

マイクロ波加熱による陶磁器素地の焼成

福永 均 伊藤賢次 名和正博 不二門義仁

Sintering of Ceramic Bodies by Microwave Heating

Hitoshi FUKUNAGA, Kenji ITO, Masahiro NAWA and Yoshihito FUJITO

セラミックスは通常ガス炉または電気炉により焼成を行なっているが、素地表面から内部に熱を徐々に伝達させるため、焼成は長時間を必要とする。一方、マイクロ波照射による加熱は被加熱物自体が発熱するため、短時間での焼結が可能である。また燃焼に伴う炭酸ガス等の環境汚染ガスの排出もない。このような特長を持ったマイクロ波加熱により発熱する素材や発熱素材を添加した素地の発熱特性を把握し、陶磁器素地を短時間で均一焼成できる焼成方法について検討した。

- (1) 黒鉛、活性炭、炭化ケイ素、フェライト及びチタン酸バリウムにマイクロ波を照射すると、フェライト以外の材料は照射時間の経過に伴い、ほぼ直線的に温度上昇し、活性炭は500W 8分間照射で約1000℃になった。
- (2) 貫入土に活性炭等発熱素材を添加した素地にマイクロ波を照射すると内部より発熱し、出力が大きい場合、表面との温度差が生じ、クラック等が発生しやすくなる。また素地温度は出力の増加に伴って急激に上昇するため、マイクロ波出力を徐々に増加させて焼成することにより、表面と内部との温度差を少なくすることができ、短時間で均一焼成できる焼成方法を見いだした。
- (3) 貫入土に活性炭15%添加した素地にマイクロ波出力を徐々に増加させ、1000℃(45分間焼成)で焼成して得られた焼成体の吸水率は38.8%、見掛け気孔率50.6%となったが、本試料を電子レンジ内で2分間照射した場合、表面温度は約200℃になり、加熱調理用品として活用できることが分った。

1. 緒 言

マイクロ波加熱によるセラミックスの焼結はマイクロ波が物質内部に浸透し、誘電損失等により吸収され、熱に変換されるため、電気炉やガス炉等の外部加熱に比べて均一加熱、急速加熱が可能となり、魅力的な焼結法¹⁾として注目されている。またアルミナやジルコニアの焼結及び金属との接合等種々の報告^{2)~4)}がなされているが、いずれも高出力、高周波数領域(ミリ波)及び間接焼成が中心であり、実用化するには大がかりな装置が必要となる。

本研究では、陶磁器原料に導電性材料、強磁性体材料及び強誘電体材料等マイクロ波照射により発熱する素材を添加して、業務用電子レンジ程度の出力装置(周波数は電波法で定められている2.45GHz)を用いて短時間で均一に陶磁器素地を焼成できる焼成方法について検討した。

2. 実験方法

2.1 発振装置及び温度測定

マイクロ波発振装置(高周波乾燥装置: 旭物産製、AL)はオープン内容量220ℓ、マイクロ波発振周波数2.45GHz、発振機最大出力1.5kWで、加電圧調整により出力可変になっている。マイクロ波は発振機のマグネトロンから発生し、

導波管を通して、オープン内に照射される。反射されたマイクロ波はアイソレータにより吸収され、発振機を保護している。

温度測定は耐火断熱性の蓋付き容器(内径80mm×高さ65mm)に試験体を入れ、マイクロ波照射時の試験体の表面温度を光ファイバー式放射温度計(チノー製、IR-FBW1)を用いて、連続的に測定した。試験体内部の温度測定は試験体中央部にφ8mm×深さ6mmの穴を開け、その部分を受光して測定した。図1に温度測定の概略を示す。なお、マイクロ波出力は水の温度上昇とマイクロ波出力との関係式よりあらかじめ算出して、所定の出力に調整した。

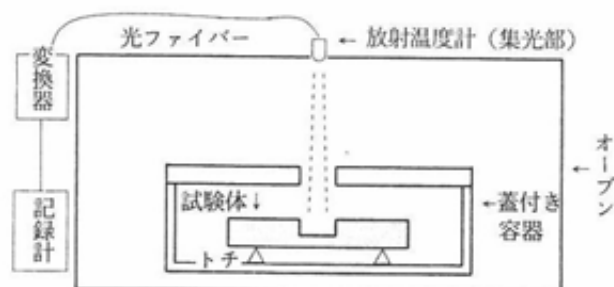


図1 温度測定概略図

2.2 発熱素材の発熱特性試験

一般にアルミナや粘土類等の陶磁器原料は誘電損失が小さく、マイクロ波を透過し発熱しないが、セラミックス材料のなかでも導電性を有する材料、強磁性体材料及び強誘電体材料では発熱するものがある。そこで、マイクロ波で発熱する素材として黒鉛、活性炭、炭化ケイ素、フェライト及びチタン酸バリウムを選定し、これらの素材をアルミナ製ルツボに25g入れ、マイクロ波(500W)を照射し、光ファイバー式放射温度計により発熱温度を連続的に測定した。表1に使用した発熱素材の性状を示す。

2.3 発熱素材添加素地の発熱特性及び焼成試験

瀬戸地区で陶器素地として使用され、比較的低温で焼結する貫入土⁶⁾に黒鉛、活性炭等の発熱素材を添加し、プレス成形によりφ40mm×厚さ12mmの試験体を作製した。この試験体にマイクロ波を照射し、発熱特性を調べた。さらに、最も短時間で高温に達した活性炭添加素地について、マイクロ波照射条件を変化させて、焼成体の温度分布、物理的性質等の試験を行った。なお、焼成体の上、中、下部との物性を比較するため、マイクロ波照射後の焼成体を三等分に切断して吸水率、かさ比重等を測定した。

表1 発熱素材の性状

発熱素材名	主な性状
活性炭	比表面積900m ² /g、かさ比重0.22 粒状(4~8メッシュ)
黒鉛	土状(300メッシュ以下)、人造(200メッシュ以下) 鱗状(48メッシュ以下)
フェライト	ハードフェライト(BaO・5.3Fe ₂ O ₃) Mn-Znフェライト
炭化ケイ素	黒色炭化ケイ素研削材C、SiC96%以上
チタン酸バリウム	純度98%以上、平均粒子径1.5μm

3. 実験結果及び考察

3.1 発熱素材の発熱特性

図2にマイクロ波照射による発熱素材の発熱特性を示す。フェライト以外は照射時間の経過に伴い、ほぼ直線的に温度上昇し、活性炭やカーボンブラックは8分間照射で約1000℃に達した。黒鉛は活性炭に比べて、発熱性は劣るものの、土状黒鉛は17分間照射で約1000℃になった。炭化ケイ素は粒度の粗い方が発熱性に優れているが、黒鉛に比べて、発熱性は劣る。チタン酸バリウムは60分間照射でもほ

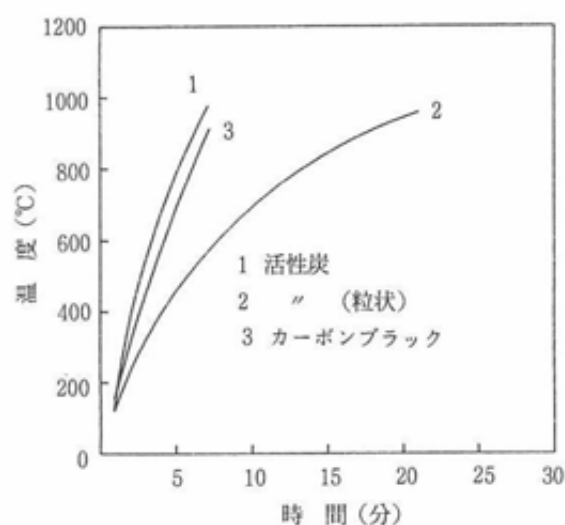


図2(1) 発熱素材の温度特性図

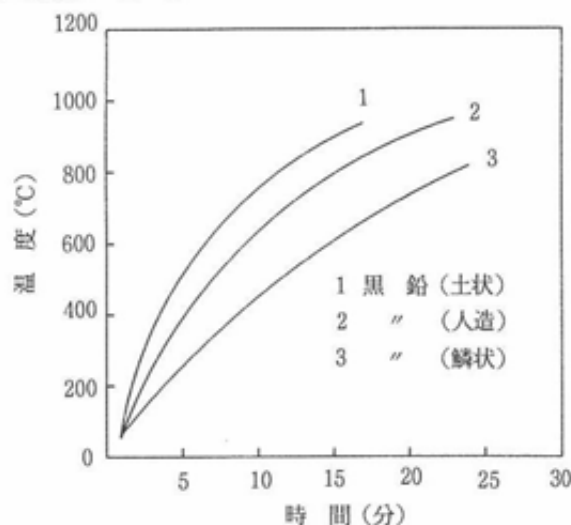


図2(2) 発熱素材の温度特性図

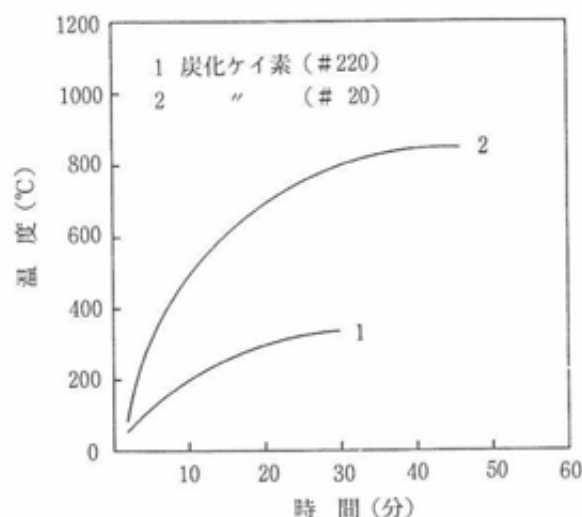


図2(3) 発熱素材の温度特性図

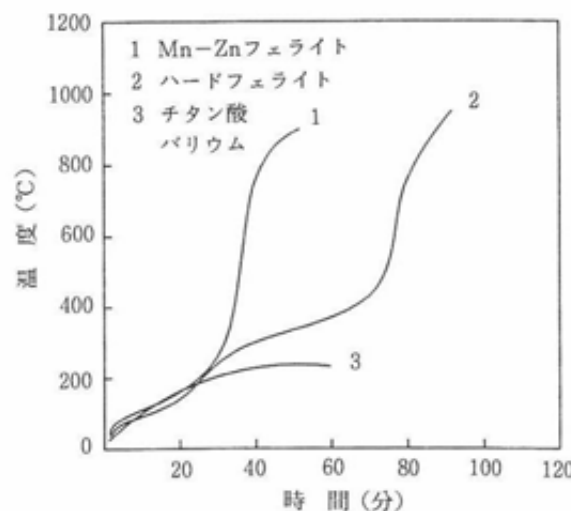


図2(4) 発熱素材の温度特性図

とんど発熱しなかった。フェライトは他の発熱素材に比べて特異な発熱性状を示した。すなわちMn-Znフェライトは300℃付近、ハードフェライトは500℃付近で急激な温度上昇を示し、TG-DTA測定結果による重量の増減温度と一致した。この発熱原因として、フェライトの温度変化に伴う、構造の変化により生じたものと考えられる。

3.2 発熱素材添加素地の発熱特性

図3に活性炭を添加した素地の発熱挙動を示す。活性炭5%添加した素地にマイクロ波を30分照射した場合、1kW照射でも表面温度は約350℃で、250W及び500W照射では300℃以下とほとんど発熱しなかった。しかし、活性炭10%以上の添加素地では、表面温度が急激に上昇し、1kW照射では900～950℃に達した。活性炭の添加効果としては、15%添加素地が最も大きかった。なお、焼成体の表面温度はマイクロ波出力の増加に伴い、ほぼ直線的に増加した。

図4に土状黒鉛を添加した素地の発熱挙動を示す。土状黒鉛は10%添加で表面温度が約800℃と最大値を示し、添加量が多くなると表面温度は低下した。この原因として、黒鉛の添加量が多くなると電気抵抗が小さくなり、マイクロ波を反射するためと考えられる。

炭化ケイ素(#20)は図5に示すように添加量の増加に伴い、表面温度が上昇し、40%添加素地で表面温度は約800

℃になった。フェライト、チタン酸バリウム及び炭化ケイ素(#220)は40%添加でもほとんど発熱しなかった。

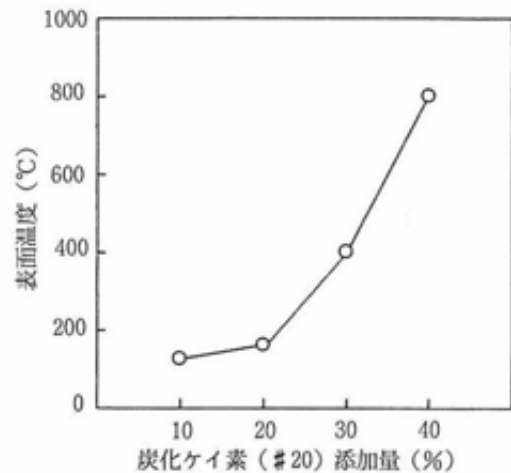


図5 炭化ケイ素添加素地の発熱挙動 (500W30分値)

3.3 活性炭添加素地の焼成試験

3.3.1 焼成体の温度分布

貫入土に発熱素材を添加した素地のうち、最も短時間に温度上昇した活性炭を添加した素地について温度分布を測定した。図6に表面と内部温度を示す。250W照射では初期に若干の温度差があるものの、700℃では温度差はなくなった。またマイクロ波出力が大きくなるほど温度差は増大する傾向を示し、1kW照射では内部と表面の温度差は150～200℃にも達した。なお、表面温度は900℃付近から横ばい状態であった。

3.3.2 焼成条件の検討

マイクロ波照射により発熱する素地は素地自体が発熱し、出力が大きい場合、表面と内部に温度差が生じ、クラック等が発生しやすくなる。また素地温度は出力の増加に伴って直線的に上昇するため、急激な出力増加はクラック等の発生原因となる。そこで、可能な限り短時間で均一焼成を行うため、マイクロ波照射条件を変化させて、貫入土に活性炭15%添加した素地を焼成した。表2にマイクロ波照射条件を変化させた場合の焼成体の物理的性質を示す。

250Wで照射した場合(パターン1)、上部、中部及び下部との物性値はほとんど差異はないが、出力を増加させる

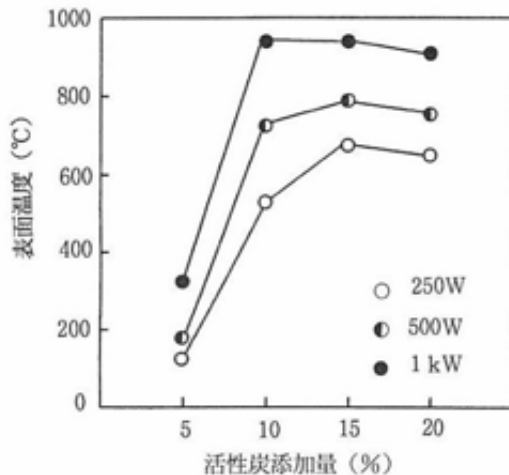


図3 活性炭添加素地の発熱挙動 (30分値)

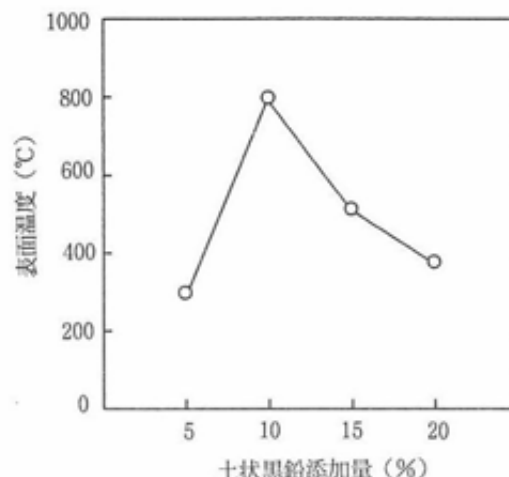


図4 黒鉛添加素地の発熱挙動 (500W30分値)

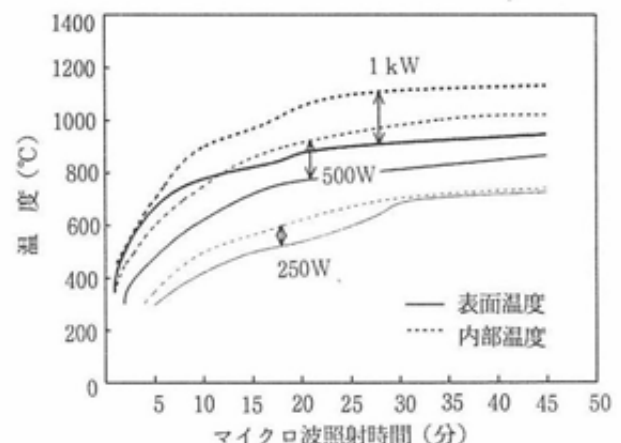


図6 活性炭添加素地の温度特性図

表2 マイクロ波照射条件と焼成体の物性

照射パターン 及び 照射条件	測定 位置	吸水率 (%)	かさ比重	見掛け 気孔率 (%)
パターン1 250W照射43分 表面温度715℃	上部	39.7	1.20	52.3
	中部	38.0	1.24	50.6
	下部	40.1	1.20	52.8
	平均	39.3	1.21	51.9
パターン2 500W照射45分 表面温度876℃	上部	40.0	1.18	54.1
	中部	32.3	1.30	48.0
	下部	28.2	1.33	47.1
	平均	33.5	1.27	49.7
パターン3 1kW照射45分 表面温度981℃	上部	32.0	1.27	49.8
	中部	27.8	1.36	44.8
	下部	20.3	1.45	40.0
	平均	26.7	1.36	44.9
パターン4※ 500℃まで250W照射 500～900℃まで 50℃上昇出力可変 照射時間40分	上部	41.6	1.20	53.0
	中部	35.8	1.29	47.9
	下部	37.5	1.24	50.9
	平均	38.3	1.24	50.6
電気炉焼成 900℃焼成 20℃/min 45分焼成	上部	47.1	1.12	56.7
	中部	45.4	1.15	54.9
	下部	43.3	1.13	56.3
	平均	45.3	1.13	56.0

※底面に断熱材のトチを介在

(パターン2、3)と上部、中部及び下部との物性値差が生ずる。下部は温度が蓄熱され、中部の温度よりも上昇し、上部は外気と接触するため中部の温度より低い。上部と下部との温度差を少なくするため、下部面に断熱材のトチを介在させ、マイクロ波出力を徐々に増加させて(パターン4)焼成した。その結果、上部、中部及び下部の物性値差は少なくなり、短時間で均一焼成できる焼成条件が分った。この焼成体は同一昇温速度で電気炉焼成したものより吸水率が小さかった。

なお、貫入土に活性炭の発熱素材を添加してマイクロ波により焼成する方法において、均一焼成は出力を調整することにより解決できたが、温度が上昇すると活性炭が燃焼して減少し、約1000℃の焼成温度しか得られなかった。

3.4 焼成体の活用試験

マイクロ波加熱で得られた焼成体は内部に未燃焼の活性炭が存在している。この未燃焼の活性炭の特性を活かした焼成体の活用化について検討した。焼成体を家庭用電子レンジと同じ出力の500Wで照射すると、表3に示すとおり、未燃焼の炭素量に比例して、焼成体の表面温度が上昇し、数分間で約300℃になり、マイクロ波発熱素材としての活

表3 焼成体の発熱性(500W照射)

焼成温度 (℃)	残存炭素量 (%)	300℃に 至る時間 (分:秒)	350℃に 至る時間 (分:秒)
800	9.6	3:10	4:08
900	6.3	3:34	4:45
1000	2.9	6:00	10:20

用化が可能である。そこで、貫入土に活性炭15%を添加したハート型の素地を作製し、素地表面にフリット釉を施し、マイクロ波出力を徐々に増加させ、1000℃で焼成した。この焼成体の吸水率は38.8%、見掛け気孔率50.6%で、電子レンジ内で2分間照射すると表面温度が約200℃になり、加熱調理用品として活用できることが分った。

4. 結 論

陶磁器素地に発熱素材を添加し、マイクロ波加熱により陶磁器素地を焼成する方法について試験し、以下の結果を得た。

- (1) 黒鉛、活性炭、炭化ケイ素、フェライト及びチタン酸バリウムにマイクロ波(500W)を照射すると、フェライト以外の材料は、ほぼ直線的に温度上昇し、活性炭は8分間照射で約1000℃になり、短時間での加熱が可能である。
- (2) 貫入土に活性炭等発熱素材を添加した素地にマイクロ波を照射すると内部より発熱し、出力が大きい場合、表面との温度差が生じ、クラック等が発生しやすくなる。また素地温度は出力の増加に伴って、急激に上昇するため、マイクロ波出力を徐々に増加させて焼成することにより、表面と内部との温度差は少なくなり、短時間で均一焼成できる焼成方法が分った。
- (3) 貫入土に活性炭15%添加した素地にマイクロ波を照射して得られた焼成体は、内部に未燃焼の活性炭が存在している。この未燃焼の活性炭の特性を活かした焼成体の用途について検討したところ、電子レンジ内で2分間照射すると、表面温度が約200℃になり、加熱調理用品として活用できることが分った。

文 献

- 1) 佐治他三郎, セラミックス, 29, 383-6(1994)
- 2) 角岡 勉, ニューセラミックス, 6, 41-5(1993)
- 3) 伊藤承央, 東田 豊, 角岡 勉, 五百川 弘, 井上俊夫, ファインセラミックスセンター1995年度研究発表会予稿集, 38-9(1995)
- 4) 佐藤忠夫, 高橋範弘, 嶋影和宣, 日本セラミックス協会1995年会講演予稿集, 538(1995)
- 5) 不二門義仁, 田中正洋, 服部金司, 三浦莊治, 愛知県瀬戸窯業技術センター報告, 21, 25-30(1992)