることがわかる。しかし、エポキシ系ではそれ以上に温度による影響が大きかったことがわかる。

(5) 接着強度の試験方法について

接着強度の測定には4点曲げ試験を使用した。この方法では接合体に静荷重が加わる場合の強度が測定できるだけである。第1報¹⁾でも述べたが、実際、接着部にはいろいろな形態の外力が加わることが予想され、曲げ強さの他に引っ張り強さ、せん断強さ、剝離強さ、引き裂き強さ、衝撃強さなどが要求されることが多いと思われる。今回の試験は接合体の作製が困難な別の接合方法との比較も含めて簡単な方法で接着強度を評価することを目的としているので、強度を正當に評価するのに4点曲げ試験だけでは十分な評価方法であるとはいえない。しかし、接着剤を選択する上での参考データくらいにはなると考えられる。実際に使用する場合には、使用箇所に加わる外力に応じた試験方法を採用して調査をするべきである^{2) 3)}。

4. おわりに

数種類の有機接着剤を使用してアルミナ同士、アルミナと金属の接着を行いその接着強度を測定することを行った。その結果として、アルミナ同士の接着において室温、加熱状況下で高い強度を示す接着剤があることがわかった。また、金属との接着について接着面の仕上げ粗さの問題もありアルミナ同士の場合ほど高い接着強度は得られなかったが、剝離して破断しやすい状況の中で比較的高い強度を示すものがあることがわかった。

しかし、先にも述べたが、今回の試験結果は接着剤の接着強度を1つの測定方法で評価しただけであるため、接着剤の性質および接着強度を正當に評価しているとはいえない。接着部に加わる外力はいろいろな形態があると考えられるので、使用箇所に即した試験方法により評価が行われるべきである。更に接着強度に影響を与える因子として、接着剤と接着物との組み合わせ、接着部の状況、使用箇所の環境など数多くの因子が存在するので、これらの状況を十分考慮したうえで接着剤を選択する必要がある。また、実際の使用にあたりメーカーの技術資料とは異なる状況であることが多いと考えられるので、技術資料のデータをそのまま適用するのではなく自分自身で試験を行ってみることが必要である。

謝 辞

本研究を行うにあたり各種の接着剤を提供していただいたコニシ(株)名古屋支店ボンド部に感謝いたします。

参考文献

- 1) 日比野剛, 伊藤隆, 服部正明, 三重県窯業試験場年報, 25, 39~46(1991)
- 2) 前田勝啓, 高性能を生む接着剤えらび, 技術評論社(1983)
- 3) 接着読本, コニシ株式会社

(3) セラミックスと金属の接合に関する研究 (第3報)

「低融点酸化物溶剤によるアルミナ同士の接合」

材料開発部門 日比野 剛

1. はじめに

セラミックスは製造過程において、焼結による大きな焼成収縮があるために焼成中に部分的な変形などが生じて、複雑形状物・大型部材の作製が難しいという欠点がある。そのため、寸法精度が要求される機械部品等の構造材料への応用を考える上で、セラミックスは焼成後に何らかの加工処理を必要とする。

近年、NC加工機などにより複雑形状物の加工も効率よくできるようになってきているが、セラミックスは脆性であり難加工性材料であるため加工コストは決して安くなく、またクラックの発生や欠損が起こり易いという欠点もある。さらに大きな焼成収縮のために加工の取り代が大きくなることも加工能率、加工コストの面で問題がある。大型部材の作製は焼成収縮による変形、割れなどにより、現在でも難しいとされている。

そこで、接合技術により小型の単純形状物を組み合わせることによって大型部材や複雑形状物の作製が可能になれば、製造工程の面からセラミックスの構造部材としての応用も拡大すると考えられる。

本研究はできるだけ簡単な方法で接合し、接合強度等を評価することを目的として行っている。^{1) 2)} 今回は、大気中で接合できることから B_2O_3 - PbO 系、 B_2O_3 - ZnO - SiO_2 系の低融点酸化物溶剤を使用してアルミナ焼結体同士を接合し、接合強度を測定するとともに、接合界面付近の観察を行ったので報告する。

2. 実験

(1) 接合部材

接合試験に使用した部材は、第2報²⁾と同様に共立窯業原料(株)より購入した92%アルミナ焼結体である。大きさは $7 \times 10 \times 30$ mmであり、接合面とした 7×10 mmの面はあらかじめ $10 \mu m$ のダイヤモンド研磨材で仕上げてあるものである。

なお、この実験を行うにあたり、金属部材として炭素鋼とステンレス鋼も用意したが、酸化雰囲気(大気中)で加熱処理を行って接合するために部材が酸化してしまい、接合はほとんど不可能であったことを加えておく。

(2) 酸化物溶剤の調製

実験に使用した溶剤は、文献^{3)~7)}を参考に表1に示す3系統9種類の低融点酸化物溶剤を選び、調製して使用した。表中の性状は接合処理後の溶剤が非晶質性であるか結晶性であるかを示している。

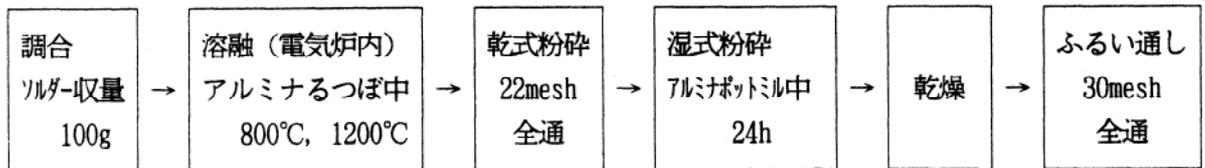
各溶剤は特級試薬の二酸化けい素(SiO_2)、酸化亜鉛(ZnO)、酸化鉛(PbO)、ほう酸

(H_3BO_3)、炭酸バリウム ($BaCO_3$) を使用し、加熱溶融して溶融物が100gとなるように調合した。調合物はアルミナるつぼに入れ、電気炉内で溶融後、湿式粉碎して保存した。図1-aにソルダの調製方法を表1中に溶融温度等を示す。

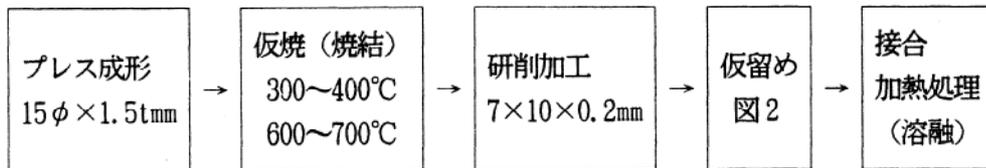
表1 低融点酸化物ソルダの組成及び溶融温度、接合温度

	調合時の組成 (%)					性 状	加 熱 温 度			参考 文献
	B_2O_3	PbO	SiO_2	ZnO	BaO		溶融温度	仮焼温度	接合温度	
1	30	70				非晶質	800°C	300~400°C	800°C	3)4)
2	30	60		10		非晶質	800	300~400	800	3)4)
3	30	60			10	非晶質	800	300~400	800	3)4)
4	15	70		15		結晶性	800	300~400	800, 600	3)4)
5	15	80		5		結晶性	800	300~400	800	3)4)
6	10	77	3	10		結晶性	800	300~400	800, 600	5)6)
7	25		15	60		結晶性	1200	600~700	1200, 1000	3)4)
8	25		10	65		結晶性	1200	600~700	1200, 1000	3)4)
9	25	5	10	60		結晶性	1200	600~700	1200, 1000	3)4)

- ① B_2O_3 -PbO系非晶質性ソルダ 1~3
- ② B_2O_3 -PbO-ZnO系結晶性ソルダ 4~6
- ③ B_2O_3 -ZnO- SiO_2 系結晶性ソルダ 7~9



1-a ソルダの調製方法



1-b ソルダの成形および接合手順

図1 ソルダの調製方法および接合体の作製方法

(3) ソルダの成形

溶融、粉碎して調製したソルダーは粉体の状態では扱いにくいので、 $15\phi \times 1.5\text{mm}$ 程度の大きさにプレス成形した後、仮焼、研削して $7 \times 10 \times 0.2\text{mm}$ 程度に加工し、接合に使用した。図1-bにソルダーの成形方法および接合方法を示す。

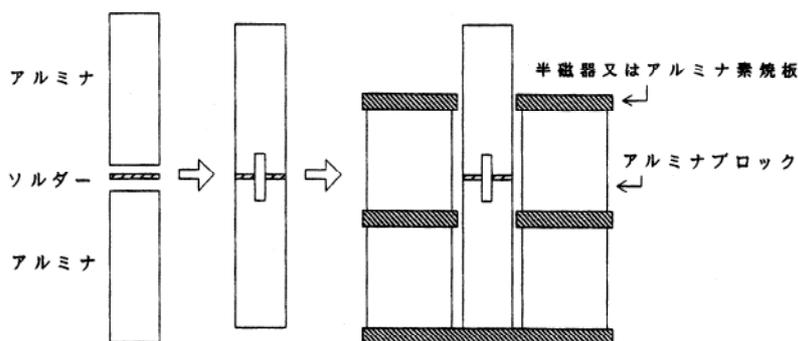


図2 接合体作製の固定方法

(4) 接合方法

アルミナ焼結体および成形したソルダーはアセトンで洗浄、脱脂した後、図2に示すようにセロハンテープで仮留めし、電気炉内にセットして加熱溶融により接合した。上に乗せた部材の自重で溶融したソルダーを押しつける形で、他に荷重は加えていない。加熱条件は図3に示すように接合温度まで昇温速度 $5^\circ\text{C}/\text{min}$ で加熱し、20分間保持した後、ヒーター電源を切り炉内放冷とした。接合温度は表1に記してある。また、接合体は各ソルダーごとに5本作製した。

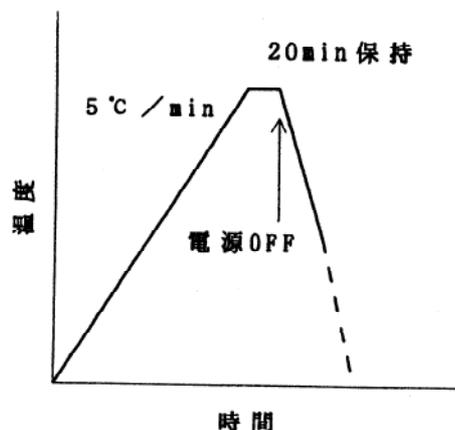


図3 接合体の加熱条件

(5) 接合強度の評価

接合した接合体の接合強度は、4点曲げ試験により求めた。図4に示すように上下スパンはそれぞれ10mm、30mmとし、クロスヘッドスピードを $0.5\text{mm}/\text{min}$ として測定を行った。曲げ試験の終了した接合体は破断した形状と部分、破断面の様子を肉眼観察し強度とともに記録した。

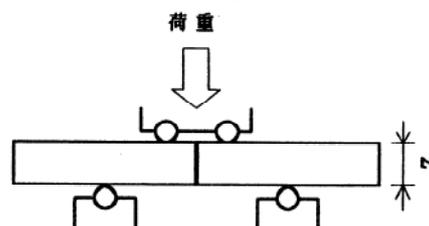


図4 4点曲げ試験方法

(6) 接合界面の観察

4点曲げ試験で高い強度が得られた接合体について、接合界面付近のSEM観察を行うとともに、WDXによりアルミナ部材とソルダー中の主要元素について分布状態を調べた。観察用試料はエポキシ樹脂中に埋め込み接合界面に直角方向に切断した後、 $30\mu\text{m}$ のダイヤモンド研磨盤で研削し $6\mu\text{m}$ と $1\mu\text{m}$ のダイヤモンド研磨材で仕上げてから観察した。

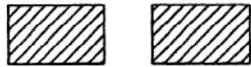
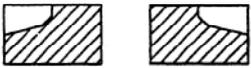
3. 実験結果と考察

(1) 破断形態

4点曲げ試験により破断した接合体は、接合部の溶剤部分で破断するものから、部材のアルミナ部分で破断するものまでであった。破断形態によっては接合強度として同等に扱うことが適当でないと考えられるので、接合強度の結果を考察する前に今回の試験で破断した接合体の破断形態について述べておく。

破断形態は今回の場合、表2および以下に示す5種類に大きく分けられる。大体IからVの順に破断したときの強度が大きくなっているが、溶剤の種類が異なると同じ破断形態でも強度が大きく異なる。

表2 破断形態と破断面の様子

破断形態	破断箇所（側面図）	破断面の様子
I	 接合部、溶剤部で破断	 両面に溶剤が残る
II	 大部分が接合部で破断	 一部分部材の破断を伴う
III	 接合面の角を起点に部材が破断	 角の起点部分に接合面が現れる
IV	 接合面の下端中央を起点に部材が破断	 起点の接合面下端中央が現れる
V	 接合部ではなく部材部分が破断	 部材の破断面が現れる



I - 接合面（溶剤層）で破断したもの

接合部分で破断し、接合面両面に溶剤が残っている。結晶性の溶剤で接合強度があまり大きくないものに多い。

II - 大部分が接合面で破断し、一部分材が破断したもの

接合面の下端の引っ張り応力のかかるところから起こり、接合部分の大部分が破断し、折

れる直前で部材が少し割れたもので、強度はあまり大きくない。しかし、接合面の下端付近から部材の破断を伴っているものは、比較的大きな強度を示す。

Ⅲ－接合面の一部を起点として部材が破断したもの（１）

接合面下端の角の部分の部分を起点として破断し、部材が割れたもの。破断面の観察結果から接合面の現れている部分はあまり大きくなく、部材の大部分は接合面に対して斜めに破断している。

Ⅳ－接合面の一部を起点として部材が破断したもの（２）

接合面下端の中央を起点として破断し、部材が割れたもの。破断面の観察結果から、接合面の現れている面積の小さい方がより強度が大きくなっている。また、ほとんどの接合体が接合面に対して斜めに破断している。（写真 1 参照）

Ⅴ－部材部分で破断したもの

接合部分ではなく部材部分で破断したもの。破断した接合体のほとんどが接合面に近いところで接合面に平行に破断している。

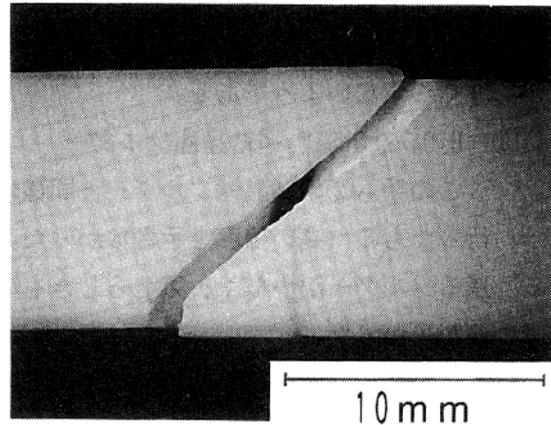


写真 1 破断した接合体
（破断形態 Ⅳ）

(2) 接合強度と接合部、破断の様子

接合強度の測定結果と破断形態を表 3 に示す。表中の破断形態部分の数字は接合体 5 本の破断状況を示している。破断形態は溶剤 3 系統それぞれについてある程度特徴らしき形態が現れているので、それぞれの系統ごとに強度と破断形態の結果を述べる。

① B_2O_3 -PbO 系非晶質性溶剤

この系は、接合処理により接合部から流れ出た溶剤が透明で光沢があることから非晶質性であることが容易にわかるものである。また、接合処理を行った接合体は、溶剤した溶剤が上に乗せた部材の側面を少し昇って濡らしている。しかし、ZnO を含む溶剤では少し結晶化した部分が認められ接合強度が他の 2 種より少し小さくなっている。

接合体の破断形態はⅢ～Ⅴのものが多いために破断強度も大きい。また、Ⅰの接合部で破断した接合体でも 100MPa を越える強度を示し、ZnO を含む溶剤では 5 本中で最大の 125MPa が得られている。溶剤の調製時の温度で接合した結晶性溶剤では、Ⅰの形態は強度があまり高くないことから結晶性とは異なる性質を持つと思われる。

② B_2O_3 -PbO-ZnO 系結晶性溶剤

この系は接合処理によって結晶化するタイプである。溶剤調製時の温度で接合したものは ZnO の少ない溶剤以外の 2 種は接合部で破断し、あまり大きな強度が得られなかった。破断面を観察すると発泡したような様子で、気泡の壁のみで接合しているようであった。

溶剤の大部分が流れ出たので接合処理温度が高すぎるのではないかと考え、調製

温度より200℃低い600℃で接合を試みた。しかし、ソルダーが流れ出るのを抑えたのみで、流出しなくなった分だけ厚く結晶化してしまい、接合部で破断する結果となった。また強度の向上もほとんど認められなかった。

この中でZnOの少ないソルダーは比較的大きな強度を示しているが、ZnOが少ないために結晶化が少し起こりにくいらしく非晶質の部分を少し含んでいた。破断形態も①の非晶質性ソルダーと同じようにⅢ、Ⅳの形で起こり100MPaを越える強度を示しているが、Ⅱの形態のものだけが低い値を示した。①の結果も含めて、800℃で調製できるソルダーはZnOを含むことにより結晶化が起こり易くなり、アルミナとの接合性に何らかの影響を与え、接合強度が大きくなるようである。

③ B₂O₃-ZnO-SiO₂系結晶性ソルダー

この系も②の結晶性ソルダーと同様に、ソルダーの調製時の温度(1200℃)で接合処理を行ったものは高い強度を示さなかった。破断面の観察結果から②の場合に比較して接合部に残るソルダーが少なく、気泡らしきものも小さく少なかったが、破断形態はⅠ、Ⅱの形のものが多かった。

これも加熱処理により接合部からソルダーがほとんど流れ出てしまったことから、処理温度を200℃低い1000℃で接合を試みた。これによりソルダーは接合部から少しはみ出した程度になり、白く結晶化した様子を示すようになった。破断形態はSiO₂量が15%のソルダーでⅣ、Ⅴの形態へ変化し部材が破断して約200MPaの強度になっているが、基本的には1200℃で処理した場合と同様にⅠ、Ⅱの形態が多かった。しかし、Ⅱの形態であってもアルミナ部材が破断している部分が多くなっていることより強度は著しく大きくなり、ZnO量が65%のソルダーでは1200℃で接合した場合に比較して平均強度で100MPa以上も大きくなり約170MPaの強度が得られた。

ソルダーの組成の面から、1000℃ではSiO₂量の減少、PbOの添加により強度が低くなり、1200℃では逆にSiO₂量の多いものは強度が低くなっている。この系のソルダーは調製時に他の系のソルダーに比べてアルミナるつぼの侵食が激しかったことから、SiO₂量とZnO、PbOのどちらを主成分とするかによりアルミナとの接合性に影響を及ぼして、強度を高くしていると考えられる。

表3 接合強度と破断形態

① B₂O₃-PbO系非晶質性ソルダー

ソルダー 番号	組 成				接合温度 (°C)	接 合 強 度 (MPa)				破 断 形 態				
	B ₂ O ₃	PbO	ZnO	BaO		最大値	最小値	平均値	標準偏差	Ⅰ	Ⅱ	Ⅲ	Ⅳ	Ⅴ
1	30	70			800	193.4	139.2	167.04	20.9866			2	2	1
2	30	60	10		800	125.4	91.1	105.46	12.9765	1	2	1	1	
3	30	60		10	800	196.5	103.7	152.60	38.4375	2			1	2

② B₂O₃-PbO-ZnO系結晶性溶剤

溶剤 番号	組 成				接合温度 (°C)	接 合 強 度 (MPa)				破 断 形 態				
	B ₂ O ₃	PbO	ZnO	BaO		最大値	最小値	平均値	標準偏差	I	II	III	IV	V
4	15	70	15		600	58.5	37.9	49.04	7.1338	5				
6	10	77	10	3	600	46.4	35.4	42.06	4.1278	5				
4	15	70	15		800	66.0	45.6	59.00	7.1964	5				
5	15	80	5		800	124.8	60.6	107.80	24.1703		1	2	2	
6	10	77	10	3	800	34.0	20.0	27.52	4.4911	5				

③ B₂O₃-ZnO-SiO₂系結晶性溶剤

溶剤 番号	組 成				接合温度 (°C)	接 合 強 度 (MPa)				破 断 形 態				
	B ₂ O ₃	PbO	ZnO	BaO		最大値	最小値	平均値	標準偏差	I	II	III	IV	V
7	25	60	15		1000	259.7	148.7	201.36	35.9483				3	2
8	25	65	10		1000	269.1	61.6	170.98	66.4732		4	1		
9	25	60	10	5	1000	132.2	57.8	94.94	26.4850	2	2	1		
7	25	60	15		1200	58.1	49.9	53.84	3.3314	3	2			
8	25	65	10		1200	82.8	37.7	58.82	17.4651	1	3	1		
9	25	60	10	5	1200	92.2	47.9	60.24	16.4498	2	2	1		

(3) 接合界面の観察

接合界面の様子は、SEMによる二次電子像と反射電子像（組成像）、およびWDXによる元素分析で解析を行ったが、全ての溶剤の主要成分であるほう素（B）については十分な分析ができなかったため界面付近の状況を明らかにすることはできていない。また、破断状況によりすべての溶剤について分析を行ったわけではないが、各系統の代表的な溶剤についてその結果と特徴を以下に示す。

① B₂O₃-PbO系非晶質性溶剤

この系では、B₂O₃(30)-PbO(70)とB₂O₃(30)-PbO(60)-BaO(10)について観察を行った。（以後、溶剤の組成をこのように表す。）代表例として写真2にB₂O₃(30)-PbO(70)の二次電子像、主要元素の線分析の結果、および反射電子像を示す。写真真中の20μmの帯状で少し気泡が存在する部分が溶剤部分である。アルミナと溶剤の界面での状況は、元素分析の結果よりSiの濃度が溶剤部分で母材部分より高くなっていることから、アルミナの界面付近で溶剤に侵食された部分が溶出しているようである。一方、溶剤中のPbは線分析の結果、少量ではあるがアルミナ中に侵入している様子を示したので、唯一の重元素であることから、反射電子像（組成像）を観察したところ溶剤層の厚みと同程度の深さ（20μm程度）にアルミナ側へ拡散していることが認められた。

接合体の数が少ないために確信できないが、この系ではアルミナ部材と溶剤が接合処理により相互に溶融、拡散することによって比較的低温で接合でき、接合部で破断しても高い強度が得られたと考えられる。

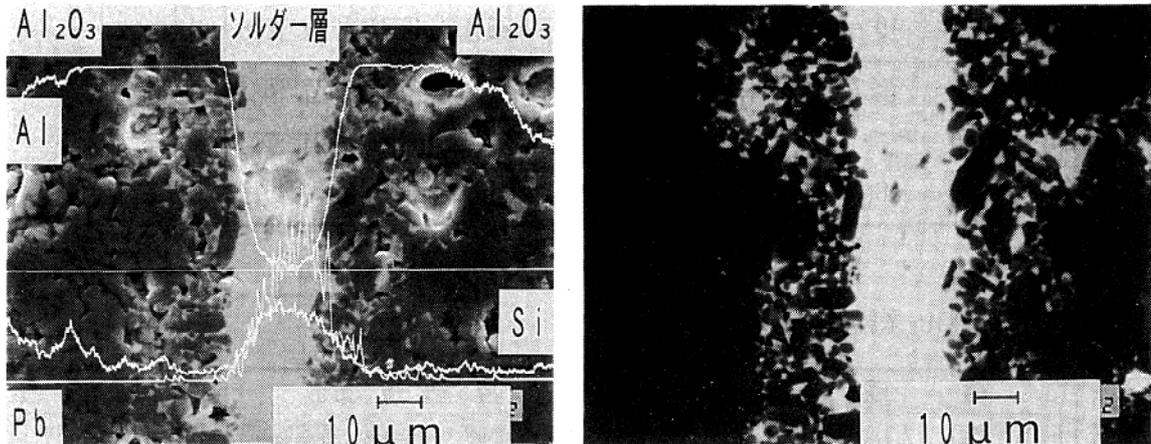


写真2 接合部断面の様子 $B_2O_3(30)-PbO(70)$
 (左)二次電子像および線分析結果 (右)反射電子像(組成像)

② $B_2O_3-PbO-ZnO$ 系結晶性溶剤

この系は高い接合強度が得られた $B_2O_3(15)-PbO(80)-ZnO(5)$ のみ観察を行った。写真3に二次電子像、反射電子像を示す。写真中央の幅 $30\mu m$ くらいの白っぽい中に細かい粒子らしきものが存在する部分が溶剤部分である。元素分析を行うと溶剤部分のSi濃度がアルミナ中の濃度と比較して高くなっており、Alも少し認められ①の非晶質性溶剤と同様の状況を示している。Pbについても①の非晶質性溶剤と同様にアルミナ中へ侵入しているが、PbO量が多いためその深さは溶剤層の厚さの約2倍である $50\sim 60\mu m$ までになっている。溶剤部分中にアルミナ部材の粒子らしきものが存在するように見えるが、今回の観察ではアルミナ粒子であるかどうか確認できなかった。

この溶剤は組成、性状ともに①の非晶質性溶剤に近い①の場合と同じような結果を示した。

③ $B_2O_3-ZnO-SiO_2$ 系結晶性溶剤

この系は3溶剤とも組成が類似しているので $B_2O_3(25)-ZnO(60)-SiO_2(15)$ を代表として観察を行った。写真4に二次電子像とSi、Znの線分析結果、反射電子像、およびZnの面分析結果を示す。各写真の中央の幅 $30\mu m$ の帯状部分が溶剤部分である。二次電子像を見ると溶剤中に細かい結晶が析出している部分が確認でき、溶剤部分は均質でないことがわかる。界面付近の状態についてAl、Si、Znの線分析を行った結果、元素の拡散が起こっていることが認められたが、①、②の場合のように溶剤層と同程度の範囲ではなく $10\mu m$ 程度の範囲で起きていることがわかった。写真を比較して、反射電子像の明るい部分がZnに対応していると想像できることから、溶剤の成分はアルミナへあまり拡散しないで界面 $10\mu m$ 程度の範囲で起きていることがわかる。また、接合温度を $200^\circ C$ 低くす

ることにより強度が著しく向上したことから、ZnOを主成分とするこの系の溶剤はPbOを主成分とする他の溶剤とは異なる接合機構であることが想像される。

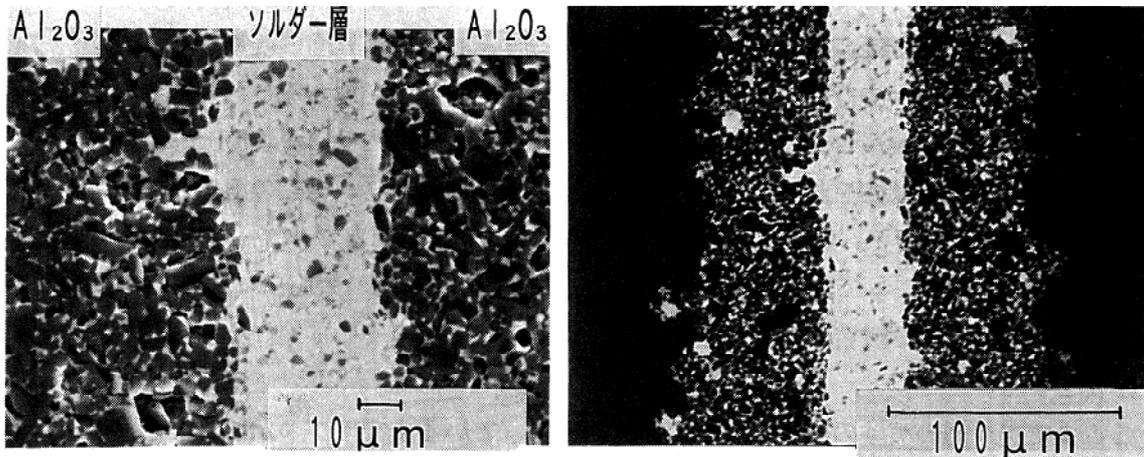


写真3 接合部断面の様子
(左)二次電子像 (右)反射電子像(組成像)
B₂O₃(15)-PbO(80)-ZnO(5)

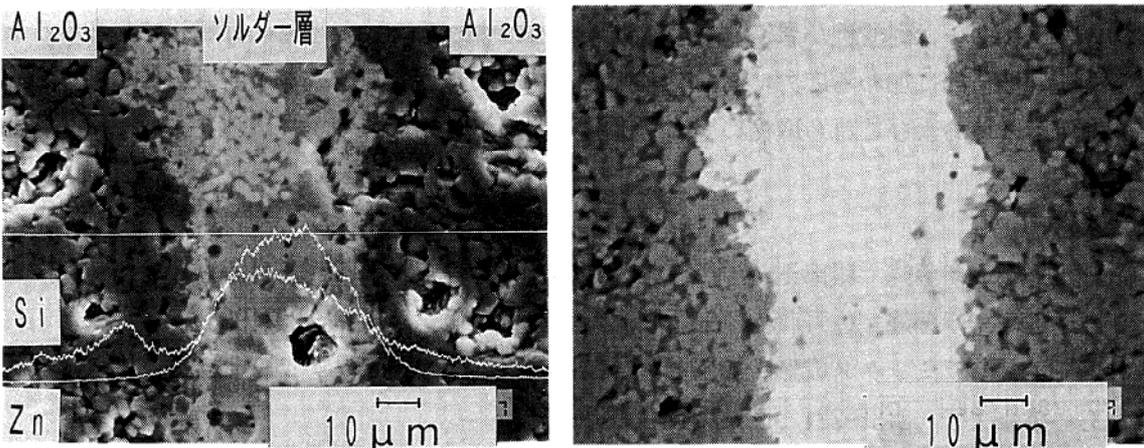
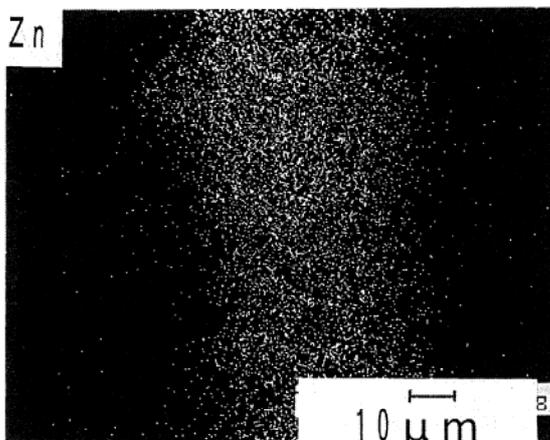


写真4 接合部断面の様子
B₂O₃(25)-ZnO(60)-SiO₂(15)
(左上)二次電子像および線分析結果
(右) 反射電子像(組成像)
(左下)亜鉛(Zn)の面分析結果



いずれにしても、分析数が少ないことと溶剤の主要成分であるほう素(B)について十分な分析ができていない。ほう酸(B₂O₃)は結晶性溶剤においてPbO, ZnOと結晶相を生成するので、接合性に何らかの影響を与えていると考えられ、その挙動を調べる必要がある。また、接合性と接合強度の関係を調べるには更なる調査・研究が必要である。

4. おわりに

ソルダーの調製、成形が比較的工程数が多く、時間も必要とするが、アルミナなどの酸化物セラミックス同士の接合に大気中で加熱処理を行うだけで接合できる低融点酸化物ソルダー法について、アルミナ同士の接合を行い接合強度を調べるとともに接合界面の観察を行った。

その結果、簡単な手法でありながら接合強度が平均で100MPaを越えることがわかった。接合界面付近の観察では、観察した数が少ないため十分であるとは言えないが、 B_2O_3 -PbOを主成分とする非晶質性（一部結晶性を含む）ソルダーではアルミナとソルダー相互の溶出、拡散が生じていることがわかった。 B_2O_3 -ZnO-SiO₂系のソルダーではアルミナとソルダー間の元素の拡散は10 μ m程度の範囲で起こっていることがわかった。しかし、試験の数が少ないので接合強度と界面における反応および接合性の関係を明らかにすることはできていない。更に詳しい調査・研究を必要とする。

ここまでの今回の実験の結果であるが、実験を行っている上で気がついたことを最後に付け加えておく。実験に使用したソルダーの中には、300～400℃で仮焼して成形したものがあることから耐熱性があまりないということである。また、仮焼前では非晶質であったものが仮焼により結晶化したり、温度が高いと発泡したりして接合前の取扱いが難しいものがあったこと。更には、これらのソルダーは耐酸性が悪く、塩酸、硝酸などの少し濃い酸で容易に分解してしまうことなどである。接合部に加わる応力に対して必要とされる接合強度の達成も重要であるが、実際の使用には使用環境およびこれら取扱い等にも十分な調査が必要である。

参考文献

- 1) 日比野剛, 伊藤隆, 服部正明, 三重県窯業試験場年報, 25, 39～46(1991)
- 2) 日比野剛, 伊藤隆, 佐野茂樹, 三重県窯業試験場年報, 27, 14～20(1993)
- 3) ファインセラミックス成形・加工と接合技術編集委員会編, ファインセラミックス成形・加工と接合技術, 213～221, 工業調査会(1989)
- 4) 例えば, 高塩治男, 工業材料, 32[7], 48～52(1984)
- 5) 斉藤昭三他4名, 静岡県工業技術センター研究報告, 31, 51～56(1986)
- 6) 斉藤昭三他4名, 静岡県工業技術センター研究報告, 31, 57～63(1986)
- 7) 斉藤昭三他2名, 静岡県工業技術センター研究報告, 32, 43～47(1987)

(4) セラミックスと金属の接合に関する研究 (第4報)

「金属溶ダ―法によるアルミナと金属の接合」

材料開発部門 日比野 剛

1. はじめに

近年の技術の発達により、機械部品をはじめとする構造材料に要求される性能は多様化するとともに厳しくなっている。そのため、従来からの材料単独では要求される性能に十分対応しなくなり、新しい材料の開発や異なる材料を組み合わせることで複合化・高機能化を図ることが必要とされている。

そのなかで、セラミックスは従来からの金属材料に比較して、高温強度、耐摩耗性、耐食性等に優れることから構造材料として使用されるようになってきた。しかし、セラミックスは製造工程中に大きな焼成収縮を伴うために大型・複雑形状物の作製が難しく、また難加工性、切り欠き感受性が高いために研削加工等を行って使用するには歩留りが悪く多大なコストが必要となるなどの難点がある。そのためセラミックス単独で構造材料として使用することはあまり得策ではない。

そこで、セラミックスと金属の複合化により、金属部材の一部をセラミックスで置換することなどを行えば、セラミックスの加工量を少なくすることができ欠点を補うことも可能になる。また、複合化を行いそれぞれの材料の特長を生かすことができれば、材料・部品としての高機能化を図ることができ、利用分野も拡大するものと考えられる。

本研究はセラミックスと金属の接合に関して、できるだけ簡単な方法で接合し接合強度を評価することを行ってきた。^{1) 2) 3)}ここでは、表面処理等を必要とせず直接接合できることから、Ag-Cu-Ti系の金属ろうを使用した金属溶ダ―法によるアルミナと金属の接合を行った。そして、接合体の接合強度の測定および接合部界面の組織観察、元素分析を行ったので報告する。

2. 実 験

(1) 試 供 体

実験に使用したセラミックスは第2報²⁾、3報³⁾と同様に共立窯業原料(株)より購入した92%アルミナ焼結体であり、接合する面はあらかじめ10 μ mのダイヤモンド研磨材で仕上げているものである。部材の大きさは7 \times 10 \times 30mmで、7 \times 10mmの面を接合面とした。金属部材も同様に構造用炭素鋼のS45Cとステンレス鋼のSUS304、SUS403を使用した。接合面は接合処理を行う直前に回転式研磨盤で#400のSiC耐水紙を使用して研磨加工を行った。

溶ダ―は田中貴金属工業(株)製のTKC710(Ag-Cu-Ti系金属ろう)、厚さ100 μ mのものを6 \times 9mmの大きさに切断して使用した。溶ダ―の接合温度は790 \sim 850 $^{\circ}$ C(カタログ値)であるが、実際の接合操作と同じ方法で予備実験を行い接合温度を決定した。

アルミナと金属の間の熱膨張係数の差から接合部に生じる応力を緩和する目的で、熱膨張係数は比較的大きいが軟らかい材料のCu(脱酸銅)と熱膨張係数はアルミナに近いが硬い材料の

チタン (Ti, JIS 1種相当) を中間層として使用した。それぞれ厚さ0.5mmと1.0mmの板を用意し、7×10mmの大きさに切断、整形した。これを接合前に表面を#400のSiC耐水紙で軽く研磨してから使用した。

表1に使用した材料の熱膨張係数を示しておく。

表1 金属およびセラミックスの熱膨張係数 (文献値)

	熱膨張係数
Cu	$16.5 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ (20°C)
Ti	$8.4 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ (20°C)
S45C(Fe)	$11.5 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ (0~100°C)
SUS304	$17.3 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ (0~100°C)
SUS403	$10.4 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ (0~100°C)
Al ₂ O ₃	$7.9 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ -

(2) 接合体の作製

接合体はアセトンで洗浄、脱脂した部材、溶剤および中間層を図1に示すようなカーボン製のダイスにセットした後、接合面に約4.9MPaの荷重を加えながら真空中で加熱して作製した。接合に使用したプレス付き真空熱処理装置 (真空炉) の炉体部分の模式図を図2に示す。

加熱および加圧条件は図3に示すように、接合面に約4.9MPa (プレス装置で可能な最低の加圧力) を加えながら真空中で850°Cまで5°C/minで昇温、20min保持した後、再び5°C/minで室

温まで冷却するものとした。接合面に加えている荷重は冷却中に400°C以下になった時点で取り除いた。また、接合温度とした850°Cは、5°C/minで昇温、20min保持により溶剤が十分溶融して接合できる温度であり、予備試験を行って求めたものである。

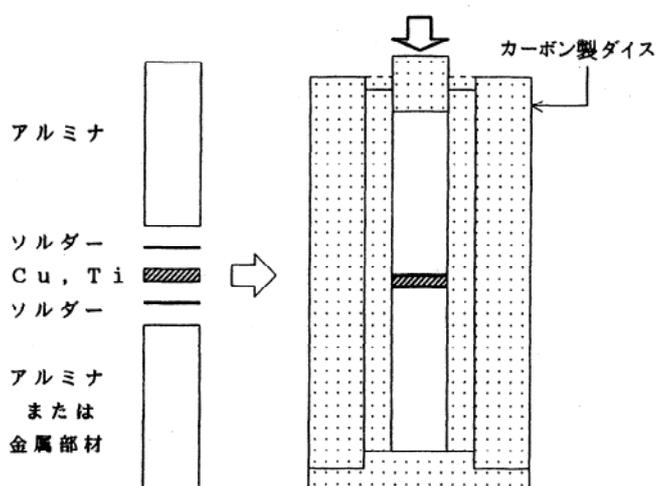


図1 試験片のセット様式

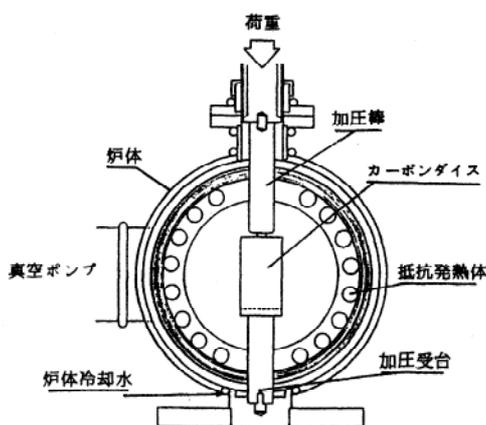


図2 真空炉の炉体模式図

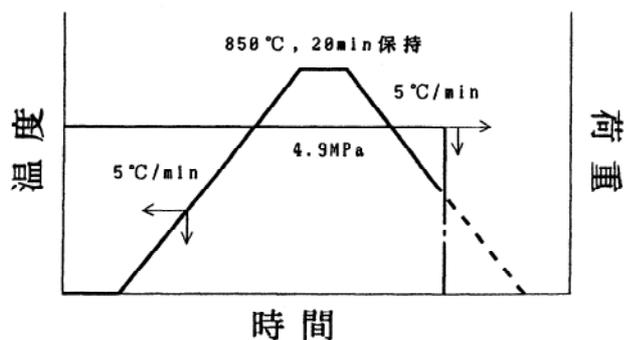


図3 接合体作製の加熱・加圧条件

今回の試験で行った、部材および中間層の組み合わせを表2に示す。なお表中の数は接合体を作製した本数を表す。

表2 接合体の部材および中間層の組み合わせ

接合部材	TKC710のみ	Cu 0.5mm	Cu 1.0mm	Ti 0.5mm	Ti 1.0mm
Al ₂ O ₃	3本	4	—	3	—
S45C	—	5	1	1	—
SUS304	—	6	2	1	1
SUS403	—	5	2	1	1

(接合強度の測定を行ったもの)

(3) 接合強度の測定

接合強度は室温で図4に示すように4点曲げ試験を行うことにより求めた。上下スパンはそれぞれ10mm、30mmとし、クロスヘッドスピードを0.5mm/minとして行った。曲げ試験により破断した接合体は破断箇所と破断面を肉眼で観察し、強度とともに記録した。

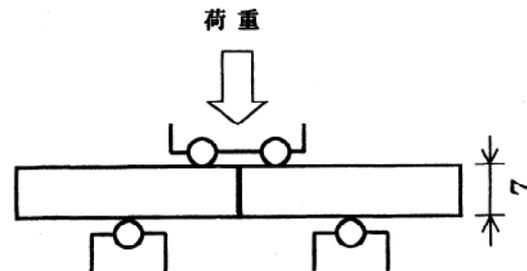


図4 4点曲げ試験

なお、接合部より接合体の側面にはみ出ている溶剤は、量が多いものについて#400のSiC耐水紙で研削してから測定を行った。

(4) 接合部界面の観察

部材の組み合わせそれぞれに接合強度が最も高かった接合体について、接合部界面付近のSEM観察を行うとともに、WDXにより主要元素の分布状態を調べた。観察用試料は接合部近傍を切断してエポキシ樹脂中に埋め込み、接合部界面に直角方向に切断した後、30μmのダイヤモンド研磨盤と6μm、1μmのダイヤモンド研磨材で仕上げてから観察した。

3. 結果と考察

(1) 接合強度と破断部の状況

① アルミナ同士の接合

接合体は曲げ試験を行う前に反射顕微鏡で接合部の近傍を観察し、クラック等がないことを確認した。接合強度の測定結果を表3に示す。接合体は全て接合部近傍で破断している(写真1)。写真では部材の片側のみで破断しているように見えるが、TKC710のみで接合した場合には両側の部材部分の割れを少し伴って、溶剤部分で破断している。また、溶剤とアルミナとの接合はあまり強固ではないらしく、剝離している部分も認められた。Cu、Tiを中間層とした場合も同様で、破断した側の部材の接合面全面が中間層に付着しているわけではなく、部材と溶剤の間で剝離している部分が認められた。また、中間層が

残っている側の部材でも接合部で割れ、剝離が起こっており、曲げ試験により引っ張り応力が加わる部分には少し隙間ができていた。

接合強度は、溶ダのみによる接合よりも、中間層を使用した場合の方が高い強度が得られ、Cuの場合、平均強度で約100MPa、Tiで約120MPaが得られた。このことは破断面の観察で、溶ダのみに接合した場合の方が剝離している部分が多かったことから、溶ダとアルミナとの接合力が溶ダと中間層との接合力に比較して強くないこと、薄い溶ダ層のみで2個のアルミナを直接接合したことによるものと考えられる。中間層と溶ダとの接合力は、中間層が溶ダ中の1成分から成ることから、アルミナとの接合力より強固なことは明らかである。

中間層がCuとTiの場合で強度に差があることは、溶ダと中間層との接合力の違いと、熱膨張係数の大きさによるものと考えられる。前者の接合力については直接測定することができないのでわからないが、後者の熱膨張係数の大きさに関しては、Cuに比べてTiの方がアルミナに近い大きさであるので、アルミナ側の接合部近傍に加わる応力が小さく、高い強度が得られたと推察できる。

表3 アルミナ同士の接合強度(MPa)

中間層	試料数	最大強度	最小強度	平均強度	標準偏差
TKC710のみ	3	78.0	42.7	66.1	16.57
Cu 0.5mm	4	120.1	78.5	103.2	15.46
Ti 0.5mm	3	132.0	107.1	122.8	11.18

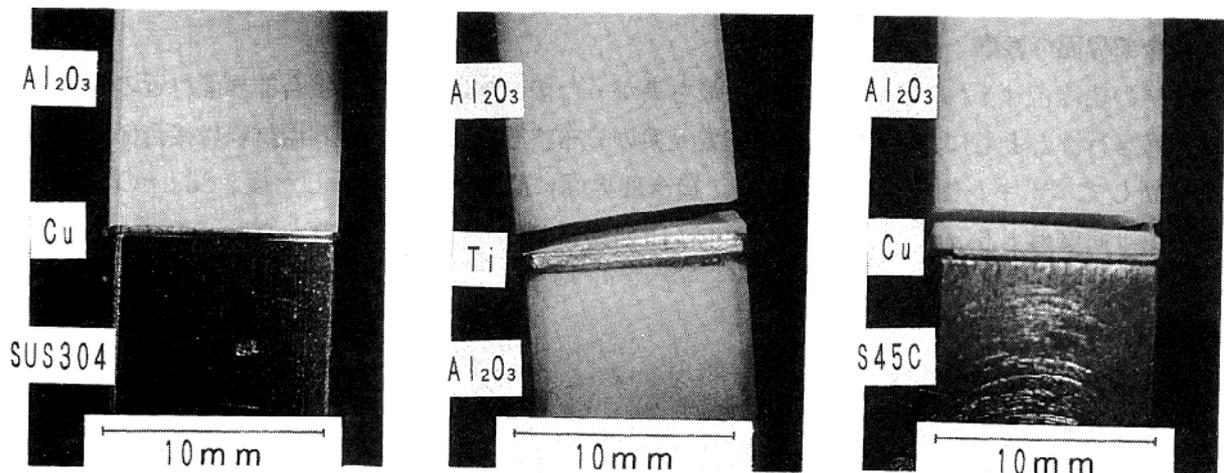


写真1 接合体および破断した接合体の接合部

(左)接合体 Al₂O₃-Cu0.5mm-SUS304

(中)破断した接合体 Al₂O₃-Ti0.5mm-Al₂O₃

(右)破断した接合体 Al₂O₃-Cu0.5mm-S45C

② アルミナと金属の接合

接合強度の測定結果を表4に示す。曲げ試験前の顕微鏡による接合部の観察で、Cuを中間層とした場合はアルミナの接合部近傍にクラック等の発生は認められなかった。しかし、Ti

の場合にはどの部材の組み合わせにおいてもクラックが発生しており、それが原因となって低い強度しか得られなかった。

曲げ試験により試験片は全てアルミナ側の接合部近傍で破断した(写真1)。これは接合に関する種々の文献^{4) 5)}から、金属とセラミックスの熱膨張係数の差からアルミナの接合部近傍に応力が生じることによって起こるものである。破断面を観察すると、アルミナ同士の接合同様に、アルミナと中間層との接合は十分なものではなく一部分に溶ダ部分で剝離しているところが認められた。中間層と金属部材との接合部は、肉眼観察で隙間等が認められないので十分な接合ができていると考えられる。

表4 アルミナと金属の接合強度(MPa)

	中間層	試料数	最大強度	最小強度	平均強度	標準偏差
S45C	Cu 0.5mm	5	90.7	40.8	67.4	17.58
	Cu 1.0mm	1	—	—	74.8	—
	Ti 0.5mm	1	—	—	18.6	—
SUS304	Cu 0.5mm	6	66.5	40.9	51.8	10.10
	Cu 1.0mm	2	61.9	50.1	56.0	5.90
	Ti 0.5mm	1	—	—	16.1	—
	Ti 1.0mm	1	—	—	13.2	—
SUS403	Cu 0.5mm	5	119.2	79.0	93.2	14.11
	Cu 1.0mm	2	99.7	86.6	93.2	6.55
	Ti 0.5mm	1	—	—	26.7	—
	Ti 1.0mm	1	—	—	16.3	—

接合強度は部材の種類別では、SUS403が最も高く、Cuを中間層とした場合において平均強度で約90MPa、最大強度で約120MPaが得られた。以下S45C、SUS304の順となっている。これは金属部材の熱膨張係数の小さい順でアルミナの熱膨張係数に近くなることから、熱膨張係数がこの中で一番小さいSUS403で最も高い接合強度が得られたことに対応する。

中間層の種類別では、どの部材の組み合わせでもCu1.0mmを使用した場合が最も高い強度を示し、以下Cu0.5mm、Ti0.5mm、Ti1.0mmの順となっている。Cuの熱膨張係数は比較的大きくSUS304に近いものであるが、Cu自体が軟らかいので膨張係数の差から生じる応力を変形等により緩和するものと考えられる。1.0mmの方が0.5mmの場合に比べて接合強度が高いのは、厚みによる効果で厚みが増すことにより応力をより緩和することができるため、アルミナに加わる応力を小さくしたものと考えられる。

一方、Tiの場合はCuとは逆に1.0mmの方が接合強度が小さくなっている。また、TiはCuよりも熱膨張係数は小さくアルミナのそれに近いが、Cuの場合よりも接合強度が小さくなっている。このことはTiを中間層とした場合に、接合体のアルミナ側の接合部付近にクラック

が発生していたことにも関連して、TiがCuに比較して硬い材料であるため変形等により応力を十分に緩和できなかったものと考えられる。また、接合部の観察から、溶剤が800℃くらいの温度で固化するためにTi板が膨張した状態で固定されていたことから、本来は応力を緩和する意図で中間層としたものが、逆に金属部材の膨張に引っ張られてアルミナ側へ応力を加える形になってしまったようである。また、溶剤中のCuはTiとの間で硬い金属間化合物を形成するようで、このこともTiを中間層とした場合にクラックが発生する原因と考えられる。

(2) 中間層の影響

接合部に熱膨張係数の差から発生する応力の緩和を目的として中間層にCuとTiの板を使用した。今回の実験によりアルミナ同士の同種材料を接合する場合と異種材料を接合する場合ではその役割が異なるようである。溶剤のみによるアルミナ同士の接合では、溶剤とアルミナの接合があまり強くない、溶剤層の強度もあまり高くないために、高い接合強度は得られなかった。しかし、中間層を挿入することで、曲げ試験で接合部に加わる応力を1面ずつ分散して接合を補強するはたらきをしたようである。そのために、アルミナの熱膨張係数に近く強度もあるTiの方が高い接合強度が得られたと考えられる。

一方、アルミナと金属の接合においては応力緩和材としての役割を果たしている。Cuを中間層とした場合には、意図どおり接合部材間の熱膨張差により発生する応力を変形等により緩和している。実際に変形を調べたわけではないが、このことはどの接合体においても1.0mmを使用した方が0.5mmのときよりも高い接合強度が得られたことから容易に推察できる。しかし、Tiの場合は熱膨張係数がアルミナと金属部材の間の大きさであることから、応力を緩和できるものと考えられたが、実際はCuに比べて変形等を起こしにくいため十分に応力緩和機能を果たすことができなかったようである。

また、CuとTiの場合では接合部の状況も異なり、そのことが強度へ影響を及ぼしていると考えられるが、強度との関係は調べていないので次項で接合部界面の観察結果を述べるにとどめておく。

(3) 接合部界面の観察

接合体の接合部のSEM観察とWDXによる元素分析を行い、接合部界面の状況を調べた。しかし、今回の実験では観察数が少なく十分な分析もできなかったため、接合機構、接合強度との関係を明らかにするまでには至らなかった。また、中間層と金属部材との接合は十分強固なものであるが、この接合は容易であることと、セラミックスと溶剤および中間層の接合部の方が重要であると考えられるので、アルミナと中間層の間についてのみ観察を行った。

部材の各組み合わせで最も高い強度が得られた試験片を観察した結果、アルミナと中間層の組み合わせが同じもの（以下に述べる3種類）では、同様な観察結果が得られた。接合部の状況が同じであっても接合強度が大きく異なることは、部材の組み合わせと応力緩和の手法による部分が多いと言える。

以下にその3種類について、観察結果を示す。

① アルミナーソルダーアルミナ界面

写真2に二次電子像、反射電子像（組成像）、WDXによる面分析結果を示す。これはソルダーのみによるアルミナ同士の接合体である。

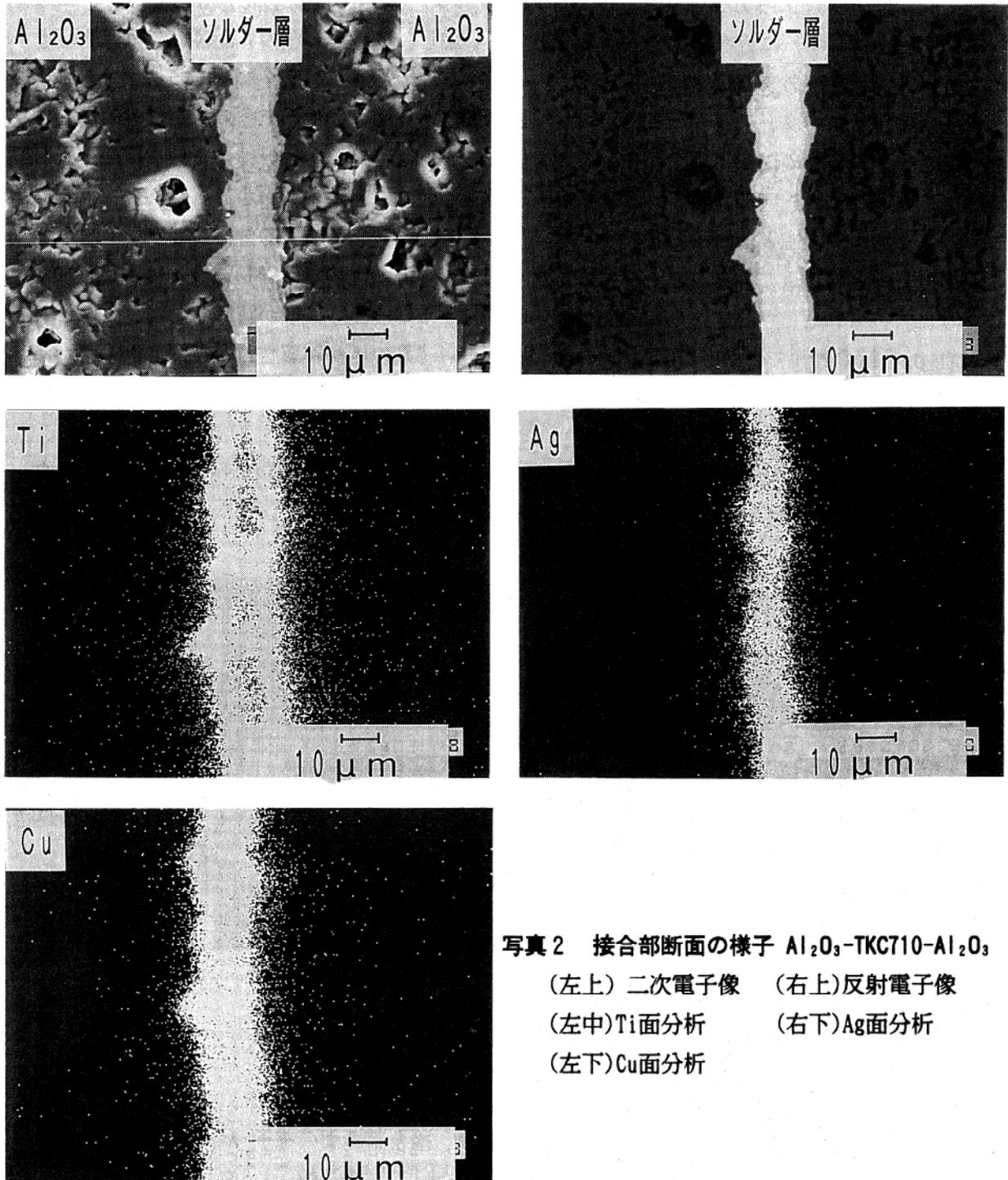


写真2 接合部断面の様子 Al_2O_3 -TKC710- Al_2O_3
(左上) 二次電子像 (右上) 反射電子像
(左中) Ti面分析 (右下) Ag面分析
(左下) Cu面分析

二次電子像と反射電子像から、ソルダー層には分相が起こり、内部とアルミナとの界面部分では組成が多少異なっていることがわかる。さらにWDXによる面分析の結果から、Tiはアルミナとの界面付近に偏析していることがわかる。Tiは銀ろうなどを使用した金属ソルダー法では、セラミックスとソルダーとの濡れ性を向上させるために添加される成分であ

る。しかし、Ti量を増加させると介在層の強度が上昇しすぎることがあり⁴⁾、接合強度はあまり期待できないとされている⁵⁾。また、アルミナ同士の接合において、Tiの接合境界面への偏析は接合強度の高いものほどその偏析量は少ないと報告されている⁶⁾。

Cuは面分析による分布状態と二次電子像の溶剤層の形状が一致することから、溶剤層全体に均一に分布しているようである。しかし、アルミナとの界面付近では、アルミナとの濡れ性があまり良くないこととTiの偏析により少し濃度が低くなっている。

AgはTiとは逆に、アルミナとの親和性が良くないようで、アルミナとの界面付近の濃度は低く溶剤層の内部に多く存在している。このことは、Agの面分析による分布状態と反射電子像の溶剤層内部の明るい部分が良く一致していることからわかる。

アルミナ側の主要成分としてSiとAlが挙げられるが、WDXによる分析の結果、Siは溶剤層との界面付近で拡散が起こっているようだが、今回の実験では詳しいことはわからなかった。一方、Alは溶剤層との界面の狭い範囲で溶剤層への拡散が認められた。これは、 Al_2O_3 とTiの界面での反応に関して、Ti-Al系やTi-Al-O系の相が確認された多くの例^{4) 5)}があるので、このような反応が起きているものと考えられる。

② アルミナ-溶剤-Ti界面

写真3に二次電子像、WDXによる線分析結果を示す。これはTi0.5mmを中間層としたアルミナ同士の接合体である。元素分析の結果から二次電子像には、左からアルミナ部材部分、溶剤層、Ti-Cu共晶部分、Ti層が認められる。

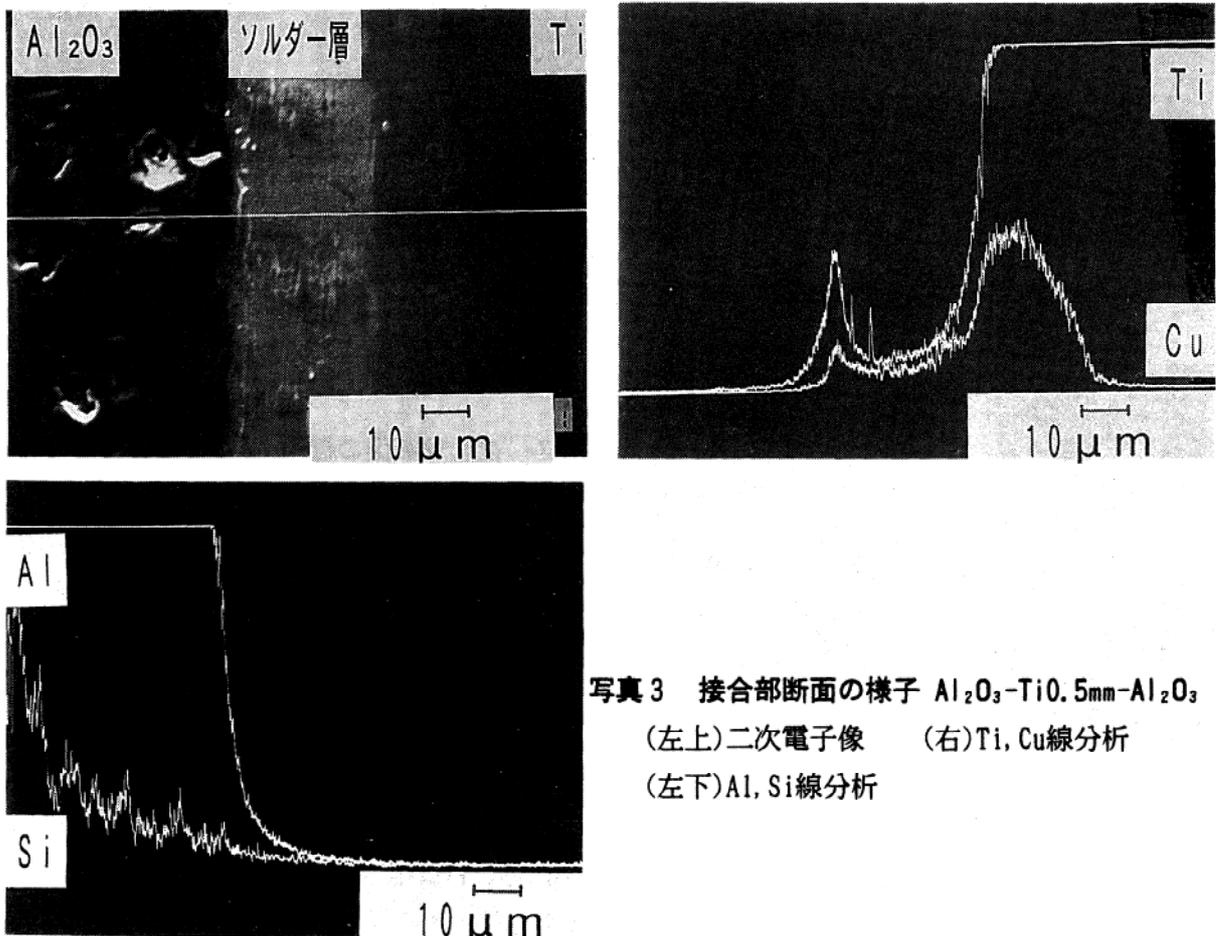


写真3 接合部断面の様子 Al_2O_3 -Ti0.5mm- Al_2O_3
 (左上)二次電子像 (右)Ti, Cu線分析
 (左下)Al, Si線分析

線分析の結果、Agは溶ダ層部分にのみ分布していることがわかった。溶ダ層のみによるアルミナ同士の接合と同様に、AgはTiと相反する分布を示し、Tiの濃度が高い部分ではAgの濃度は低くなっている。AgはTiを拘束しにくく両者とも偏析しやすいとされている⁴⁾ことから、このような現象が起きたと考えられる。

Tiはアルミナとの親和性が強いようで、アルミナと溶ダ層の界面でCuとともに偏析している。また、TiはCuと化合物を形成しやすい⁴⁾ことから、溶ダ層とTi層の間ではCuとの共晶組織から成る部分を形成しているようである。しかし、Tiが多すぎる場合には硬い化合物が形成されるようで、接合強度へ悪影響があるものと考えられる。

CuはTiと化合物を形成しやすいことから、その接合部付近の分布はTiと類似している。また、溶ダ層中のCuの大部分は中間層のTi側へ拡散して化合物を形成しており、溶ダ層はAgの濃度が高くなっている。

アルミナ中のAl、Siの状況は溶ダ層のみによるアルミナ同士の接合と同様に溶ダ層への拡散が認められた。

③ アルミナ-溶ダ層-Cu界面

写真4に二次電子像、反射電子像、および元素分析の結果を示す。これは、Cu0.5mmを中間層として、アルミナとSUS403を接合したものである。Tiを中間層とした場合とは異なり、溶ダ層中のTiとAgは加熱溶融によりCu中に拡散し、偏析している。また、溶ダ層中のCuは中間層のCuと同化しているので、溶ダ層は区別できなくなっている。

線分析と面分析の結果、Tiはアルミナとの界面に多く偏析しているが、Cu中へも数十 μ mの範囲まで拡散していることがわかる。Tiはアルミナとの親和性が良いために、アルミナとの界面に多く偏析しやすく、またCuとは化合物を形成しやすいためにこのような分布になったと考えられる。

Agは面分析の結果から、溶ダ層としてアルミナ部材中の気孔部分に入り込んでいるためアルミナ中にも観察されるが、Tiとの親和性が良くないためにTiの濃度が高いところでは低い濃度を示している。また、AgとCuの共晶反応と拡散によりAgもCu中に深く入り込んでいるが、Cuとは金属間化合物を形成しないために至るところで偏析を起こしている。この状況は二次電子像、反射電子像および面分析結果を比較すると良くわかる。

Cuは溶ダ層中のCuと中間層が同化しているようで、線分析の結果、接合界面から中間層へと濃度は順次高くなっていっている。また、接合界面でも比較的高い濃度であり、Ti濃度もあまり高くないと思われるので、アルミナとの界面でTi-Cu系の硬い金属間化合物が形成されても、Cu量が多いために十分に応力が緩和でき、高い接合強度が得られたと考えられる。

アルミナ中のAlとSiは界面で少し溶ダ層側へ拡散しているようであり、上記の2種と同じような状態を示している。

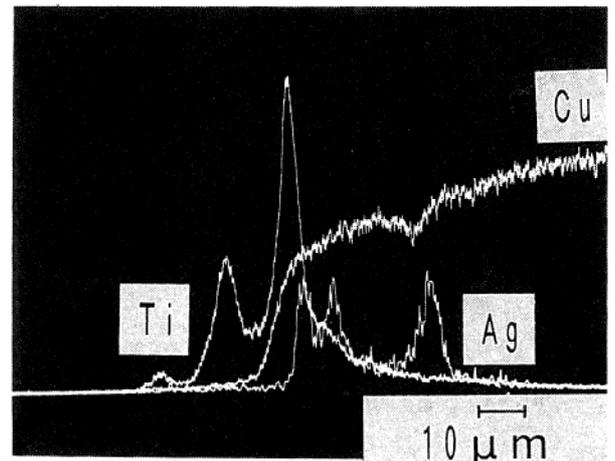
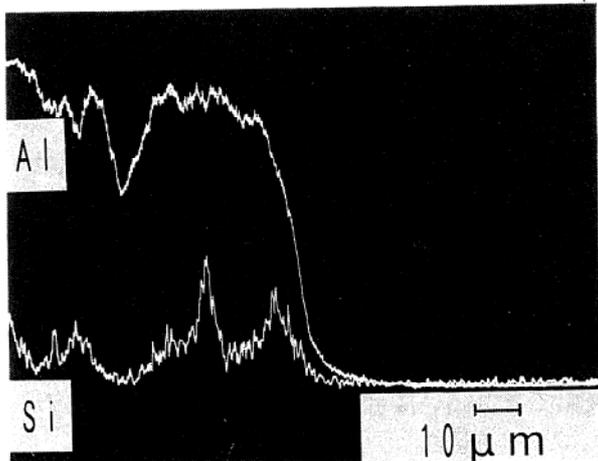
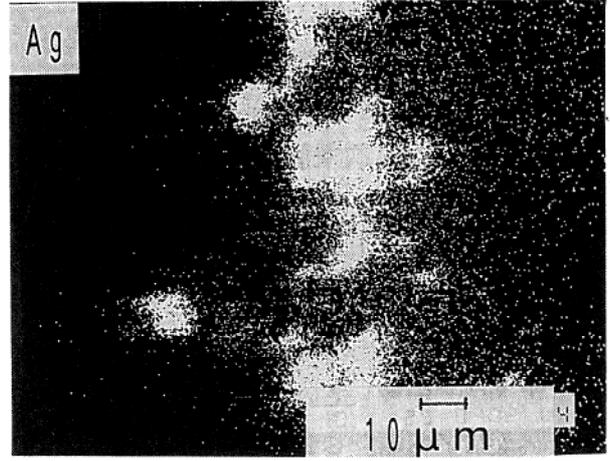
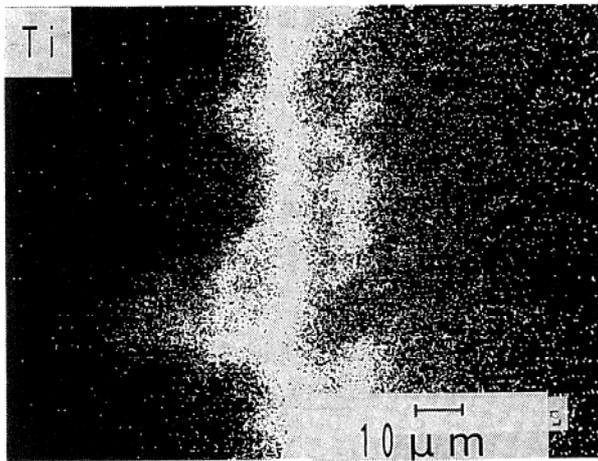
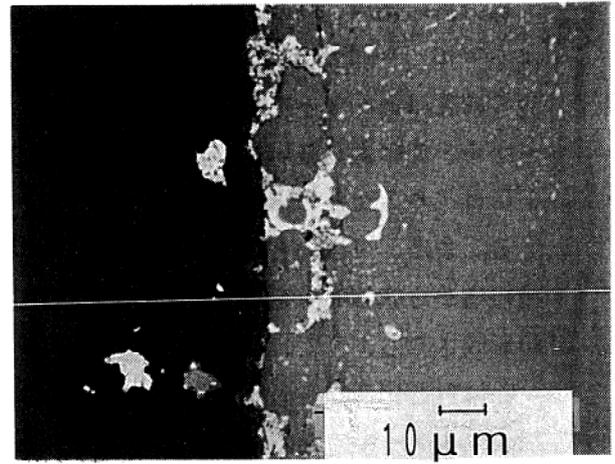
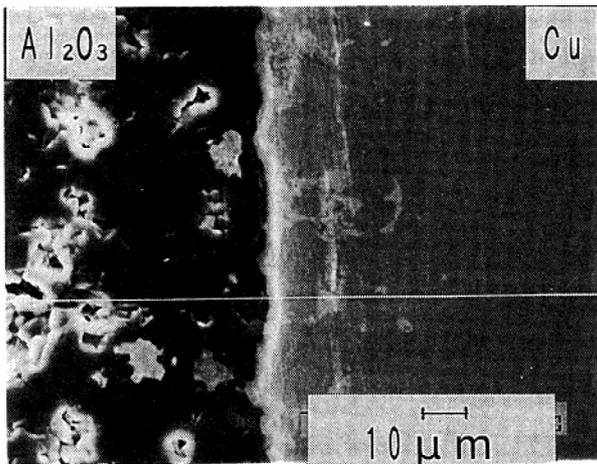


写真4 接合部断面の様子 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cu0.5mm-SUS403}$

(左上)二次電子像

(右上)反射電子像

(左中)Ti面分析

(右中)Ag面分析

(左下)Al, Si線分析

(右下)Ti, Cu, Ag線分析

4. おわりに

セラミックスに表面処理等を必要とせずに接合できることから、Ag-Cu-Ti系の金属溶ダ―を使用し、アルミナ同士およびアルミナと金属部材の接合を行った。また、4点曲げ試験により接合体の接合強度を測定し、部材の組み合わせで最も高い強度が得られたものについて、接合部界面の組織観察、元素の分布状況を調べた。その主な結果は以下に示すようであった。

- 1) アルミナ同士の接合では、溶ダ―のみで直接接合するよりもCuまたはTiを中間層として挿入し、接合した方が高い強度が得られた。Cu0.5mmを使用した場合、平均で約100MPa、Ti0.5mmの場合は平均約120MPaの接合強度が得られた。
- 2) アルミナと金属部材の接合では、Cuを中間層とした場合に高い接合強度が得られ、SUS403と接合した場合において平均約90MPa、最大約120MPaの接合強度が得られた。SUS304、S45C、SUS403の順に高い接合強度が得られ、金属部材の熱膨張係数がアルミナに近いものほど高い強度となった。また、Tiを中間層とした場合、どの部材の組み合わせにおいてもアルミナ側の接合部近傍にクラックが発生し、高い接合強度は得られなかった。
- 3) 接合部界面の観察の結果、アルミナ-溶ダ―-中間層の状態は部材の組み合わせ、接合強度によることなく同じような状態を示した。溶ダ―中のTiはアルミナとの界面に偏析し、アルミナ側のAlも界面で溶ダ―側へ拡散していることから、界面でTi-Al-O系の反応が起きていることが予想される。CuはTiと化合物を形成しやすいことから、アルミナとの界面でTiとともに偏析を起している。また、CuはTiと共晶組織を形成しているが、硬い組織であるために強度には悪い影響を与えているようである。しかし、中間層とした場合には、アルミナとの界面でも比較的高い濃度を示すので、Tiとの間に硬い組織が形成されても十分に応力が緩和できるため、高い強度が得られたと考えられる。Agはアルミナ、Tiとの親和性が良くないようで、溶ダ―中のTiの偏析が少ない部分に偏析している。また、Cuを中間層とした場合には、Cu中に深く拡散しているがCuとは金属間化合物を形成しないために偏析を起している。

以上が結果であるが、試験数が少ないために接合強度と観察状況、および接合機構との関係を調べるまでには至らなかったことを最後に加えておく。

この研究は日本自転車振興会の補助により平成3年度に導入したプレス付き真空熱処理装置（真空炉）を使用して行いました。

参考文献

- 1) 日比野剛, 伊藤隆, 服部正明, 三重県窯業試験場年報, 25, 39~46(1991)
- 2) 日比野剛, 伊藤隆, 佐野茂樹, 三重県窯業試験場年報, 27, 14~20(1993)
- 3) 日比野剛, 三重県窯業試験場年報, 27, 21~30(1993)
- 4) 岩本信也, 須賀唯知, セラミックス接合工学, 日刊工業新聞社(1990)
- 5) ファインセラミックス成形・加工と接合技術編集委員会編, ファインセラミックス成形・加工と接合技術, 工業調査会(1989)
- 6) 安藤敏夫, 後藤喜良, 服部金司, 愛知県瀬戸窯業技術センター報告, 21, 31~36(1992)

(5) セラミックスの耐熱衝撃抵抗性と高周波特性に関する研究 (I)

— LAS系の高周波特性について —

稲垣 順一

1. はじめに

LAS系には、負の膨張係数をもつβユークリプタイトがあり、非常に耐熱性の高い素材として知られているが、マイクロ波領域での誘電特性が悪く、マイクロ波加熱に適していない。本研究は、LAS系の耐熱衝撃抵抗性のメカニズムの解明と高周波領域での特性について調べることを目的とする。

2. 実 験

(1) LAS系の調整

$\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot n\text{SiO}_2$ ($n=1 \sim 10$) で行なった。出発原料に、炭酸リチウム、水酸化アルミニウム、珪石を使用し、メチルアルコールで24時間湿式粉碎混合後、乾燥した。

理論組成に調合した原料は、アルミナルツボに入れ、1500℃1時間で溶解し、その後結晶化を促すため、1000℃以上では7℃/分、以下の温度で3℃/分で降温した。生成物は、スタンブミルで粉碎後、湿式粉碎し、プレス成形用にバインダーを加えて乾燥した。

成形は、共振法による誘電率測定を行なうため、試料密度の偏在を避けるため、フローティングダイによる乾式プレスで、正逆両方向に加圧し2度押しを行なった。尚、成形圧力は、50MPaであった。

(2) 誘電率測定

誘電率 (ϵ_r) および誘電正接 ($\tan \delta$) の測定は、空洞キャビティによる共振法で行なった。

(3) 発熱温度測定

$n=2.5$ の試料について、マイクロ波加熱装置で経時変化を測定した。マイクロ波出力は、3KW、温度測定は表面温度計によった。

3. 結果と考察

(1) 誘電率及び誘電正接

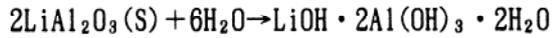
図1に ϵ_r 及び $\tan \delta$ の測定結果を示す。また、表1に生成鉱物、結晶構造を示す。

生成された結晶が、単一相でないため、結晶構造だけで一義的に判断できないが、図より、ユークリプタイトを含む複合結晶グループ、スポンジュメンを含む複合結晶グループ及びガラス相を中心とするグループの3つに類別できる。

第1のグループは、ユークリプタイトのように六方晶系グループで、比較的イオンが動きや

すく、誘電率、誘電正接が高い。

$n = 1, 1.5$ は、 γ - LiAl_2O_3 が生成しているため、ユークリプタイト単味の場合より、誘電率が高くなっている。これは、



による、加水分解のためであると考えられる。

また、 $n = 2.5, 3$ は、リチウムメタシリケートによるためであると考えられる。

第2のグループは、スポジュメンのように正方晶系のグループで、六方晶系に比較してイオンが動きやすく、誘電率が低くなる。 $n = 4$ から7にかけて誘電率が下がっているのは、リチウムメタシリケートの減少と、リチウム長石の生成によるためであると考えられる。

第3のグループは、ガラス相を含むグループで、 β 石英固溶体が減少すると、誘電率が上昇する。また、 $n = 8$ では、クリストバライトが生成しており、界面の影響による誘電率の上昇も考えられる。

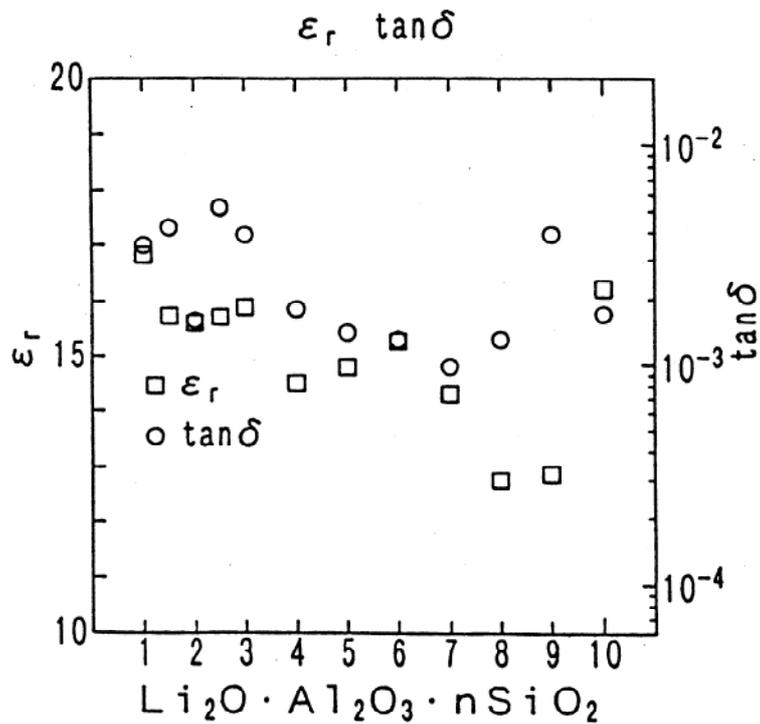


図1 ϵ_r と $\tan \delta$ の測定値

試験組成 (n = 1 ~ 10) と測定値、生成鉱物、結晶構造及び誘電率への寄与

n = 1 ~ 10	ϵ_r	$\tan \delta$	生成 鉱 物	結晶構造	寄与
$\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 1\text{SiO}_2$	16.82	0.0035	β ユークリプタイト γ - LiAlO_2	六方晶系	2
				正方晶系	2
$\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 1.5\text{SiO}_2$	15.73	0.0042	β ユークリプタイト γ - LiAlO_2	六方晶系	2
				正方晶系	2
$\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$	15.60	0.0016	β ユークリプタイト $\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2$	六方晶系	2
				斜方晶系	3
$\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2.5\text{SiO}_2$	15.71	0.0052	β ユークリプタイト $\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2$ $\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{SiO}_2$ $\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$	六方晶系	2
				斜方晶系	3
				六方晶系	2
				単斜晶系	4
$\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{SiO}_2$	15.89	0.0039	β ユークリプタイト $\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{SiO}_2$ $\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2$ β スポジュメン	六方晶系	2
				六方晶系	2
				斜方晶系	3
				正方晶系	2
$\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 4\text{SiO}_2$	14.51	0.0018	β スポジュメン β ユークリプタイト $\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2$	正方晶系	2
				六方晶系	2
				斜方晶系	3
$\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$	14.80	0.0014	β スポジュメン $\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2$	正方晶系	2
				斜方晶系	3
$\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 6\text{SiO}_2$	15.26	0.0013	β スポジュメン $\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 6\text{SiO}_2$ $\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2$	正方晶系	2
				正方晶系	2
				斜方晶系	3
$\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 7\text{SiO}_2$	14.31	0.00098	β スポジュメン $\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 6\text{SiO}_2$	正方晶系	2
				正方晶系	2
$\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 8\text{SiO}_2$	12.75	0.0013	ガラス組成 β 石英S. S.	六方晶系	2
$\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 9\text{SiO}_2$	12.87	0.0039	ガラス組成 β 石英S. S. クリストバライト	六方晶系	2
				正方晶系	2
$\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 10\text{SiO}_2$	16.21	0.0017	ガラス組成		

(2) 加熱試験

図2に加熱試験の結果を示す。

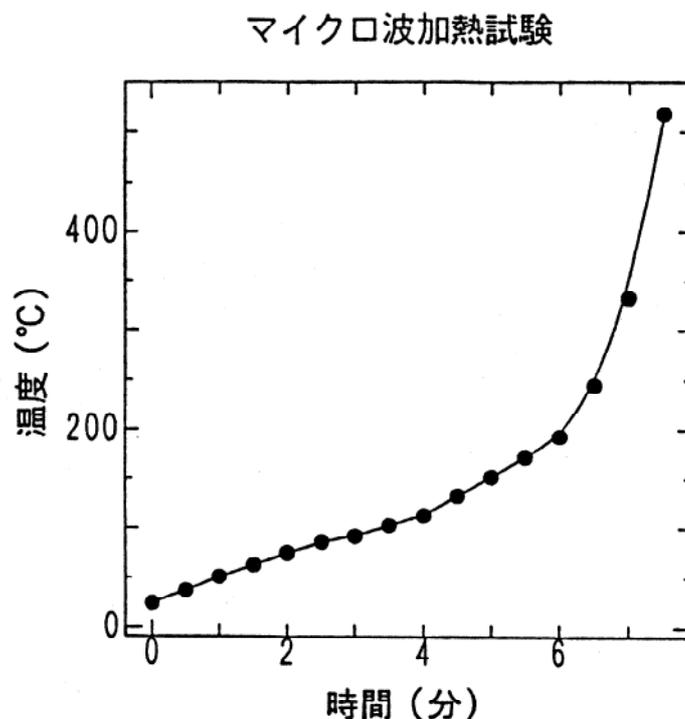


図2 発熱効果 ($n=2.5$)

図の様に、マイクロ波を照射すると、指数関数的に温度が上昇する。これは、温度の上昇により、イオンの直流電導による効果が生じ誘電率が上昇するため、相乗効果によって、指数関数的に温度が上昇するためである。

4. まとめ

以上のことから、LAS系の誘電率は、結晶構造により異なり、 β ユークリプタイトより、 β スポジューメンの方が誘電率、誘電正接が低い。結晶相が多く現れると、界面の効果により、誘電率が上昇する。ガラス相の生成は、Liイオンを動きやすくするので、誘電率を上昇させる。

(6) 成形自動化に適した泥漿の研究

応用技術部門 岡本康男
稲垣順一

1. まえがき

今回の報告は、萬古陶磁器工業協同組合が平成3年度三重県中小企業技術高度化事業の一環として、「成形自動化による生産技術高度化の研究」を行なった際の当試験場の指導をまとめたものである。

当産地では圧力鑄込による成形方法が主に行なわれているため、自動成形システムの導入が困難であった。また、石膏型を使用するため型の交換や乾燥に相当の労力が必要であり、保管スペースもかなり必要になる。そこで、多孔質樹脂型を用いて成形工程の自動化を検討し、劣悪だった作業現場の無人化を図ろうとした。しかし、現在主に使われている半磁器泥漿では、成形時間が長くなるので、生産効率が悪くなる。そこで、成形自動化に適した坯土、泥漿の開発が必要となった。

2. 実験及び結果

坯土の調整

坯土の原材料として河合陶石、土橋陶石、平木陶石、土橋蠟石、阿山長石、益田長石の粗粉砕物及び本山蛙目粘土を準備した。陶石、長石はそのままでは使用できないので、平均粒径が $10\mu\text{m}$ 以下になるまで、100kg用トロミルで粉碎し、脱水、乾燥した。粘土については 80°C で乾燥し、これらを出発原料とした。

まず、河合陶石-阿山長石-蛙目粘土の3成分を表1に示すような組成で調合し、これらを常圧鑄込成形した時の成形体の評価を表2に示す。

表1. 陶石-長石-粘土系の調合比(%)

試料 原料		試料					
		1	2	3	4	5	6
陶	石	70	60	50	70	60	50
長	石	10	20	30	20	30	40
粘	土	20	20	20	10	10	10

坯土原料の粒子がある程度細かくなっても、成形体の乾燥強度はあまり上がらなかったが、蛙目粘土を増やすことによって、ある程度上げることができた。さらに蛙目粘土を増やすと成形体の強度が上がりハンドリングがよくなるが、従来の半磁器土と変わらないほどの成形時間が必要となる。よって、今回の成形自動化に適した坯土は、蛙目粘土等の可塑性粘土を20%前後に調整した物がよいと思われる。

泥漿の調整

樹脂型内で泥漿を真空及び圧力で脱水、固化し成形体を得るため、泥漿内の水分量を減らし、また成形体の精度を上げるため、粘性を低くして流動性を良くする必要がある。このため、解膠剤として主に使われている水ガラス以外に、有機系や、石膏型では使用できない解膠剤（リン酸ナトリウム）について検討を行なった。

まず、泥漿の水分量を25%に固定して水ガラス（A）有機系解膠剤（B）リン酸ナトリウム（C）を使用した時の流動性について調べた。各解膠剤に於いて、最大解膠時の相対粘度を表3に示す。解膠剤の種類を変えることによって、従来使われていた水ガラスよりも粘度を2/3から1/2まで下げることができる。しかし図1から水ガラスと比較すると他の解膠剤の粘性曲線のカーブがきつくなっているのがわかる。そのため、泥漿の管理を慎重に行なう必要がある。次に水ガラスとこれらの解膠剤とを併用した時の最大解膠時の粘度を表4に示す。

表2. 成形体の評価

試料	平均粒径 (μm)	かさ比重	乾燥強度 (kg/cm^2)
1	7.62	1.77	16.7
2	7.17	1.78	17.2
3	6.33	1.74	16.7
4	7.42	1.63	8.4
5	7.23	1.57	8.4
6	6.67	1.54	7.6

表3. 最大解膠時に於ける相対粘度

解膠剤	添加量 (%)	相対粘度 (CPS)
A	0.5	2100
B	0.4	1300
C	0.3	925

表4. 最大解膠時の相対粘度

試料	調合比			相対粘度 (CPS)
	A	B	C	
1	3	0	1	680
2	2	0	2	600
3	1	0	3	520
4	3	1	0	800
5	2	2	0	760
6	1	3	0	840
7	2	1	1	820
8	1	2	1	680
9	1	1	2	900

2種類以上の解膠剤を使用すると1種類の時よりも泥漿の粘度を下げる事が出来る。また、図2.に試料No.8を用いた時の粘性曲線を示すが、これは水ガラスを用いた時と同程度に曲線が緩やかになっている。これらの結果より、泥漿の管理が水ガラスを使用した時と同じ様にでき、泥漿の水分量を減らすことが可能になった。

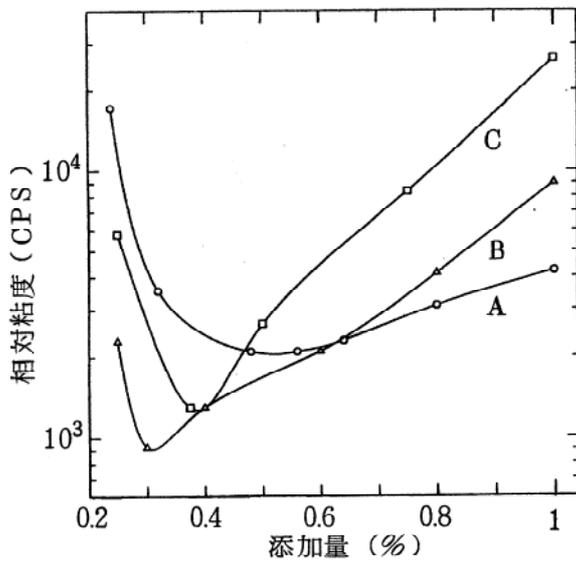


図1. 各解膠剤と粘性曲線

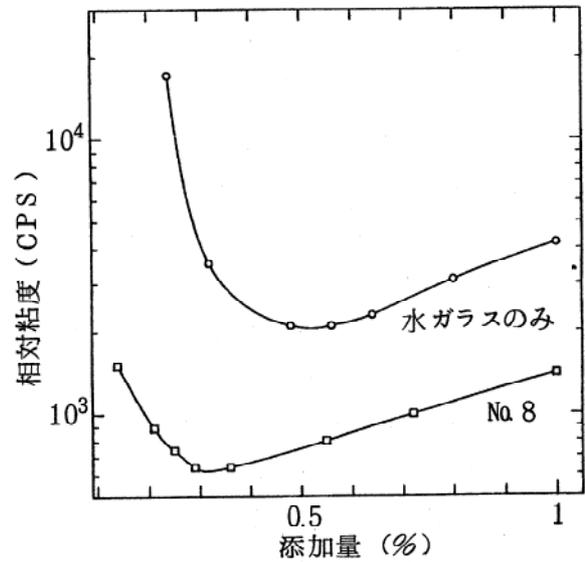


図2. No.8を使用した時の粘性曲線

まとめ

今回の成形方法では、生産効率と成形体のハンドリング性を考慮すると、蛙目粘土等の可塑性原料は20%前後が適当と思われる。

解膠剤の種類によって、泥漿の水分量を減らすことが可能になる。また、これらの解膠剤と水ガラスとの併用により泥漿の管理が水ガラスを使用する時と同程度に簡便になる。

(7) 複合材料設計支援エキスパートシステムに関する研究

田中雅夫*，西川孝*，中谷信也**，小西和頼***，
村川悟****，林茂雄*****

Development of Expert System for Assisting
Design of Composite Materials.

by Masao TANAKA, Takashi NISIKAWA,
Nobuya NAKATANI, Kazuyori KONISHI,
Satoru MURAKAWA and Shigeo HAYASHI

- * 三重県工業技術センター応用材料部門合成樹脂担当
- ** (元三重県工業技術センター機械電子部門電子担当)
- *** (元三重県工業技術センター企画情報部門)
- **** (元三重県金属試験場)
- ***** 三重県窯業試験場

〔要 旨〕

複合材料の設計を支援するためのパーソナルコンピュータ上で利用可能な簡易システムを開発した。そのシステムは、力学的特性を満足する最適な材料構成を決定する最適化システムと用途別に最適な材料を選択する材料選択システムである。最適化システムは有限要素解析と積層パラメータに基づいて、また、材料選択システムはプロダクションルールに基づいて作成した。

1. はじめに

コンピュータの発達は、急激なものがあり、技術計算の道具として、今やコンピュータは必須のものとなっている。複合材料の設計の分野においても、このコンピュータ技術の利用が盛んになされている。

複合材料の最大の魅力は、設計の自由度が大きいことにある。しかし、逆に設計が悪いと複合材料の優れた特性を引き出せなくなる。従って、複合材料の特性を十分に生かした材料として活用するためには、設計の効率的な実行を支援する知識システムの確立が必要となる。

一般に、複合材料の設計には、材料設計と構造設計がある。材料設計は、基材（マトリックス、強化材）の種類とその構成（強化材の含有率、配向角や積層順序など）を決定するものであり、構造設計は、それらの材料を用いた構造要素を選択したり、また、その複合材料の解析を行うものである。本研究では、前者の材料設計を対象とした。そして、設計目標を力学的特性に限定し、それを満足する最適な材料構成（マトリックスおよび繊維の種類、繊維の配向角、含有率、積層順序）を決定する最適化システムと、プロダクションルール（IF～THENルール）に基づき用途別に最適な材料を選択する材料選択システムを作成した。

2. システムの概要と実行結果

2. 1 有限要素解析による層構造の最適化システム

本システムのフローチャートを図1に示す。解析部分にはSACOM¹⁾を使用しており、開発したのはSACOMの前処理プログラム・後処理プログラムに相当する部分である。

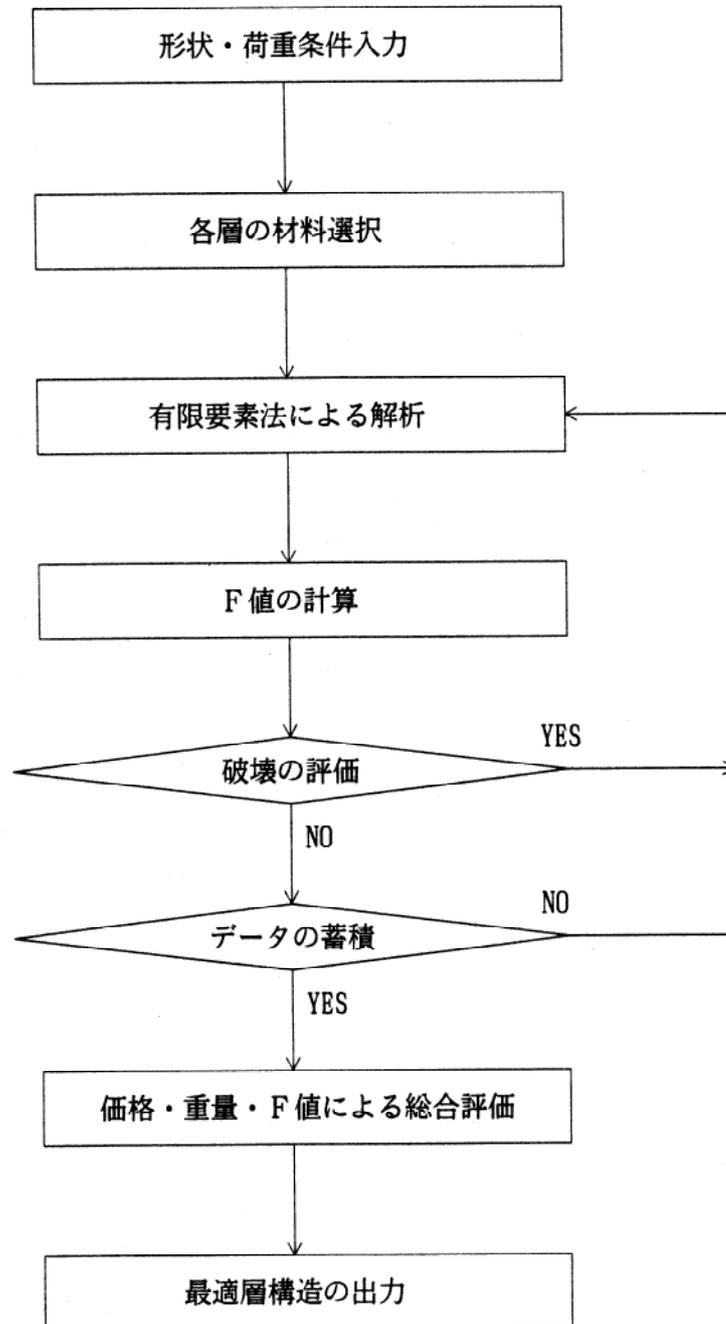


図1 有限要素解析によるシステムのフローチャート

「形状・荷重の入力」では、構造体の厚み・長さ・幅、荷重を入力するだけで、SACOMに境界条件を含めて必要なデータが自動生成される。

「各層の材料の選択」では、5種類の材料について入力が可能であり、表1に示した材料物性値が、あらかじめセットされている。

「F値の計算」では、SACOMの解析結果から、破壊パラメータ（F値）を求める部分であり、採用したF値は、式(1)に示す“Tsai-Wu”の破壊則により計算する²⁾。

$$F = F_1 \sigma_L + F_2 \sigma_T + F_{11} \sigma_L^2 + F_{22} \sigma_T^2 + F_{66} \tau_{LT}^2 + 2 F_{12} \sigma_L \sigma_T \quad (1)$$

$$\text{ここで、 } F_1 = \frac{1}{F_{Lt}} - \frac{1}{F_{Lc}} \quad , \quad F_2 = \frac{1}{F_{Tt}} - \frac{1}{F_{Tc}}$$

$$F_{11} = \frac{1}{F_{Lt} F_{Lc}} \quad , \quad F_{22} = \frac{1}{F_{Tt} F_{Tc}} \quad , \quad F_{66} = \frac{1}{F_{LT}^2}$$

$$F_{12} = F_{12}^* \sqrt{F_{11} F_{22}} \quad (F_{12}^* = -0.5)$$

F_{Lt} 、 F_{Tt} はそれぞれ繊維方向と繊維の直角方向の引張強さ、 F_{Lc} 、 F_{Tc} は各方向の圧縮強さ、 F_{LT} はせん断強さを示す。

表1 材料の機械的性質³⁾

(単位 MPa)

特性値	材料名	ガラス 繊維	アラミド 繊維	炭素繊維	ポロン 繊維	ウレタン
繊維方向のヤング率		45,000	76,000	132,000	274,000	392
繊維に直角方向のヤング率		12,000	5,500	10,300	15,000	392
繊維方向のポアソン比		0.250	0.340	0.250	0.025	0.400
繊維に直角方向のポアソン比		0.067	0.025	0.020	0.014	0.400
繊維方向の引張強さ		1,000	1,380	1,240	1,310	20
繊維に直角方向の引張強さ		34	28	45	34	20
繊維方向の圧縮強さ		40	55	62	100	20
繊維に直角方向の圧縮強さ		550	280	830	2,480	20
せん断強さ		140	140	140	310	20

・マトリックス樹脂：エポキン樹脂

・ $V_f = 0.6$

「破壊の評価」および「データの蓄積」では、F値の計算結果より破壊すると判断される場合には、層構造をより高強度な構造に、破壊しないと判断される場合には、より低強度な構造に自動的に変更される。そして、層構造の変更後、解析部分に戻る。ただし、最後の「総合評価」をするのに十分なデータが蓄積されたと判断したときは、この操作は行わず、次の「総合評価」に移る。

「総合評価」では、F値を計算して破壊しないと判断される層構造について、価格と重量を考慮して最も最適な層構造を決定する部分であり、式(2)を満足する材料構成を計算する³⁾部分である。

$$\text{Minimize } f(X) = \text{Min. } f(F+W+C) \quad (2)$$

F, W, C : F 値, 重量, 価格をそれぞれの最大値で正規化した値

システムの実行例を示す。図2に示す各層の厚さが等しい4層構造の積層板において、両端支持で中央に294 Nの荷重を受ける3点曲げについて実行した。その結果、積層板の最適層構造は、1層目（最下部層）から順に、カーボン繊維/カーボン繊維/ケブラー繊維/カーボン繊維となった。

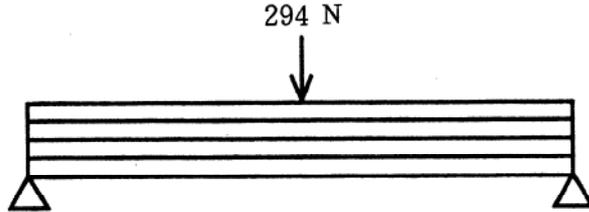


図2 積層板モデル

2. 2 積層パラメータによる積層構成の最適化システム

本システムは、三木ら^{4) 5) 6)}により提案された複合材料積層板の材料設計理論を応用した計算機用プログラムである。ここでは、積層板の中央面に関し、配向角および積層素材が対称になっている対称積層板において、配向角0度、 $\pm\theta_1$ 度および $\pm\theta_2$ 度を有するアングルプライ対称積層板 (AS [Angle-plyed symmetric] 積層板と略する) を対象とする。

積層板の弾性理論に積層パラメータ V_1^* , V_2^* を導入すると積層板の有効工学的弾性係数

E_1 , E_2 , E_6 は

$$E_1 = \frac{U_1^2 + 2U_1U_3V_2^* - U_2^2V_1^{*2} + 2U_3U_4V_2^* - U_4^2}{U_1 - U_2V_1^* + U_3V_2^*} \quad (3)$$

$$E_2 = \frac{U_1^2 + 2U_1U_3V_2^* - U_2^2V_1^{*2} + 2U_3U_4V_2^* - U_4^2}{U_1 + U_2V_1^* + U_3V_2^*} \quad (4)$$

$$E_6 = U_5 - U_3V_2^* \quad (5)$$

となり⁵⁾、

V_1^* , V_2^* は次のようになる。

$$V_1^* = \sum_{i=1}^N v_i \cos 2\theta_i \quad (6)$$

$$V_2^* = \sum_{i=1}^N v_i \cos 4\theta_i \quad (7)$$

ここで、 v_i は配向角が θ_i のプライ群の体積含有率、 N は配向角の種類である。本システムのフローチャートを図3に示す。

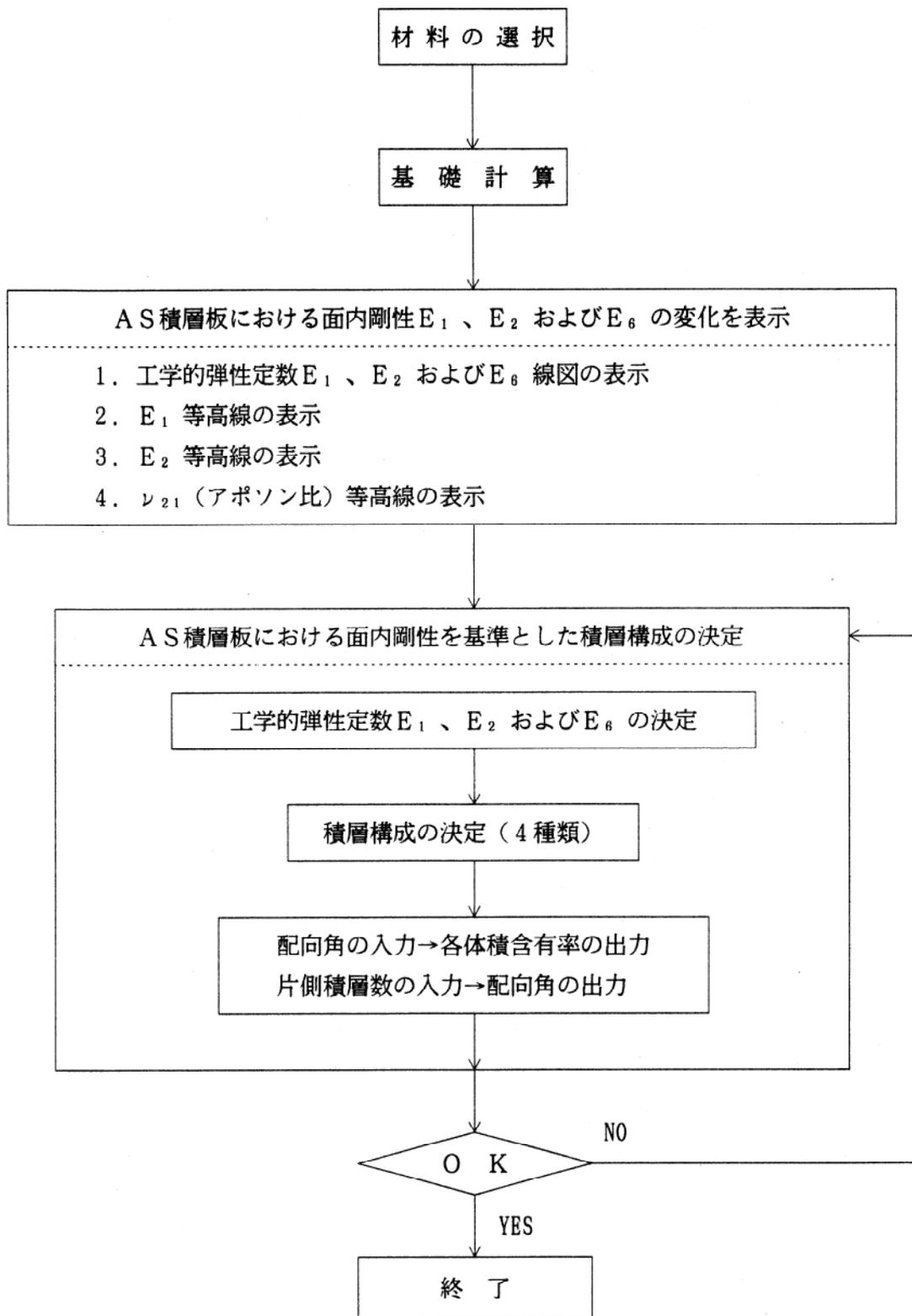


図3 積層パラメータによるシステムのフローチャート

「材料の選択」では、代表的な5種類の一方向繊維強化複合材料から設計を行う材料を選択する。

「基礎計算」では、選択した一方向繊維強化複合材料の工学的弾性定数からTsaiらの式を用いて、弾性定数の線形結合を求める。

「AS積層板における面内剛性 E_1 、 E_2 および E_0 の変化を表示」では、有効工学的弾性定数 E_1 、 E_2 および E_0 を E_1 、 E_2 、 E_0 線図や体積含有率の座標上にグラフィックス表示する。このことにより設計者は、設計計画案の検討が容易になる。

「AS積層板における面内剛性を基準とした積層構成の決定」では、まず工学的弾性定数 E_1 、 E_2 および E_0 を決定する。次に設計したい積層構成を選択する。そして、結果として各配向角に関する体積含有率を与えて配向角を求めるか、配向角を与えて体積含有率を求めるという処理を行う。

システムの実行例を示す。面内剛性値： $E_1 = 100$ 、 $E_2 = 60$ 、 $E_0 = 20$ (GPa) を有する積層板の積層構成を決定する問題について実行した。その結果を表2に示す。そこで、Case 1とCase 2は、積層数を規定した場合で、Case 3とCase 4は、配向角を規定した場合である。

表2 最適積層構成

Case	体積含有率			配向角 $\pm\theta$ (°)		
	V_0	V_1	V_2	0	θ_1	θ_2
1	0.4	0.2	0.4	0	26.0	67.3
2	0.2	0.4	0.4	0	67.8	17.4
3	0.320	0.391	0.290	0	30	80
4	0.515	0.375	0.110	0	60	70

全積層数：20枚

2. 3 複合材料選択システム

強度、価格、重量、使用温度等を考慮して用途に最適な材料を選択するシステムである。用途として、スポーツ・レジャー用品、ロープ・ベルト、船舶、建材、宇宙・航空機、電気機器部品を、対象材料として、E-ガラス、T-ガラス、カーボン(T-300)、アラミド(ケブラー49)、ボロンの各繊維を取り上げた。

システムの作成にあたり、知識ベースの構造は、プロダクションルール(IF~THENルール)を用い、前向き推論と後ろ向き推論をミックスした推論方式とした。システムの基本設計を図4に示す。

なお、このシステムは、37のルールにより成り立っており、各ルールには確信度サポートを行い、確信度の最終決定には平均値法を採用した。

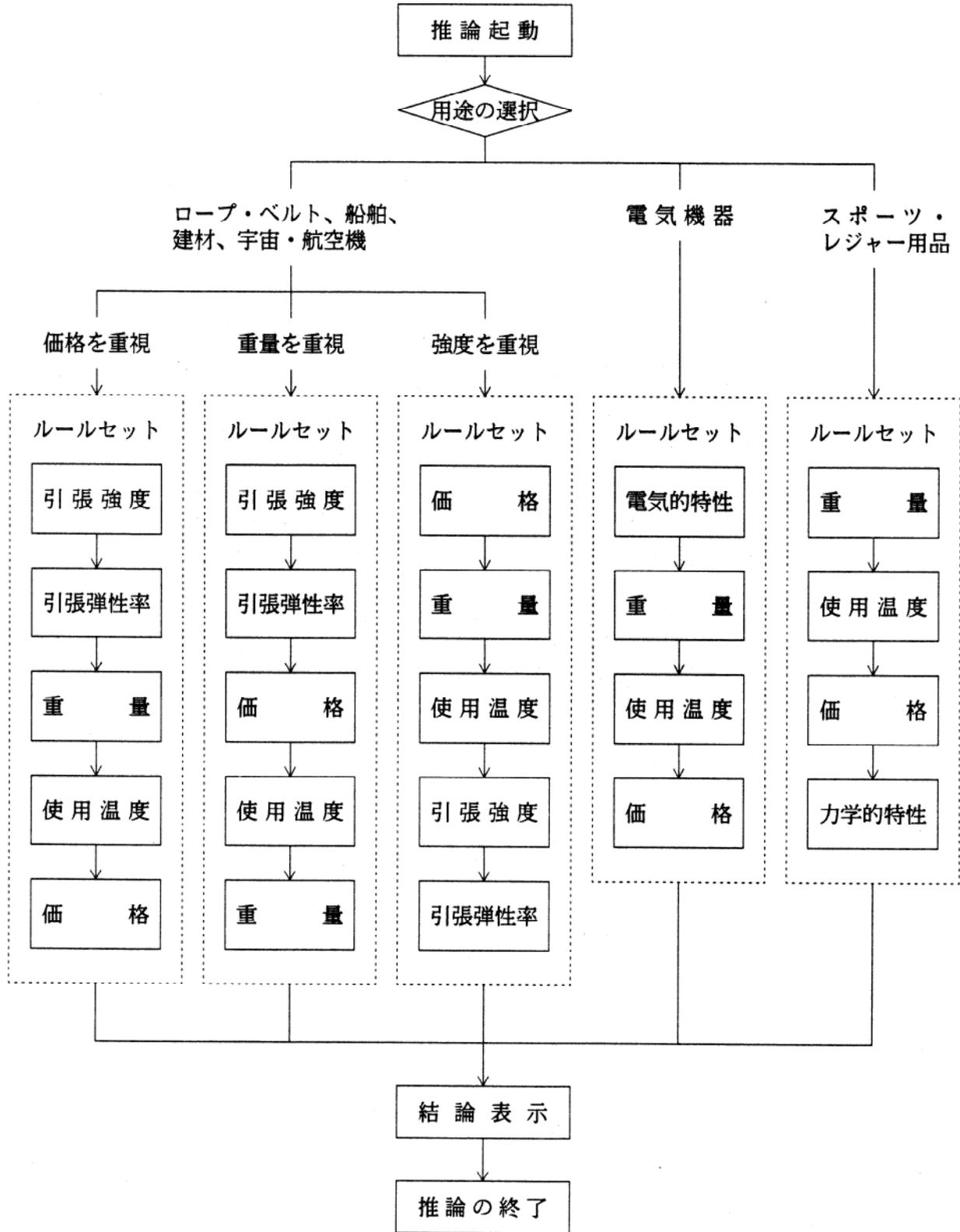


図4 複合材料選択システムのフローチャート

「最重視項目の選択」では、ロープ・ベルト、船舶、建材、宇宙・航空機の用途を選択した場合、最も重要視する性能について、価格、重量、力学的特性の中から選択する。

「特性値の入力」では、用途に要求される特性値（引張強さ、引張弾性率、重量、使用温度、価格）について入力する。

「結論の表示」では、用途に適した材料が確信度の大きい順に表示され、最も大きい値が最適な材料となる。

システムの実行例を示す。用途として宇宙・航空機を選択し実行した。結果は、図5に示すようにアラミド（ケブラー49）繊維が最適となった。

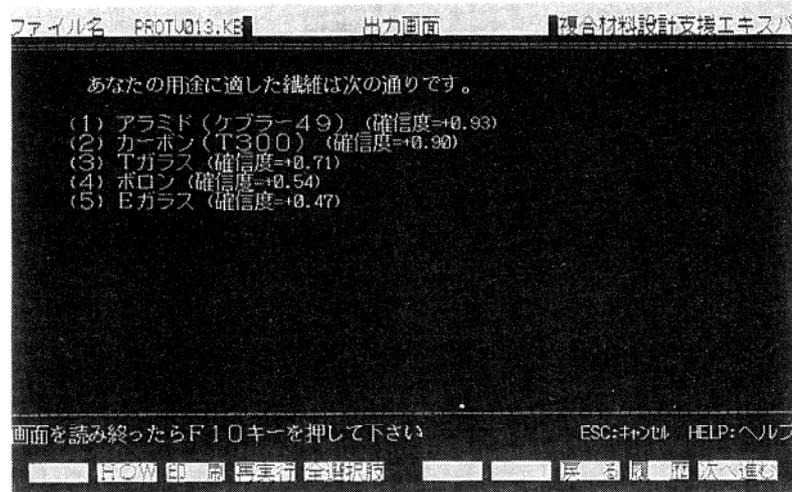


図5 材料選択システムの推論結果

3. まとめ

複合材料設計支援エキスパートシステムのプロトタイプシステムの構築にあたり、2つの最適化システムと材料選択システムを作成し、その実行例を示した。システムの動作環境は、ハードウェアが、PC-9801シリーズおよびその互換機で、OSは、MS-DOSを採用した。各システムとも対話形式とし、利用者は、技術計算の背景となっている理論の厳密な理解をしなくても、結果が得られるようにした。

しかし、本システムを構成している3つのシステムは、それぞれが独立しており、その適用については限定されている。今後、各システムを有機的に結合したシステムとして構築する予定である。

参考文献

- 1) 座古 勝：数値複合材料力学，（1989），養賢堂
- 2) S.W.Tsai and E.M.Wu, J.Composite Mat., 5, 58, (1971)
- 3) 座古 勝, 辻上 哲也, 材料, 41, 1440 (1992)
- 4) 三木 光範, 材料, 30, 943 (1981)
- 5) 永守 正道, 三木 光範, 材料, 30, 1051 (1981)
- 6) 三木 光範, 強化プラスチック, 27, 377 (1981)

(8) 窯業原料・窯業製品の品質化に関する研究

本研究は平成4年度中小企業庁地域活性化事業補助金・地域研究者養成事業で行ったものである。サブテーマは以下の5テーマで、その研究内容は、平成4年度地域研究者養成事業「成果報告書」に記載した。

サブテーマ

- | | | |
|----------------------------|--------|--------------------|
| (1) 窯業原料粉末の改質と窯業製品の評価研究 | 研究指導担当 | 國 枝 勝 利 |
| (2) ALCコンクリートの品質改善 | 研究指導担当 | 伊 藤 隆 |
| (3) 耐熱素地の改良 | 研究指導担当 | 國 枝 勝 利 |
| (4) 高効率赤外線放射耐熱衝撃性セラミックスの検討 | 研究指導担当 | 伊 藤 隆
林 茂 雄 |
| (5) 希土類を用いた新しい無機顔料の研究 | 研究指導担当 | 國 枝 勝 利
庄 山 昌 志 |

(9) 赤萬古土をデザインする

応用技術部門 北川 幸治
小林 康夫

1. はじめに

デザインの研究「新製品の総合的デザイン開発」は平成2年度から3年間継続しているテーマである。これまでは当業界の半磁器土を使った試作研究を発表してきた。今年度は最終年度でもあり、萬古陶磁器工業協同組合からの要望もあって、赤萬古土を利用した新製品のデザインを試みた。

2. 内 容

キーワード (不易流行)。

四日市萬古焼は大正期に始まる半磁器土の開発によって飛躍的發展を遂げ、今日の業界繁栄の基礎を形成したといえる。また半磁器製品の量には及ばないが、明治初期より産地内原料である垂坂山陶土を利用して様々な製品が焼かれている。(現在は他産地の原料を使用)中でも伝統的な茶器、急須は四日市萬古焼の看板的产品として当時より現在まで全国的に知られている。過去・現在・未来と「不易」なるものの代表として萬古焼製品はこれからも生産されていくであろう。

一方、時代とともに変化する「流行」にも積極的に対応しなければならない。「不易流行」はデザインの基本コンセプトであり、売れる商品のキーワードでもある。過去、萬古焼はそれを果敢に実行してきた。いま、業界は低迷する経済の今日状況の中で、時代のトレンドをデザインする真の開発能力が問われている。ここに昨年11月の研究発表で展示した試作品を掲載する。

3. 試 作 品

イ. 厚盛プリントによる急須(写真A～E)

(製作意図) 萬古急須のサーフェス(表面・表層)に注目し、素地と同質の土、あるいは色化粧土を厚盛りにプリントするデザインを試みた。これまでの彫刻刀による凹状の加飾とは異なり、厚盛りプリントによる凸状の表面処理は、今日的な斬新なデザイン表現が可能になる。

(製 法) MS-50フィルム5枚水貼り、光源(メタルハライドランプ200V, 3KW)露光時間(9min. 距離1m)、印刷(手動印刷機により和紙に印刷)。

ロ. 厚盛プリントによる陶版画(写真F～G)

(製作意図) 厚盛りプリントを利用した陶器の版画があってもおもしろい。

萬古急須土の質感を生かし、抽象パターンを重ねた厚盛りプリントの陶版画はギフト用商品として提案できる。

(製 法) 同上のプリント技法、たたら板成形、SK8、還元焼成、上絵付焼成。

(材 質) 赤萬古土、色化粧土、金銀彩絵具、ナラ材額縁。

ハ. 陶時計 (写真H~I)

(製作意図) 陶版や陶造形物に金属版等の異素材を組み合わせ、市販の時計部品をセットしたもの。これも赤萬古土を利用した新商品の提案試作品である。

(製法) 同上のプリント技法、たたら板成形、ロクロ成形。

(材質) 赤萬古土、色化粧土、金銀彩絵具、時計、真鍮版、鉛板。

ニ. 陶照明具 (写真J~K)

(製作意図) 赤萬古土に地元半磁器土を加え、鑄込成形による天然石の形状をした造形物を成形し、ガラスと組合わせた照明器具の試作品。急須土の質感を生かした室内のムード照明具。

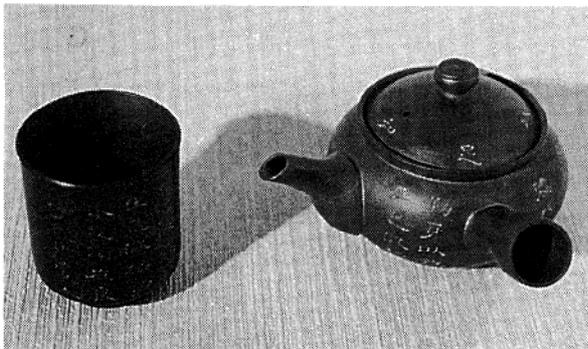
(製法) 鑄込み成形、SK8、炭化焼成、宙吹きガラス成形。

(材質) 赤萬古土、ガラス、接着剤、電気部品一式。

4. 試作品のデザインコンセプト

◎サーフェス (Surface) = 表面・表層

◎異素材による組み合わせ



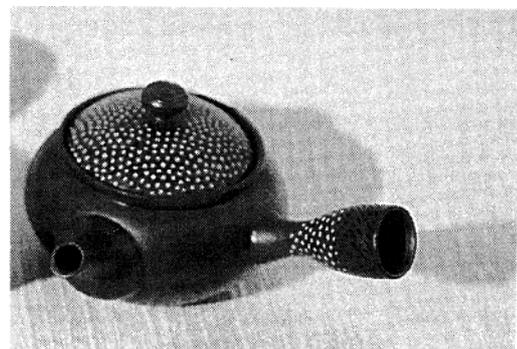
A



B



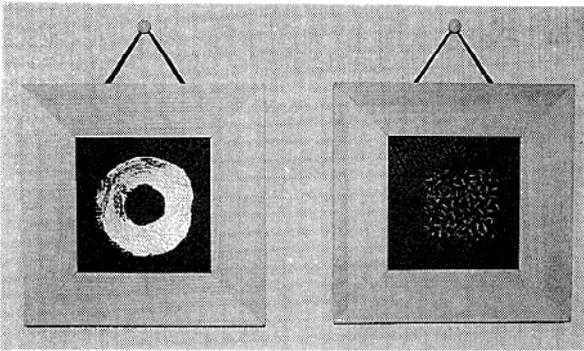
C



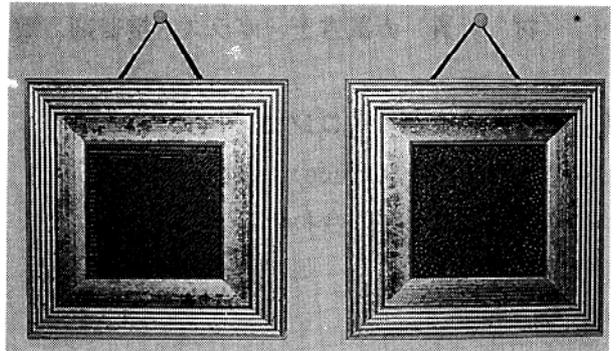
D



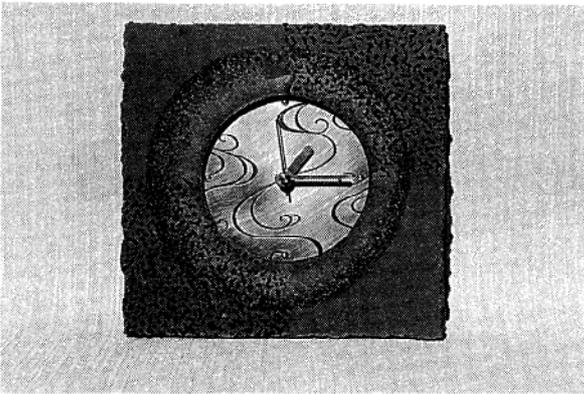
E



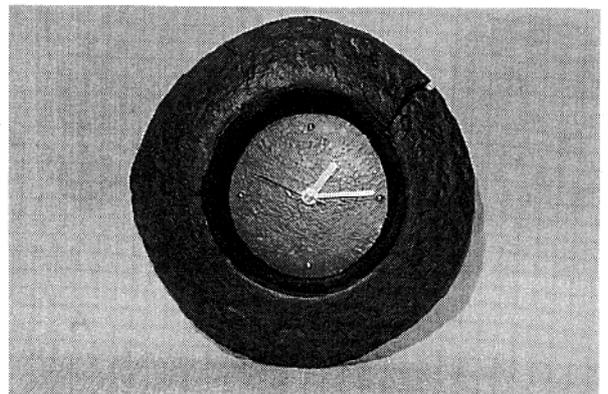
F



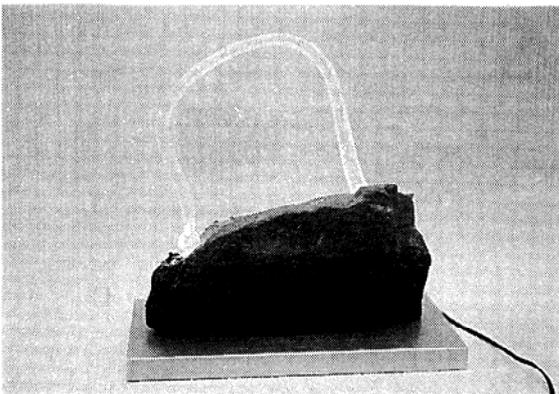
G



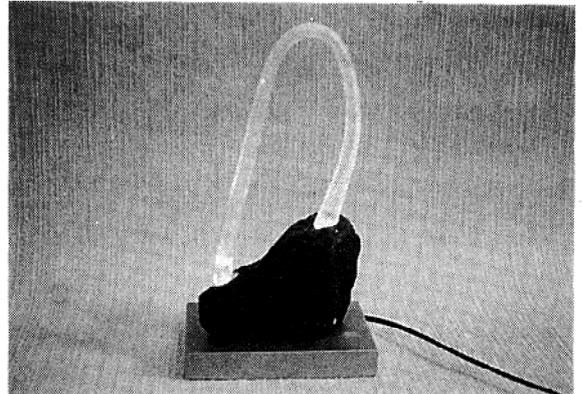
H



I



J



K

(10) 「伊賀焼 C I マニュアル研究」

このテーマは伊賀分場のデザイン担当者の研究であり、県行政の政策と同じではありません。これはマニュアルであり、プランの一例です。

窯業試験場伊賀分場 研究員 榑谷 幹雄
窯業試験場 主任研究員 北川 幸治

〔1〕伊賀焼 C I マニュアルについて

◆ C I とは

コーポレート・アイデンティティー (Corporate Identity) の頭文字 C と I を使った略語。企業の特質、全体像を一見して識別させ、内外に認知させる仕組み。いわばその企業の身分証明書である。環境が複雑になり、これに応じて企業も多角化、脱本業などを通じて複雑化している。そこで今一度自己確認を行ない、社会における自社の存在意義を明確化する必要が出てきた。広範囲な顧客を対象とし、かつ競争企業が複数存在する場合、その企業が何をやる企業でどんなビジョンを持つ会社なのかを内外にアピールすることが重要な企業戦略となっている。このため、自社の製品イメージや企業イメージを再検討、統一して市場に浸透させるとともに、戦略に明確な方向性を与え経営資源の有効活用を図ろうとするものが、C I 戦略である。したがって C I 戦略は、単に社名を変更したりシンボルマークを統一するだけでなく、社内の意識改革や戦略の首尾一貫性を同時に達成する必要がある。

◆ C I 導入の歩み

C I の導入は70年代に始まり、日本経済の構造変容など、不確実性の高まった80年代に盛況を見た。当初はデザイン面重視であったが企業理念の構築など、組織、風土革新のツールとして注目を浴びるようになった。90年代に入り、押し寄せるグローバル化の中で世界的視野に立ち、21世紀を睨んだ企業アイデンティティーの構築が求められる。

C I の草創期	1970年代
・デザイン・システムへの注目 ・小売業中心	
↓	
不確実性の時代と C I	1980年代
・先行き不透明感と C I の盛況 ・外面 (デザイン) から内面 (企業理念) 重視へ ・企業のリストラクチャリングのツール	
↓	
C I の方向	1990年代
・製品からコーポレートレベルまでのイメージの整合 ・21世紀を睨んだ企業ビジョンの構築 ・One World Market化に対応したデザイン戦略	

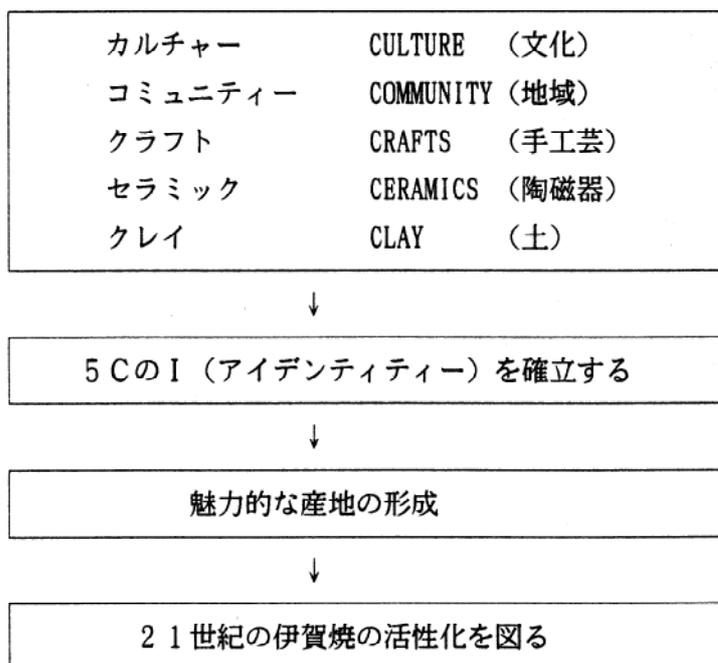
◆なぜ今、伊賀焼C Iなのか

産地を取り巻く環境に、技術の革新や流通の多様化など、さまざまな激しい変化が起きている。技術、情報が発達し、産地あるいは企業間の競争が激しくなるに従い、産地の均質化が進み、製品あるいは商品から産地の個性を見いだすのがむつかしくなっている。また市場はといえば消費者ニーズの多様化により、細分化され、商品のライフサイクルも短くなっている。そこで産地では広告宣伝や販売促進、PRに力を入れるようになり商品、企業、産地のコミュニケーションの量が飛躍的に増大している。現代社会は世界的規模で、あらゆる情報に満ちあふれている。

この様な環境の中で伊賀焼産地もコミュニケーション活動を余儀なくされている。努力を怠ると産地やブランドの個性とイメージは薄くなってしまおうといわざるを得ません。産地個性が失われやすい現代のコミュニケーション環境において、いかにして産地のパーソナリティーを取り戻し、21世紀に向けての一貫したイメージを内外に形成できるのかが産地活性化のうえで大きな課題であると考えます。

◆伊賀焼C Iとは

テーマ「伊賀焼C Iマニュアル研究」のCはこれまでのC、つまりコーポレイトのCではなく次の5つのCを意味します。



〔2〕伊賀焼の歴史と現状

◆歴史

- ・伊賀焼の歴史は奈良時代に伊勢の皇大神宮に焼き物を献上したと記録に残っているという説
- ・鎌倉時代に入ると六古窯その他の地方での特色ある焼き物が現れてくるが、信楽と境を接す伊賀でもその頃から壺や摺り鉢等の生産が始まったという説。
- ・鎌倉室町時代から壺や摺り鉢があったと考えられたこともあったが、桃山時代に忽然と茶の名窯として登場してきたという説。

伊賀焼の始まりはこれらの三つの説があります。

伊賀焼がその歴史の中で注目を集めた時期は桃山時代、江戸時代初期であり、それは茶陶とともに発展を遂げた。筒井伊賀、藤堂伊賀と呼ばれているものである。特に古伊賀と呼ばれる名品の特徴としてそれらはもっとも強い個性の主張を実現したもの、それはバランスを崩したフォルムつまり「ひずみたる」という、シンメトリックをはずした形である。この時代の美意識「破調の美」なのである。茶陶伊賀の歴史は以外と短く江戸時代初期で終わり、その後は日用雑器、耐熱食器などが生産され明治、大正、昭和、から現在までその特徴は変わらず続いている。

◆丸柱地区・企業形態の推移と現状

過去の三重県窯業試験場年報より4、5年毎の伊賀焼業界の概要をピックアップする。

昭和44年度

阿山郡阿山町丸柱地区は滋賀県信楽町に近位し、19工場が伊賀焼陶磁器工業協同組合を結成している。

生産高は2億5千万円程度で、製品の殆どは土鍋であるが、中には伝統ある”伊賀焼”の特徴をベースとして”新しい伊賀焼”へ発展する意欲にもえる工芸的（工房的）も一、二ある。

昭和48年度

当地区は蛙目、木節粘土など耐火度の高い粘土に恵まれ耐火性に特徴をもつ厨房用品を主生産品とする歴史の古い陶業地である。

企業数は伊賀焼陶磁器協同組合傘下で19、未加入企業やタイル製造の大、中企業及び工芸的工場を含めると34工場あり、それらは阿山町丸柱を中心に石川、馬田、上野市に散在している。

昭和51年度

当地区の業は古い歴史をもつ伊賀焼で代表されるが、その伝統は阿山郡丸柱を中心とした陶業者によって引き継がれ、この付近一帯は県下第二の陶業地として発達している。企業数は伊賀焼陶磁器協同組合傘下で19、未加入企業や工芸的工場を含めると39工場に達する。

昭和55年度

阿山町丸柱を中心に土鍋、和食器、茶華器等を生産している。しかし当業界を取り巻く経済環境は厳しくここ数年来の低迷が続くなかで特に本年は全国的な不況が伝えられているが、こ

の不況から脱皮しようと色々な振興策が行なわれている。

本年2月には、伊賀焼振興協同組合（組合員数42名）が設立され「伝統的工芸品産業」の指定を受けるべく後継者の育成、品質の向上等に取り組んでいる。

昭和58年度

当管内の窯業産地は、古い歴史をもつ伊賀焼で代表されるが、その伝統は阿山郡丸柱を中心とした製陶業者によって引き継がれてきました。当地域一帯は県下第二の陶業地として発達してきました。伊賀地区には耐火性の蛙目粘土、木節粘土に恵まれ、土鍋、行平、土瓶、和食器の製品や、土灰釉を特徴とする茶華道品も生産されている。

平成4年度

伊賀焼は古い歴史をもち、阿山町丸柱を中心とした陶業者によって、その伝統が引き継がれ伊賀焼産地として発達し今日に至っている。

その間、昭和57年11月に伝統的工芸品産業の指定（伝産指定）を受け、平成3年4月に地場産業の振興と発展を図るため伝統産業会館が建設され、後継者育成、市場調査等による産地の活性化、伊賀焼陶器市などその事業が期待されている。

生産業者数は69業者

（阿山郡 42 上野市 16 名張市 8 名賀郡 3）、

従業員数は約260人である。

平成3年度の生産額については阿山町内の31業者で約9億2000万円、従業員数約180人である。

伊賀焼生産高の推移

	土 鍋	食 器	合 計
昭和61年度	47,233	32,428	79,661
昭和62年度	45,745	32,781	78,526
昭和63年度	42,575	37,757	80,332
平成元年度	40,738	42,003	82,741
平成2年度	39,965	43,959	83,924
平成3年度	40,262	51,907	92,169
平成4年度	36,614	52,044	88,665

伊賀焼産地陶磁器メーカーのデザインに関する意識 …アンケート調査結果より…

- ◇調査時期 平成4年12月
- ◇調査対象 伊賀焼産地陶磁器メーカー63件

- ◇解答企業 14件（内丸柱地区）3件
- ◇質問項目の概要 質問項目としては、デザイン開発関係業務の処理担当者、デザインへの関心理由、開発業務の進め方、人材育成、現在抱える問題点等を選択式で回答を求めた。
- ◇回答の分析
 - ・回答企業は個人（陶芸作家）が多く、デザインに関しての業務は代表者が処理しているところがほとんどである。
 - ・デザインへの関心理由は製品の品質、消費者ニーズ、商品の個性化等のためである。
 - ・開発業務は個人企業は独自に行い、他は、問屋筋やバイヤーの指示に寄るところが多い。
 - ・人材育成に関してはほとんど何もしてないところが多い。
 - ・多くが情報不足、設備不足を問題点としている。

〔3〕伊賀焼産地のメリット・デメリット

◆メリット

☆人と人情

伊賀焼産地、特に丸柱地区には代々そこに住む人々が、ともに陶業を営み生活してきたなかでの深い結びつきがある。その連帯感と地元への思いは、他人へのいたわりでもある。いうなれば人情味に厚いとも言える。

☆自然とスペース

周囲を山に囲まれた美しい自然環境は、伊賀焼産地最大の資産の一つである。その周囲には古来から採掘されてきた木節粘土、蛙目粘土、丸柱長石等多くの地下資源もある。また余裕のある土地スペースは、今後の発展の可能性を無限に秘めているとも考えられる。そして地理的にも関西圏と中京圏の中間に位置し、自動車専用道路によって結ばれているので、両方面からの観光客誘致と商業取引に有利である。丸柱地区は歴史的に密接した関係を持ち続けてきた信楽まで峠をはさんで10km程の距離であり、陶産地として共に発展していくことが期待できる。

☆伝統と歴史

五百年以上といわれる伊賀焼の歴史はこの産地にとって、現有する最も重要な財産であると言える。そこには伝統に裏付けられた確かな技術があり、地域の文化と誇りがある。言い換えればこの歴史は伊賀焼そのものであり、この財産の活用なしには未来もあり得ないと言えよう。

◆デメリット

☆人に関して

◇人材不足……他の多くの産業、地域でかかえる人手不足問題は伊賀焼産地でも大きな課題である。陶磁器産業に携わる人々の高齢化に加え、後継者不足も深刻である。

◇観光客不足……特に丸柱地区においては伊賀焼生産量の大部分を占めるのにもかかわらず、

年間観光客数は約一万人で、ある程度の知名度を持つ伝統的な陶産地としては多いとは言えない。観光客不足は産地に直接流入する資金面でみても、産地の活性化といった点でも大きなマイナス要因になる。

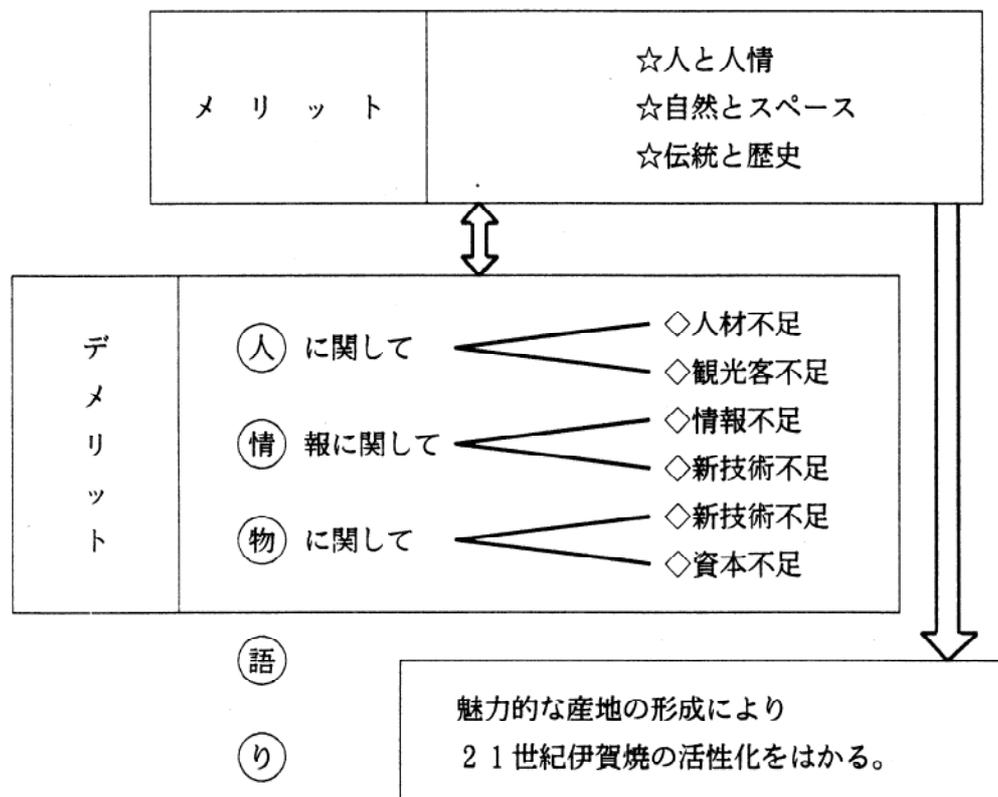
☆情報に関して

- ◇流通の不足……………丸柱地区には伊賀焼の専門小売店は数少なくまた、商品を全国に直接売り込むことのできる商社、産地問屋も少ない。これには生産量や採算等多くの理由も考えられ、現在の状況は必然的なものでもあるとも言える。
- ◇情報不足……………消費地や都心から離れていることもあり、最新の市場情報や技術情報を直接入手しにくい状況にある。これには前記の商社、商店の不足もその原因と考えられる。

☆物に関して

- ◇新技術不足……………人手不足、情報不足等に対処するための新技術や新設備が確立されていない。高級陶磁器等の生産に適した従来の伊賀焼伝統技術に加え、自動化、省力化を進め、そしてより高度な技法を取り入れるための技術、設備が考えられる。
- ◇資本不足……………各メーカーの新設備の導入や公共施設、観光施設等の開設のため、公的資金等の流入が必要である。

……………伊賀焼産地のメリット・デメリット……………展開図



〔4〕人情物語り

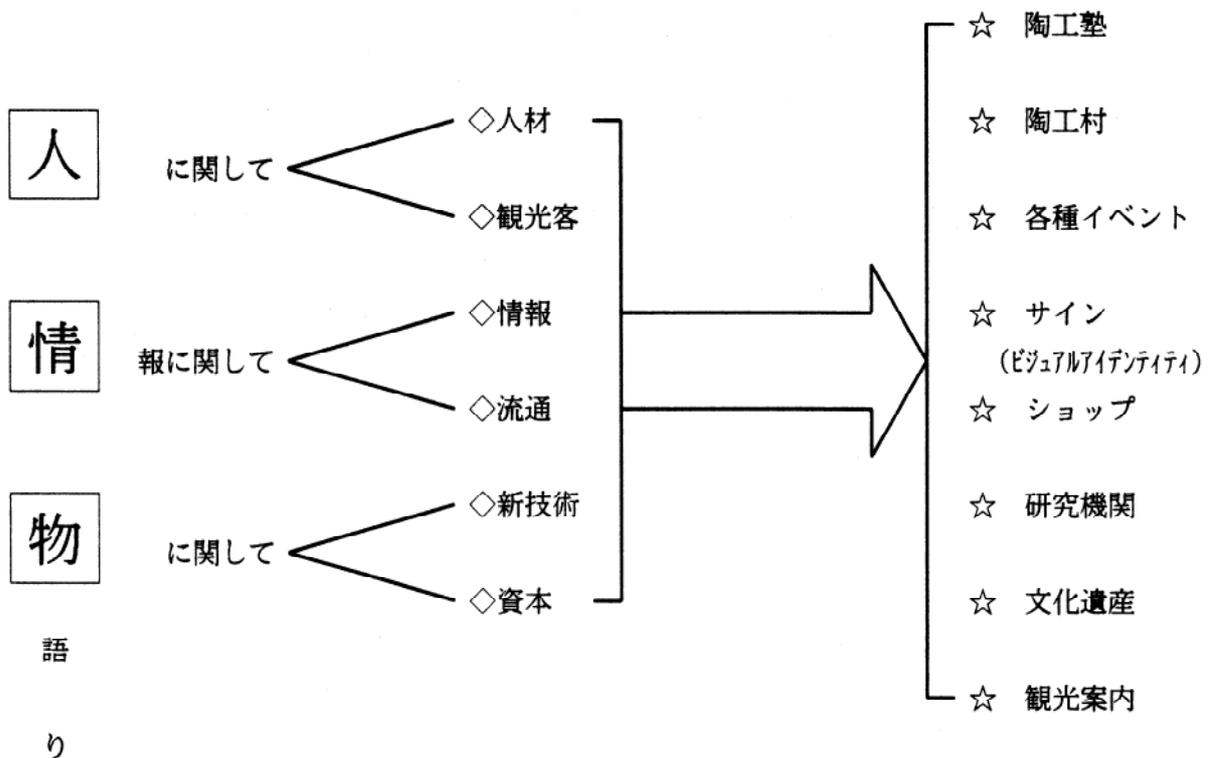
……魅力的な産地を形成して、21世紀伊賀焼を
活性化するための具体的な方策例……

☆基本的なコンセプト

- ・ 伝統を受け継ぐ
- ・ 自然を生かす
- ・ 未来に羽ばたく

- 『伝統』 伊賀焼の歴史は人間と文化と技術をすべて内包したすばらしい伝統である。これを受け継ぐことを全てのプランの基本とする。
- 『自然』 美しい自然環境と資源は伊賀焼の母体である。これを見失うことなく、共存することを前提とする。
- 『未来』 伝統を踏襲するだけでなく、未来を見据えた産地作り、地域おこしが必要である。未来に向かって改革すべき点を探る。

人情物語りの展開図



◆PLAN-1- [陶工塾]

- ・目的；陶工の人材育成、伝統技術の継承等、技術研鑽の現場を構築する。
- ・内容；塾生（研修生）は産地内で仕事に従事していること。陶工塾は阿山町、町内関係企業、協賛団体からなる組織で運営する。基本的に研修費は無料。
陶磁器成形から焼成まで、専門学校に準ずる程度の教育を受けさせる。
「働きながら学ぶ」が基本コンセプト
- ・効果；技術の継承、新しい製品の開発など、産地内で働きながら将来の伊賀焼を担う人材を育成できる。

◆PLAN-2- [陶工村]

- ・目的；陶磁器職人、陶磁器関係企業社員、研修者、陶芸家らの居住スペース
- ・内容；地域の生産者人口が増加した場合の住宅不足を解消するための居住スペース。住宅分譲、宅地分譲をし、さらに研修者向けの長期滞在用アパートを設ける。また陶芸作家らの誘致をして陶房や小ギャラリー等も併設する。
- ・効果；陶産地として必要な人材の確保につながる。また陶芸家らの創作活動により、地域にとって新たな活力と新鮮な情報を得ることができる。さらに陶房や小ギャラリーの併設により作家活動がよりオープンになることが期待できる。

◆PLAN-3- [各種イベント]

- ・目的；伊賀焼と産地の知名度を高める。観光客やバイヤー、研修者らを集める。商品の直接的な売り上げを伸ばす。
- ・内容；現「伊賀焼陶器まつり」を発展させる。
やきものコンベンション、シンポジュームの開催
「各種交流イベント」の開催
例（「世界やきもの市」「料理と器ーグルメフェアー」「陶工と登り窯の里ツアー」
「古窯再築体験ツアー」「茶陶伊賀セミナー」「ビードロ講習会」）
「IGA陶磁器フェスティバル」等コンペの開催。
- ・効果；知名度が上がることにより、より多くの観光客を誘致でき、さらに人材不足の解消にまでつながる。
コンベンション、公募コンペの開催により新技術、マーケット情報等を得ることができ、ひいては産地の活性化につながる。

◆PLAN-4- [サイン]

☆伊賀焼VI（ビジュアル・アイデンティティ）

- ・目的；伊賀焼の視覚的なイメージを統一して広くPRし、知名度を高める。
- ・内容；伊賀焼イメージカラー
伊賀焼イメージコピー
伊賀焼シンボルマーク・ロゴタイプ（写真1）

・効果；展示パネル（写真2、3）アプリケーション参照（写真4、5、6、7）

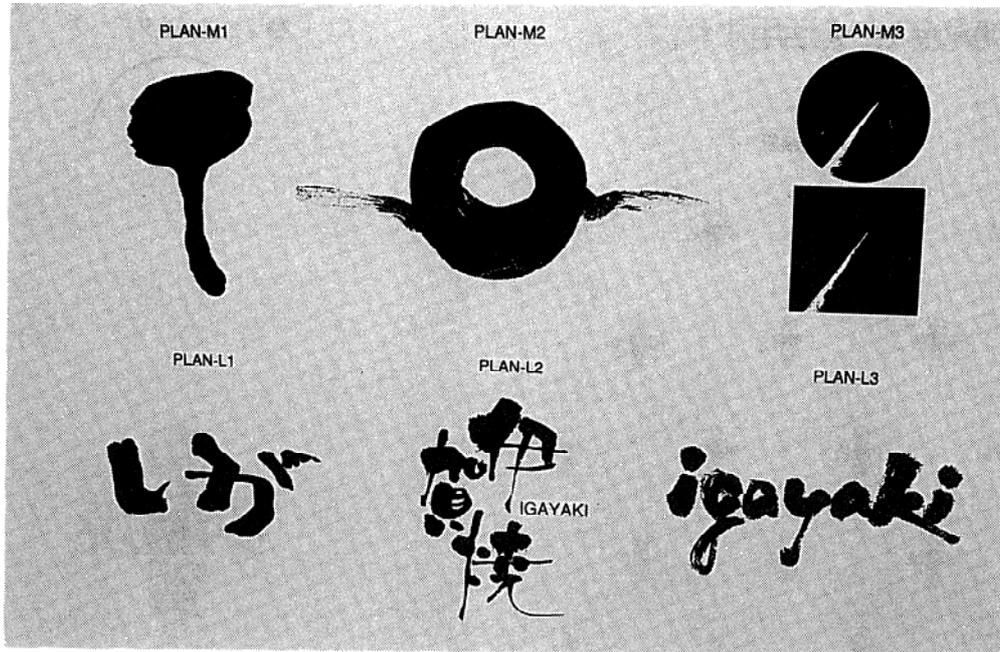


写真1

伊賀焼V.I. ビジュアル・アイデンティティ 1

■目的
伊賀焼の視覚的なイメージを統一して広くPRし、知名度を高める。

■伊賀焼CIのコンセプトからVIを

コンセプト
伝統を受け継ぐ
自然を生かす
未来に羽ばたく

- 伊賀焼イメージカラー
- 伊賀焼イメージコピー
- 伊賀焼シンボリック・ロゴタイプ

■キーワードマップ

写真2

伊賀焼V.I. ビジュアル・アイデンティティ 2

■伊賀焼イメージカラーは

コンセプト
伝統を受け継ぐ
自然を生かす
未来に羽ばたく

火色・炎・高火度・焼きしめ・明・発展・前進・飛躍

コゲ・わびさび・木筋粘土・清涼・寒

ビードロ・田園・山・健康・友好・協調

■伊賀焼イメージコピーは

コンセプト
伝統を受け継ぐ
自然を生かす
未来に羽ばたく

キーワード	キャッチコピー
●個性	「Clay and Fire伊賀焼」
●炎	「破調の美 伊賀焼」
●ビードロ	「火艶美 伊賀焼」
●破れ縁	「茶で見て焼いて伊賀」
●破調の調	焼いて焼いて焼きめいて伊賀焼
●高火度	灼熱の美
●ゆがみ	熱い情熱 伊賀焼
●ひずみ	人と大自然の愛の結晶
●生爪	創意と大自然による結晶
●からたち	美・エキサイティング伊賀焼
●友好	熱きおれを託して伊賀焼の心
●わびさび	人と大自然の熱いおもいが
●絆	つくりあげた美の結晶
●風	愛の伊賀焼
●ほうらく	烈しい炎の洗礼を受けて誕生
●土鍋	
●行平	
●土びん	

写真3

■ 伊賀焼 VI を活用すれば

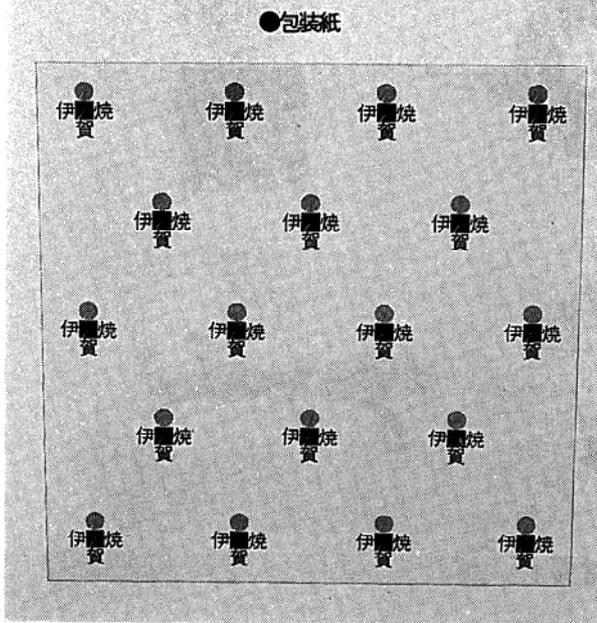


写真 4



写真 5

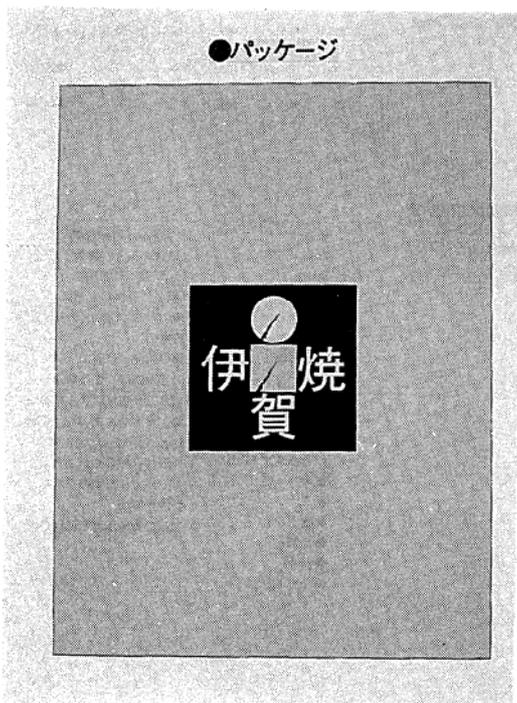


写真 6

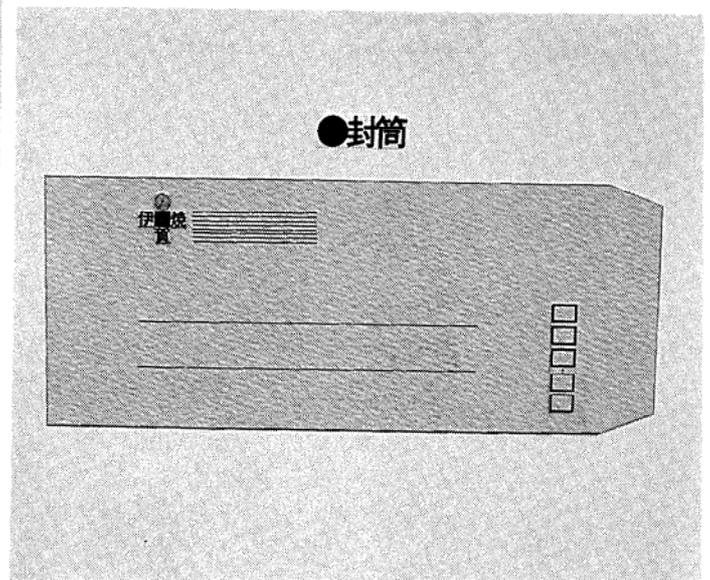


写真 7

◆PLAN-5- [SHOP]

- ・目的；産地内の店づくり

SHOP=店

- 「メーカーの小売屋さんづくり」
 - ・共同販売店舗 → 独立店舗
 - ・独立店舗 → 集合販売店舗
- フリーマーケット（陶市）の開催

- ・内容；産地内の店づくりのひとつはメーカーによる店舗づくりが考えられる。共同出資による共同販売店舗から発展した独立店舗の形成。あるいは小型独立店舗から発展した集合販売店舗の形成これらの小売屋さんづくりは情報づくり、情報発信づくりの拠点となる。
イベントとしての店づくりには、月に一度のフリーマーケットが有効である。それを「伊賀焼陶市」と名付け毎月11日に開催する。
- ・効果；情報の収集、交換、発信機能が期待される。あわせて人の交流が促進され、地域の活性化につながる。

◆PLAN-6- [研究機関]

- ・目的；
 - ・内容；
 - ・効果；
- 人、情報、物、全てに係わる技術行政の拠点を充実する。

◆PLAN-7- [文化遺産]

- ・目的；全国に散在する伊賀焼き名品を収集展示し、古窯跡、現在残る登窯、穴窯、やきもの関連民具、道具等の展示見学ができるようにする。
- ・内容；「伝統産業会館」等で伊賀焼き名品を収集展示する。
やきもの関連民具、道具、構造物の再築や舞台を伴った「たないたガーデン」などやきもの里を連想させるような施設を作る。
古窯跡等をつなぐ「やきもの散策路」の整備
- ・効果；文化的な史跡の残る地域というイメージを確立させる。伊賀焼名品と現生産品とのつながりをイメージづける。観光資源の目玉となる。

◆PLAN-8- [観光案内]

- ・目的；公共交通機関の整備を計り、どの方角からのアクセスも容易にする。身近な観光地としての手軽さをPRする。
- ・内容；丸柱地区、上野市内、信楽地区を結ぶ定期観光循環バスを運行させる。
丸柱地区に通じる道路全てに案内標識と地図を掲げる。
JR関西本線の電化複線化を推し進める。
伊賀焼観光パンフレットを充実した内容で発行し、旅行会社等にも配布する。
- ・効果；関西圏、中京圏のみならず全国からの観光客を集め、流通に活気を与える。

(11) 伊賀焼陶磁器工業協同組合土の開発試験

伊賀分場 伊 濱 啓 一 熊 谷 哉

近年、伊賀、信楽地区の製土企業の土が地元業界にはいりにくくなったり、成形性状、焼成性状が不安定であったりする状況が時々発生している。

そこで、伊賀焼陶磁器工業協同組合から、現在の工組土の安定化の方策と、現在の組合土とは異なる新しい土を開発してほしいとの依頼があった。

工業組合側と当試との間で検討した結果、設備投資の問題もあり、とりあえず、現在より荒目の土として20目篩通過の土と、現在の工組土にNAT鉄(Fe_2O_3)を添加した赤土について試験することにした。

1. 実 験

各実験用坏土は次のように調整した。

現 在 土：現在生産されている土

20目土：現在トロンミル中で湿式混合・解砕されている泥漿を20目篩を通過させ、石膏型で練土状態まで脱水し実験用坏土とした土

1%~6%土：現在土にNAT鉄(Fe_2O_3)をそれぞれ1~6%添加して練った赤土

各坏土について、各種物性や成形性、焼き歪等の判断のため、テストピース（物性値測定用）と半自動機械ロクロにより小鉢（10個/各坏土）を成形し、地元業界の焼成温度を考慮して、下記の条件で焼成した。

還元焼成：ガステスト炉でSK8+ RF（12時間）

酸化焼成：電気炉でSK80F（12時間）

釉薬は土灰透明釉、石灰透明釉、ビードロ釉、伊羅保釉を使用した。

	土灰透明釉	石灰透明釉	ビードロ釉	伊羅保釉
釜戸長石（特）	55	58		35
平津長石			50	
鼠石灰石		12		18
合成土灰	20		25	18
亜鉛華		4		3
マグネサイト				2
丸二陶料88天然土灰	5		5	
炭酸バリウム	7	6	7	5
蛙目粘土	5	7	5	5
カオリン				8
硅 石	5	11		
#3127フリット	3			
#1121フリット		2	8	6
Fe_2O_3			1.0	1.5
Cr_2O_3			1.2	

2. 試験結果と考察

まず、各坏土の成形性については全く問題なく乾燥収縮等による切れの発生もありません。

次に、焼成性状についても焼き歪等の欠点はなく、唯一20目土については、その粒度が粗いため口周り等の仕上げに注意をはらう必要がある。

各坏土の各種物性値を表に、小鉢の焼成結果を写真1、2、3に示す。

今回のような酸化鉄を含んだ荒土坏土の乾燥収縮、焼成収縮とその成形時の水分との関連は従来あまり言及されていません。そこで今回の実験においては、各酸化鉄の添加量のいかんにかかわらず成形時の水分をほぼ一定の条件として、成形、乾燥、焼成を行い、各種物性値を算出した。

実際には、酸化鉄の添加量が多くなれば水分量を多くした方が成形しやすいことは現実であります。その分成形工程における欠点も多くなる。

こうした結果から乾燥収縮、焼成収縮の評価はその坏土の水分量により影響されることがわかり、今後こうした観点で坏土の各物性の評価をすべきであることが判明した。

表 各坏土の物性値

試料名	成形時の水分(%)	乾燥収縮(%)	焼成収縮率(%)		吸水率(%)		色調、その他
			SK8 OF	SK8+ RF	SK8 OF	SK8+ RF	
現在土	24.7	5.8	5.8	5.8	14.1	13.3	
1%土	24.3	5.8	5.7	5.5	14.1	13.2	下絵付加工するには良好な色調。
2%土	24.6	6.1	5.8	5.2	14.1	13.1	赤土単味として利用するには、この程度の色調が良好。粉引・ハケ目化粧に適
3%土	24.8	6.3	5.8	5.1	13.7	12.8	
4%土	24.7	6.2	5.8	4.9	13.5	12.4	
6%土	24.5	6.0	6.0	4.7	13.4	11.9	色調が濃すぎる。
20目土	25.5	5.3	4.0	4.4	18.1	17.6	荒土の感覚は良好、仕上げに注意。

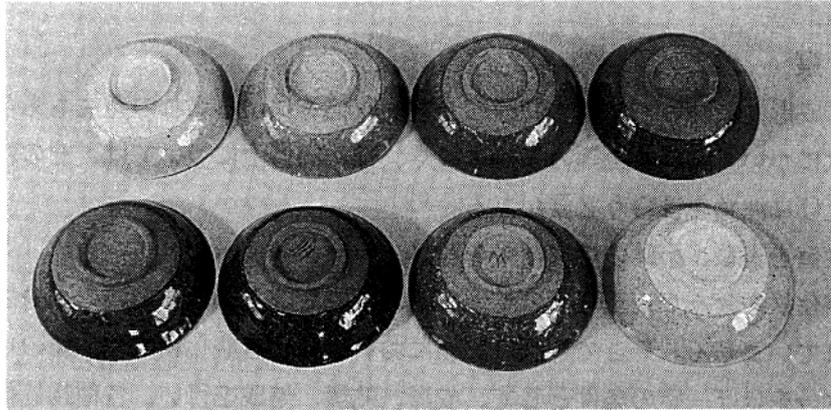


写真1 小鉢の焼成結果（土灰透明釉、SK8⁺ RF）
 左上から、現在土、1%土、2%土、2.5%土
 左下から、3%土、4%土、MIX土、20目土
 MIX土は4%土50%と20目土50%を混合した土

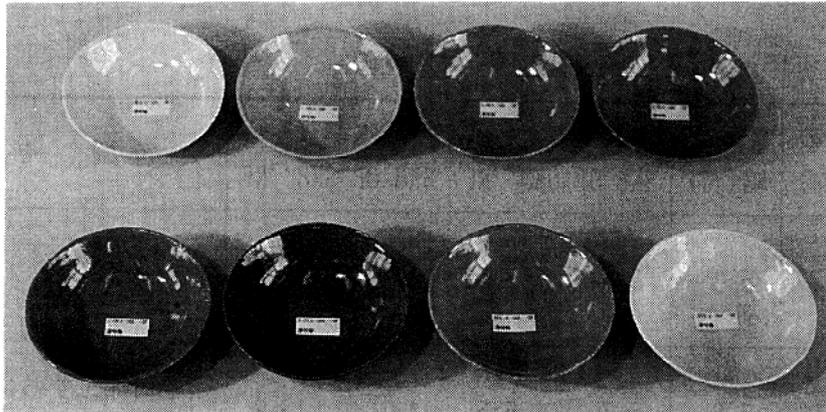


写真2 小鉢の焼成結果（石灰透明釉、SK8 OF）
 左上から、現在土、1%土、2%土、2.5%土
 左下から、3%土、4%土、MIX土、20目土
 MIX土は4%土50%と20目土50%を混合した土

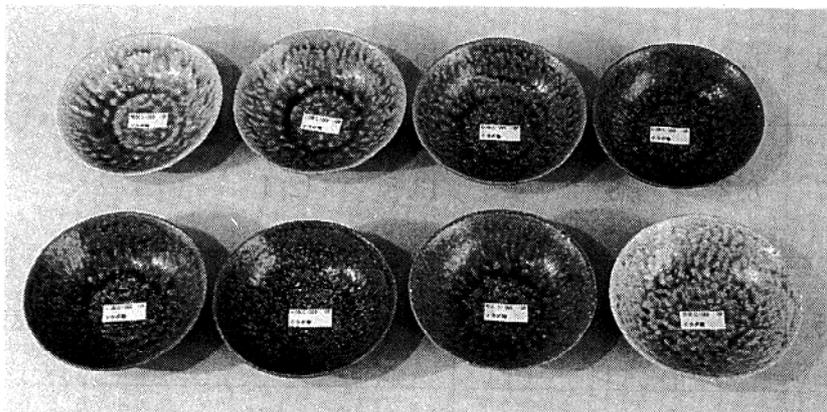


写真3 小鉢の焼成結果（伊羅保釉、SK8 OF）
 左上から、現在土、1%土、2%土、2.5%土
 左下から、3%土、4%土、MIX土、20目土
 MIX土は4%土50%と20目土50%を混合した土

3. ま と め

今回のような荒土坏土と酸化鉄の混練においては、その方法を十分検討しないと、釉飛び等の欠点が生じることが多いので注意が必要です。

当試段階での成形試験、焼成試験では全く問題がなかったのですが、協同組合側の意向を受け、4%土を200kg調整し、荷口試験用坏土としてわたした。

三重県窯業試験場年報

平成4年度 (Vol. 27)

発行日 平成5年10月1日
発行 三重県窯業試験場
三重県四日市市東阿倉川788
電話 0593-31-2381
FAX 0593-31-7223