

V 經常研究

Ordinary Research

経常研究

熱可塑性 CFRP の穴あけ加工におけるバリ抑制に関する調査研究

山下 健介* 棚原 貴登*

 Investigation of Burr Suppression in Drilling of Thermoplastic CFRP
 YAMASHITA Kensuke and TANAHARA Takato

本研究では、熱可塑性 CFRP のドリル加工におけるバリを抑制する加工条件を検討するため、加工条件がバリ、切削力及び被削材出口温度に与える影響の評価を行った。その結果、マトリックス材がポリプロピレンの熱可塑性 CFRP は、切削速度と 1 回転送りを大きくすれば欠陥を一定程度抑制可能であることや、熱の拡散が抑制されることが分かった。さらに、粘着テープを CFRP の両面に張りつけて加工を行った結果、欠陥の抑制が可能であり、粘着力の大きさにより効果が変化する可能性があることが明らかになった。

Key words: 熱可塑性 CFRP、ドリル、バリ、層間剥離、粘着テープ

1 はじめに

輸送用機器はカーボンニュートラルの実現に向け燃費向上による CO₂ 排出量削減が求められている。燃費向上には、軽量化が重要であり軽金属や、CFRP 等の複合材の利用が進んでいる。CFRP はこれまで高強度高剛性な熱硬化性樹脂を基材とするものが主流であったが、短時間で成形でき靱性やリサイクル性に優れる熱可塑性樹脂を基材とする CFRP の自動車（量産車）での活用が期待されている¹⁾。しかし、熱可塑性 CFRP はドリルによる穴あけ加工時の出入口付近でのばりの発生が課題となっている。バリは、部品の機能や品質の悪化につながるため、製造現場ではばりの除去作業が必要となり、その工程が加工時間や加工コストの増大を招き生産性の低下が起きている。

そこで本研究では、熱可塑性 CFRP のドリル加工におけるバリを抑制する加工条件を検討した。

被削材は、マトリックス材をポリプロピレンとし、カーボンクロス（3K/平織）を 14 枚積層して厚さを 3 mm にした熱可塑性 CFRP を用い、φ6 mm の 2 枚刃超硬ドリル（ギケン GK-HCTZ0600DLC）（図 2）を用いて表 1 の加工条件でドライによる穴加工を行った。

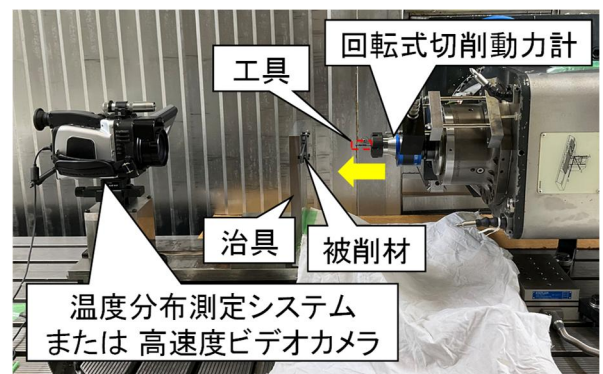


図 1 実験段取り

2 研究の方法

2.1 実験方法

加工機は 5 軸マシニングセンタ（DMG 森精機 DMF180）を用い、回転式切削動力計（日本キスラー 9170A1312）に取付けたドリルで穴加工を行いスラストとトルクを取得した。また、温度分布測定システム（NEC Avio 赤外線テクノロジー H2640）及び、高速度ビデオカメラ（フオートロン FASTCAM SA3 model60K）を用い、被削材を固定した治具の φ12 mm の貫通穴から被削材出口面の温度分布と穴加工状況を撮影した。実験段取りを図 1 に示す。

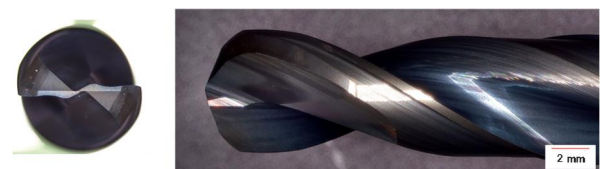


図 2 使用ドリル外観（左：底面、右：側面）

表 1 加工条件

条件	切削速度[m/min]	1 回転送り [mm/rev]
1	40	0.02
2		0.1
3	100	0.02
4		0.1

* 栃木県産業技術センター 機械電子技術部

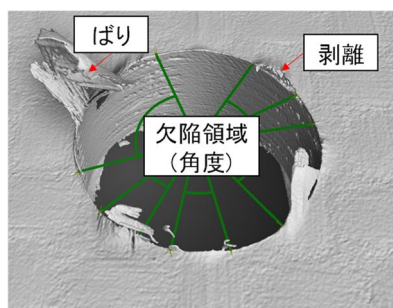


図3 欠陥領域割合算出方法

2. 2 ドリル加工条件とばりの関係

加工条件とばり発生状況を比較するため、加工後の被削材を、X線CT三次元測定機（ニコン MCT225）を用い撮影した。CFRPは積層材であるため、ばりの他に層間剥離が発生する。そのため、X線CTのデータから表層部のばりと層間剥離状況を確認し、ばりや剥離の欠陥が発生した領域の割合を算出した。なお、欠陥領域割合の算出方法は、加工穴表面の円周上で欠陥が発生している範囲の角度を測定し、角度の合計値を円の角度である360°で割ることで算出した（図3）。

また、ばりや剥離による欠陥の発生状況について確認するため、高速度ビデオカメラで加工条件4の切削速度100 m/min、1回転送り0.1 mm/revの被削材出口面の穴加工状況を撮影した。

2. 3 穴加工時の切削力とばりの関係

切削力とばり発生状況を比較するため、回転式切削動力計で測定したスラストとトルクを2.2の欠陥領域割合と比較し関係性を評価した。

2. 4 ドリル加工条件と出口温度の関係

加工条件と出口温度を比較するため、温度分布測定システムで測定した各加工条件の被削材出口面の温度を評価した。なお、熱可塑性CFRPの放射率は黒体スプレーによる直接測定と熱電対による間接測定で計測し、0.73を採用した。

2. 5 粘着テープによるばり抑制

2.2の結果を踏まえ、さらなるばり抑制方法として、被削材に粘着テープを貼ることでCFRPのカーボクロスの最表層と最終層の剥離抑制を検証した。加工条件は条件4の切削速度100 m/min、1回転送り0.1 mm/revと

し、粘着テープは加工穴径に対し十分に大きいサイズにカットし被削材両面に貼付けてから治具に固定し穴加工を行った。使用した粘着テープの基材等を表2に示す。なお、基材厚さは粘着層除去後、マイクロメーターを用い測定し、粘着力は万能材料試験機（島津製作所 AGS-5kNX）を用い、温度23℃、湿度50%の環境で、穴加工に用いた被削材と同じ熱可塑性CFRPを被着体とし180°剥離試験を行いn=3の平均で算出した。

表2 粘着テープ

テープ名	基材	基材厚さ [μm]	粘着力 [N/10mm]
A1-PEテープ①	アルミ箔ポリエチレン	150	2.08
A1-PEテープ②	アルミ箔ポリエチレン	150	4.96
A1テープ	アルミ箔	77	6.10
SUSテープ	ステンレス箔	39	8.49

3 結果及び考察

3. 1 ドリル加工条件とばりの関係

各加工条件の出口面側の欠陥領域割合のn=3の平均値を図4に示す。なお、入口面側に関しては、すべての条件で全円周上に欠陥が発生していた。

その結果、切削速度と1回転送りを大きくすれば、出口側の欠陥を一定程度抑制可能と分かった。

次に、CFRPのドリル加工時の出口面の状況を高速度ビデオカメラで撮影した結果を図5に示す。

その結果、ドリル先端によりCFRPのカーボクロスの最終層が押されて、浮いた最終層がドリルの刃で切れないことでばり（切り残し）が発生していることが分かった。

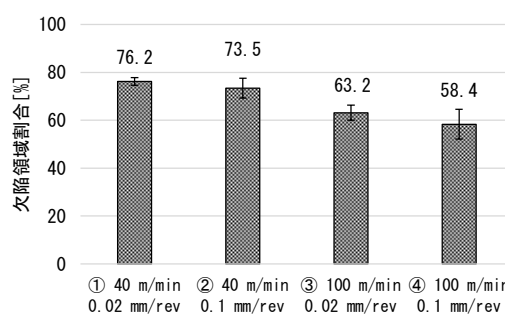


図4 各加工条件での出口面側の欠陥領域割合 (n=3)

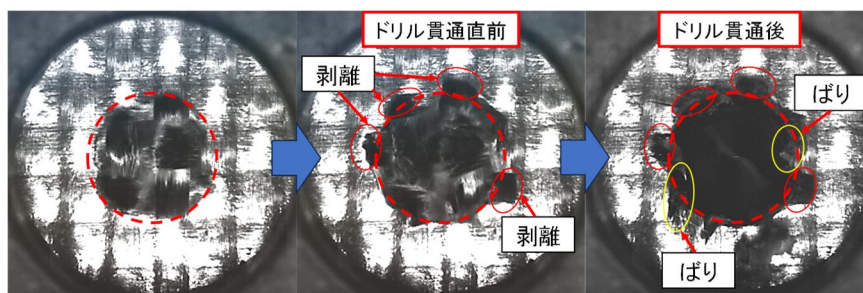


図5 ドリル加工による出口面側の状況 (100 m/min、0.1 mm/rev)

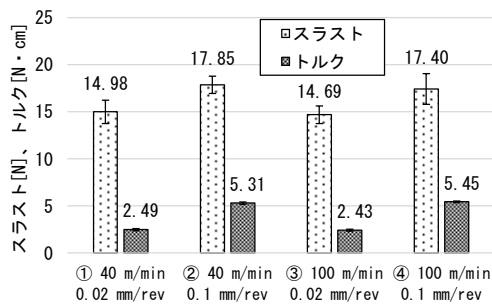


図6 各加工条件でのドリルにかかるスラストとトルクの各軸の平均値(n=3)

3. 2 穴加工時の切削力とばりの関係係

計測したスラスト（前方へ押し出す力（軸方向の力））とトルク（回転方向の負荷）の各値の平均を図6に示す。

その結果、1回転送りが大きいとスラスト、トルクともに大きくなるが、切削速度が変化しても各値に大きな差は見られなかった。一方、図4では切削速度が大きくなると、欠陥領域割合が低下する傾向が見られ、欠陥の発生はスラストとトルク以外にも要因がある可能性が考えられる。

3. 3 ドリル加工条件と出口温度の関係

各加工条件の出口温度測定結果を図7に示す。なお、最高温度と加工穴の縁で剥離が発生していない場所の温度も図中に記載した。

その結果、切削速度と1回転送りが大きい条件ほど剥離が発生しなかった加工穴の縁の温度は小さくなった。送りを大きくすると縁の温度が小さくなることは、切削で発生した熱が被削材に伝わる前に工具が移動するためと考えられる。また最高温度が高い条件3が条件1より熱の広がり小さいことは、工具の送り速度が条件1は42 mm/min、に対し条件3は106 mm/minであり、条件3は条件1に比べ送り速度が早いためである。

熱可塑性樹脂は温度が上がると強度が低下する²⁾ため、切削速度や1回転送りを大きくするとばり抑制へ効果がある理由は、加工熱の拡散が抑制される³⁾ためと考えられる。

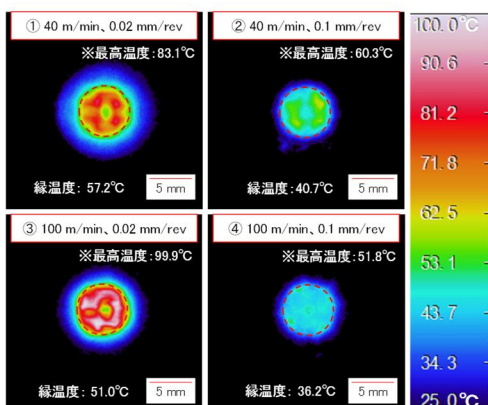


図7 出口温度測定結果

3. 4 粘着テープによるばり抑制

加工面の両面に粘着テープを貼り、加工条件4でドリル加工をした加工穴の円周上でばりや剥離の欠陥が発生した領域の割合を図8、デジタル顕微鏡（ハイロックス KH-8700）で撮影した被削材出口面の外観を図9に示す。

その結果、3. 1において、入口面側はすべての条件で全円周上に欠陥が発生していたことに比べ、粘着テープを貼ることにより一定程度欠陥を抑制できた。出口面側は図4の結果と比べると、A1テープは欠陥の抑制が可能だが、A1-PEテープの2種類は差がなく、SUSテープは逆に悪くなる結果となった。しかし外観画像からSUSテープはA1テープと同様に切れ残りのばりが少ない。これは、表2からSUSテープはA1テープよりも粘着力が大きく、層間剥離が発生する力より大きい可能性が考えられ、テープを剥がす際に新たな剥離が発生した可能性がある。

以上から、粘着テープを用いることで、欠陥の抑制が可能だが、粘着力の大きさにより効果に変化する可能性があることが明らかになった。

なお、今後の検討事項として、粘着テープ基材の穿孔強度や粘着テープの粘着力とCFRPの層間破壊靱性を比較すれば、より詳細な検討が行えると思われる。

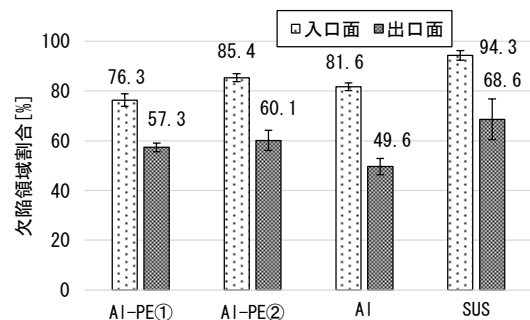


図8 欠陥領域割合 (n=3)

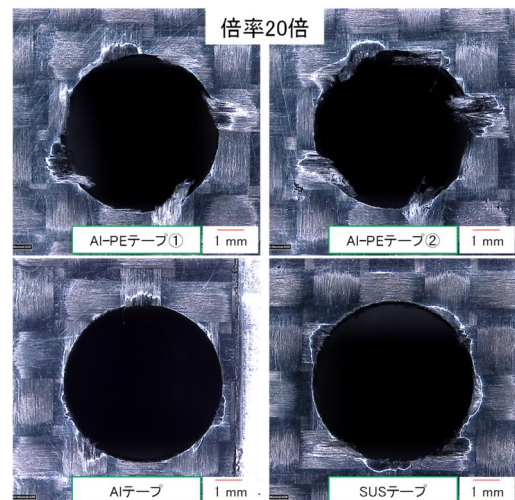


図9 被削材出口面の外観画像

4 おわりに

本研究では、熱可塑性 CFRP のドリル加工におけるばりを抑制する加工条件の検討を行うことで、以下の知見が得られた。

- (1) マトリックス材がポリプロピレンの熱可塑性 CFRP は、切削速度と 1 回転送りを大きくすれば、欠陥を一定程度抑制可能である。
- (2) 切削速度や 1 回転送りを大きくすると熱の拡散が抑制される。
- (3) 加工面に粘着テープを貼ることで、欠陥の抑制が可能であるが、粘着力の大きさにより効果が変化する可能性がある。

謝 辞

本研究を実施するにあたり、多大なる御指導をいただいた東京電機大学工学部機械工学科 田村昌一教授に深く感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 寺田 幸平: “精密工学会誌”, 81(6), 485-488, (2015)
- 2) 成澤 郁夫: “プラスチックの機械的性質”, シグマ出版, 29-199, (1994)
- 3) 近藤 拓郎ほか: “山口県産業技術センター研究報告”, 30, 8-13, (2018)

経常研究

表面改質／熱プレスによるプラスチックの 接着剤レス接着技術に関する調査研究

男澤 嶺* 小林 愛雲*

Research on Adhesive-Free Bonding Technology for Plastics
through Surface Modification and Heat Pressing
OTOKOZAWA Ryo and KOBAYASHI Azumi

医療用樹脂製品での接着剤レス接着の実現化に向け、ポリメチルメタクリレート樹脂（PMMA）、ポリジメチルシロキサンゴム（PDMS）及びシクロオレフィンポリマー（COP）に対し、大気圧プラズマ又は紫外線（UV）による表面改質を行い、改質面同士を合わせて熱プレスし、接着強度を評価した。UV 処理又は大気圧プラズマ処理を行うと、樹脂種に関わらず、水接触角が低下した。UV 処理した各樹脂材料の表面は、処理時間が長くなるに伴い水酸基、カルボニル基のピークが増大することが、フーリエ変換赤外分光光度計による分析により確認された。表面改質した各樹脂の改質面を重ねて熱プレスすると接着剤レスで接着できたが、大気圧プラズマ処理した PMMA 同士では接着強度が著しく低かった。

Key words: 接着剤レス接着、大気圧プラズマ処理、UV 処理、熱プレス

1 はじめに

マイクロ流路デバイスなどの樹脂製医療機器は、多様な形状・材質の部品を組み合わせるため、同種又は異種材料部品の接着が必要とされている。一方、医療用製品に使用できる接着剤に限られることや、マイクロ流路デバイスにおいては、接着剤が微細な流路を塞ぐ恐れがある等、接着剤の利用には課題が多い。そこで、接着剤を用いずに部品同士を接着する「接着剤レス接着」技術が注目されている。

接着剤レス接着では主に、被着材の表面を改質した後、熱プレスすることで接着する¹⁾²⁾³⁾。表面改質方法としては、熱アシストプラズマ処理や、真空紫外線（VUV）等が研究されており、銅箔／ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）やゴム同士の接着剤レス接着を実現している。しかし、県内中堅企業等が製造するマイクロ流路デバイスの材料であるポリメチルメタクリレート樹脂（PMMA）やシクロオレフィンポリマー（COP）、医療機器用の樹脂として広く用いられているポリジメチルシロキサン（PDMS）等の接着剤レス接着については、プラズマ処理等の表面処理条件と熱プレス条件を詳細に調査した報告は少ない。

そこで本研究では、PMMA、PDMS、COP を、大気圧プラズマまたは UV 処理で表面改質し、熱プレスにより接着

する接着剤レス接着の実現に向け、大気圧プラズマ及び UV 処理条件が各樹脂表面に与える影響、及び表面処理、熱プレスの各条件が接着強度に及ぼす影響を調査した。

2 研究の方法

2. 1 材料

PMMA は（株）クラレ製 コモグラス[®]（25 mm×100 mm×3 mm）、COP は日本ゼオン（株） Z22R（25 mm×100 mm×2 mm）を用いた。PDMS は（株）十川ゴム、シリコーンゴムシート（100 mm×200 mm×3 mm）を 25 mm×100 mm×3 mm にカットし、試験に用いた。PMMA は購入した材料をそのまま使用し、PDMS 及び COP は表面処理直前に樹脂表面をエタノール（関東化学（株）製、特級）で表面の汚れを拭き取り、十分風乾させた後、試験に供した。

2. 2 表面処理

大気圧プラズマ処理は、大気圧プラズマ装置（（株）アクア製、HPJ-DESKTOP-AC）を用いて行った。プラズマ発生方式はジェット方式であり、作動ガスには窒素を用いた。試料表面－ノズル間距離は 3 mm とした。プラズマ照射時間は、ステージ移動速度によりコントロールし、2.5 s 以上の処理の際は、繰り返しプラズマ照射を行った。

UV 処理は、UV 照射装置（ウシオ電機（株）製、SSP04A-317）を用いて行った。UV ランプは、中心発光波長 172

* 栃木県産業技術センター 材料技術部

nm のキセノンエキシマランプを用いた。試料表面－UV ランプ間距離は 3 mm とした。処理槽内の雰囲気は、大気及び窒素雰囲気（窒素パージ流量：5 L/min）とした。

2. 3 熱プレス

表面改質した各試験片の改質面を重ね合わせ、熱プレス機（（株）東洋精機製作所製、ミニテストプレス MP-WNL）を用いてプレスし、JIS K6850 に規定される引張せん断試験片を作製した。プレスの際には、SUS304 製の型枠を用いた。枠の寸法は 26 mm×187.5 mm とし、PMMA および PDMS では 6 mm、COP では 4 mm の厚さの型枠を選択した。また、型枠と接着試験片とで段差が生じる部分には緩衝材（材質：PDMS 25 mm×87.5 mm×3 mm）を 2 枚使用し、接着試験片のプレス圧が均一になるように調整した。熱プレス条件は、圧力とプレス時間を 0.5 MPa、10 min で固定し、加圧時の温度は、各樹脂のガラス転移温度以下とし、PMMA では 60℃、70℃、80℃、90℃、PDMS と COP では 40℃および 80℃とした。

2. 4 評価

樹脂表面の接触角は、接触角計（協和界面科学（株）製、DMS-400YS）を用いて測定した。測定には蒸留水を用い、滴下量は 2 μ L とした。表面の分子構造等評価にはフーリエ変換赤外分光光度計（FT-IR、日本分光（株）製、FT/IR-4600）及び走査型X線光電子分光分析装置（XPS、アルバック・ファイ（株）製、PHI5000 VersaProbe II）を用いた。FT-IR 測定は、全反射法（ATR 法、プリズム種：ダイヤモンド）により評価した。表面硬さはナノインデント（（株）エリオニクス製、ENT-5）を用いて評価した。圧子はバーコビッチ圧子とし、押し込み荷重は 1 mN とした。熱プレス後の接着試験片の接着強度は、万能材料試験機（島津製作所、AGS-5kNX）を用いて測定した。引張速度は、PMMA 及び COP は 1 mm/min、PDMS は 300 mm/min とした。

3 結果及び考察

3. 1 表面処理が各樹脂に与える影響

3. 1. 1 濡れ性

大気圧プラズマ処理時間に対する PMMA、PDMS または COP の接触角の変化を図 1 に示す。全ての樹脂において、処理時間 2.5 s までは、処理時間が長くなるにつれ接触角は大きく低下した。大気圧プラズマ処理を 2.5 s 以上行った場合は、PMMA と COP は更に接触角が低下したが、PDMS は増加した。一般的に大気圧プラズマ処理により、樹脂表面に親水基が付与されることが知られている。本研究においても後述するように同様の効果が得られたため、接触角が低下したと考えられる。一方、接触角の値は、親水性官能基の有無だけでなく表面粗さも影響を

及ぼすことが知られている⁴⁾。長時間大気圧プラズマ処理した PDMS 表面の接触角が短時間処理よりも増加傾向だったのは、表面粗さが変化することで接触角に影響を及ぼした可能性が推測される。

UV 処理時間に対する PMMA、PDMS または COP の接触角の変化を図 2 に示す。全ての樹脂において、処理時間が長くなるほど、接触角が低下した。また、大気及び窒素環境下での UV 処理試料の接触角を比較すると、同処理時間では、窒素雰囲気下の方が、接触角の低下度合いは小さかった。一般的に、大気中の酸素等が UV により活性酸素となり、活性酸素が樹脂表面に親水基を導入する改質メカニズムが知られている⁵⁾。窒素環境下と比較して大気環境下の方が、接触角が低下したことは、このメカニズムにより表面改質が行われたことを示唆していると考えられる。

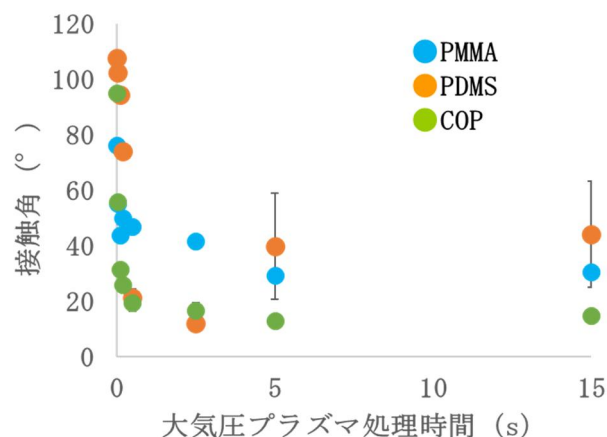


図 1 大気圧プラズマ処理時間に対する PMMA、PDMS、COP の接触角の変化

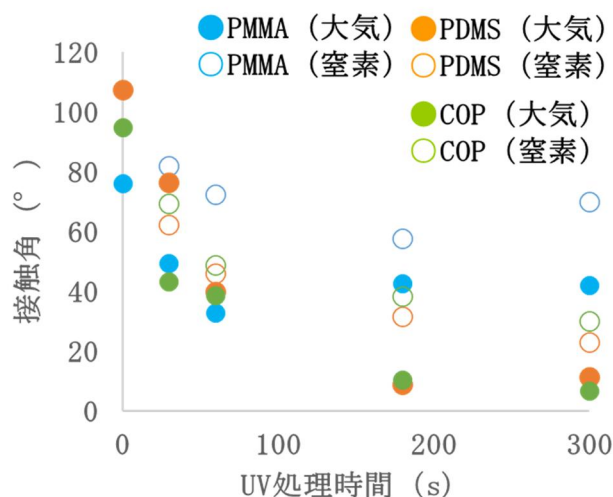


図 2 UV 処理時間に対する PMMA、PDMS、COP の接触角の変化

3. 1. 2 表面の分子構造

前述の接触角の結果より、表面処理すると、樹脂表面に親水性官能基の付与が予想されたため、大気圧プラズ

マ処理した樹脂の表面の FT-IR 測定を行った。その結果、全ての樹脂において、処理後の親水基（水酸基（O-H 基）、カルボニル基（C=O 基））のピークの検出や増加は確認されず、未処理の各スペクトルとの違いは見られなかった（図 3）。この理由として、大気圧プラズマ処理は最表層のみを改質されているのに対し、一般的に FT-IR（ATR 法）の測定深さは、最表層から数 μm 程度もぐり込んだ範囲⁶⁾であるため、大気圧プラズマ処

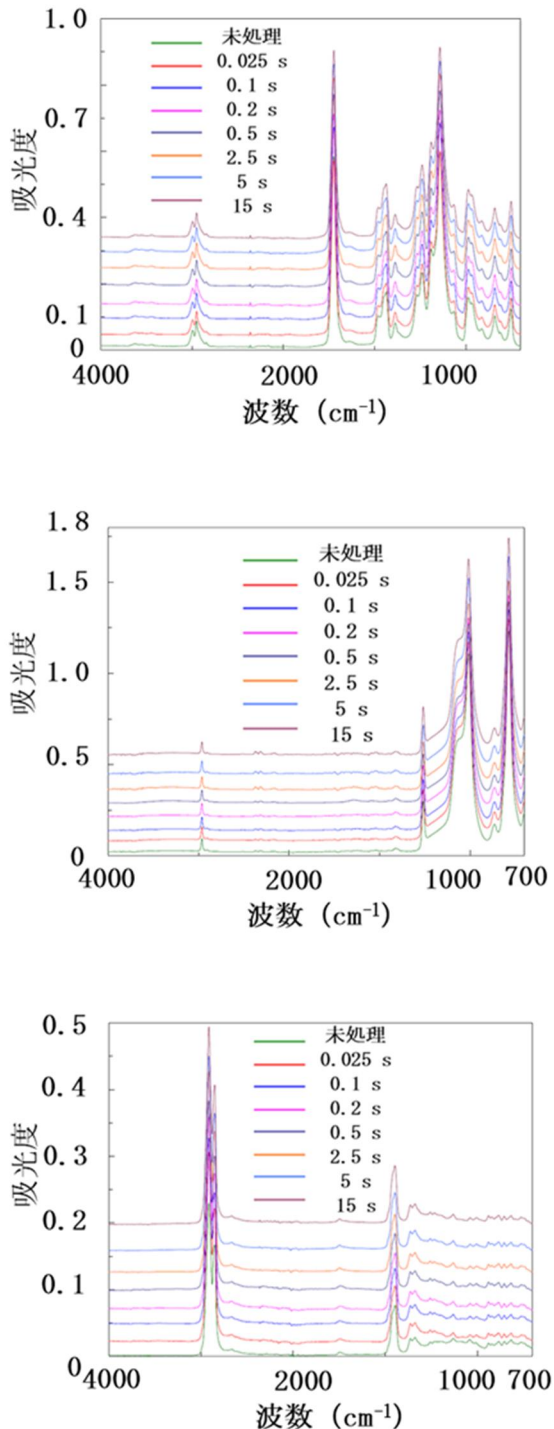


図 3 大気圧プラズマ処理前後の各樹脂の FT-IR 測定結果（上：PMMA 中：PDMS 下：COP）

理による表面の化学構造の変化が、FT-IR 測定では検出できなかったことが考えられる。そこで、PMMA を例に、XPS を用いて最表面分析を行った。未処理および大気圧プラズマ処理（処理時間 2.5 s）後の PMMA の C1s および O1s ナROWSPEKトルを図 4 に示す。C1s のスペクトルから、未処理と比較し、大気圧プラズマ処理後は O-C=O 結合（288 eV）および C-O 結合（286 eV）のピーク強度が低下していることがわかる。また、プラズマ処理前後で O1s のピーク全体の強度はほぼ一定であったが、C-O 結合（534 eV）のピーク強度が低下しており、相対的に C=O 結合（532 eV）は増加したことが明らかになった。これらの結果から、大気圧プラズマ処理により PMMA の

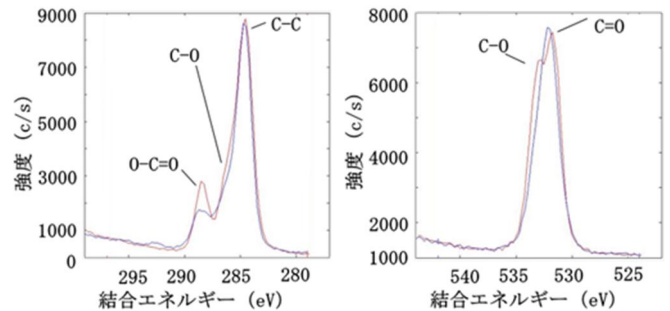


図 4 大気圧プラズマ処理後の PMMA の C1s (左) および O1s (右) スペクトル（赤：未処理 青：大気圧プラズマ処理（2.5 s））

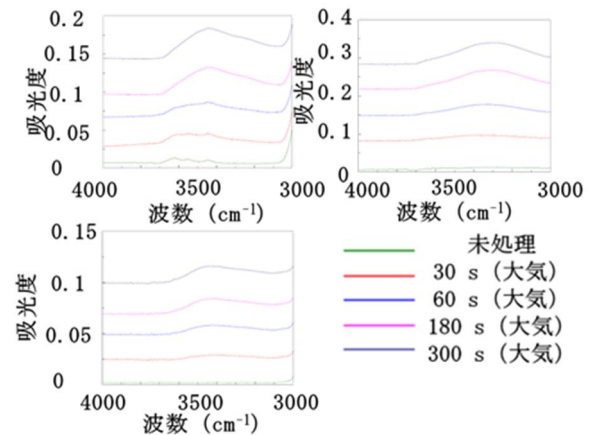


図 5 UV 処理（大気環境下）前後の各樹脂の FT-IR 測定結果（4000 cm^{-1} ～3000 cm^{-1} ）
 （左上：PMMA 右上：PDMS 左下：COP）

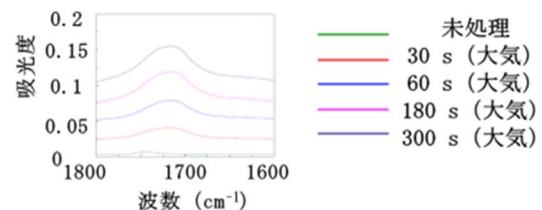


図 6 UV 処理（大気環境下）前後の COP の FT-IR 測定結果（1800 cm^{-1} ～1600 cm^{-1} ）

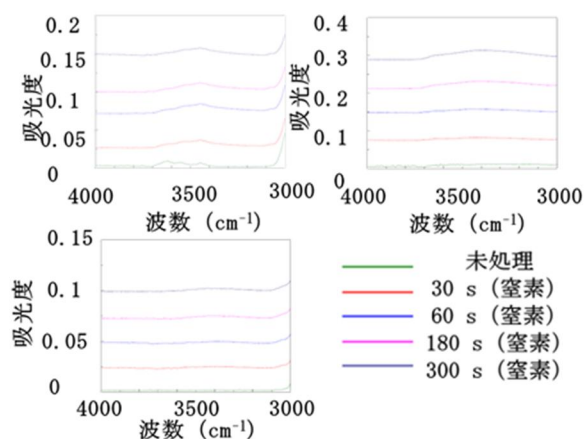


図7 UV処理（窒素環境下）前後の各樹脂のFT-IR測定結果（4000 cm^{-1} ～3000 cm^{-1} ）
（左上：PMMA 右上：PDMS 左下：COP）

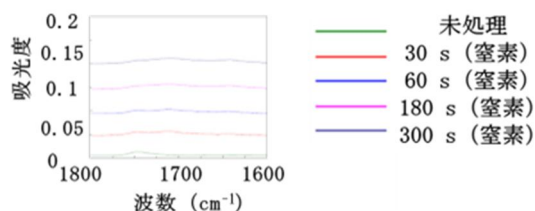


図8 UV処理（窒素環境下）前後のCOPのFT-IR測定結果（1800 cm^{-1} ～1600 cm^{-1} ）

側鎖である(C=O)－O－CH₃基が脱離し、C=O基が生成されたことが考えられる。

一方、UV処理（大気環境下）後のFT-IR測定結果では、すべての樹脂で処理時間の増加に伴い、O－H基のピークが大きくなった（図5）。さらに、COP樹脂においては、C=O基のピークも大きくなった（図6）。よって、大気環境下でのUV処理により、各樹脂表面から数 μm 以上の深さまで親水基（OH基、C=O基など）が付与されることが示された。これに対し、UV処理（窒素環境下）では、親水基のピークの増大はわずかであった（図7、図8）。この結果は、UV処理雰囲気中の酸素濃度が親水基の導入に影響していることを示しており、先に述べたUV改質メカニズムと矛盾しない結果となっている。

3. 1. 3 表面硬さ

一般的に、樹脂表面の改質が過剰に行われると、脆弱層が生成する¹⁾。脆弱層が存在すると、表面硬さが減少するため、表面改質の進行度の1つの指標として用いられている。また、表面硬さが減少すると、接着強度が低下する傾向があると言われている¹⁾。そこで、表面改質の進行度と接着強度の関係性を調査するため、ナノインデント測定を行った。なお、PDMSは軟質材質であり、荷重の検出が困難であったため、測定できなかった。

大気圧プラズマ処理時間に対するPMMA及びCOPの表面硬さの変化を図9に示す。どちらの樹脂も、処理時間

によらず表面硬さはほぼ一定であった。今回のナノインデントの測定では、圧子の押し込み深さは0.4 μm 程度であった。この場合、深さ4 μm 程度まで硬さの値に影響を及ぼすことが知られている⁷⁾。一方、大気圧プラズマ処理では最表面のみが改質されており、硬さに影響がなかったことが考えられる。

UV処理時間に対する各樹脂の表面硬さの変化を図10に示す。両樹脂とも、処理時間が増加するほど、表面硬さは低下する傾向が確認された。このことは、UV処理により樹脂内部まで改質されたことを裏付ける結果となった。また、PMMAでは、大気環境下と窒素環境下での表面硬さの低下度合いが異なっているが、COPでは、表面硬さの低下度合いは大気環境下と窒素環境下ではほぼ差はなかった。表面硬さの低下は、UV照射による分子鎖切断、酸化・架橋反応・高次構造の変化等の影響によるものと考えられた。

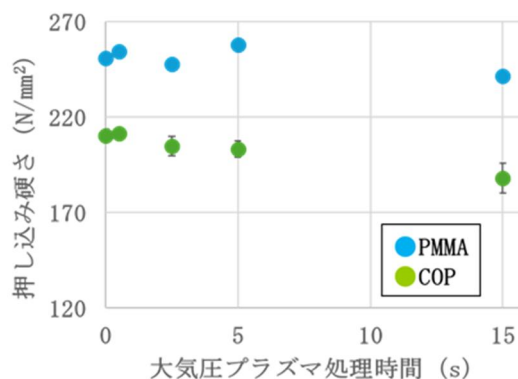


図9 大気圧プラズマ処理時間に対するPMMA及びCOPの表面硬さの変化

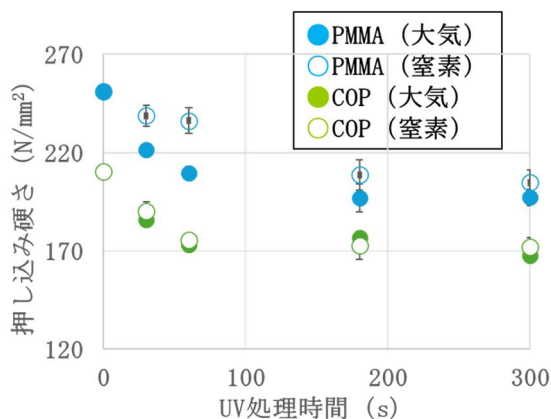


図10 UV処理時間に対するPMMA及びCOPの表面硬さの変化

3. 2 熱プレスによる試験片作製及び接着強さの評価

表面処理したPMMA、PDMSおよびCOPは、樹脂表面の濡れ性が向上し、親水基の導入が確認された。従って、親水基同士が形成する水素結合等を主体とした接着剤レス接着の実現が期待できることから、改質樹脂の熱プ

レスによる接着を試みた。なお、UV 処理においては、大気環境下のほうが窒素環境下よりも濡れ性が向上したため、これ以降の調査では、大気環境下で処理した試料で検討した。

3. 2. 1 PMMA

UV 処理した PMMA 同士を熱プレスで接着させた接着試験片の接着強度を図 11 に示す。処理時間や熱プレス温度によらず、いずれも 1.3 MPa 程度の接着強度が得られた。なお、未処理の場合、引張試験前に接着箇所が外れてしまい、接着強度の測定ができなかった。このことから、熱プレスによる接着剤レス接着には表面改質が必要であり、親水基による水素結合が接着に寄与することが示唆される。

一方、大気圧プラズマ処理した PMMA では、処理時間に関わらず、引張試験前に接着箇所が外れ、接着強度の測定ができなかった。すなわち、大気圧プラズマ処理による表面改質後の接触角は UV 処理と同程度であったにも関わらず、接着強度が著しく低い結果となった。このことは、表面親水化以外にも接着強度に寄与するファクターがあることを示している。UV 処理により低分子量化し流動性が増した親水性薄層が形成され、これらがガラス転移温度より低い温度での熱プレスによる接着剤レス接着に寄与するとの指摘もあり³⁾⁸⁾、改質深さも接着強度に影響している可能性が示唆される。

なお、熱プレス温度 80℃または 90℃では、接着試験片に変形が生じたため、評価から除外した。

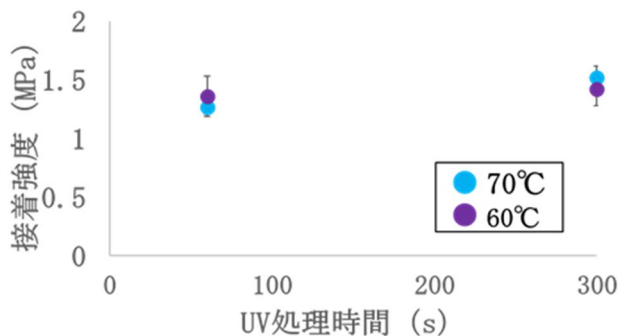


図 11 UV 処理接着試験片の接着強度 (PMMA)

3. 2. 2 PDMS

未処理及び表面処理した PDMS を、40℃又は 80℃で接着したところ、未処理の PDMS では接着できなかったのに対し、UV 処理及び大気圧プラズマ処理後の接着試験片は強固に接着し、引張試験で接着面は剥離せず、材料破壊した (図 12、図 13)。PDMS は大気圧プラズマ又は UV 処理することで、熱プレスにより強固に接着することが示された。

一方、UV 処理 300 s の試験片を、40℃で熱プレスした

接着試験片は、接着面で接着試験片がはく離し (接着強度: 0.25 MPa 程度)、他の試験片と比べて接着強度が低くなった。このことから、PDMS は過剰に UV 処理すると、接着強度が低下することが示唆される結果となった。

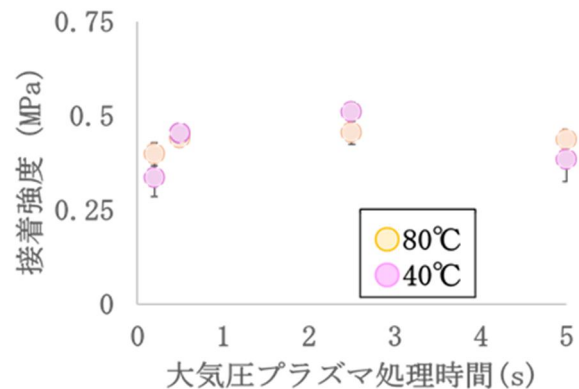


図 12 大気圧プラズマ処理接着試験片の接着強度 (PDMS)

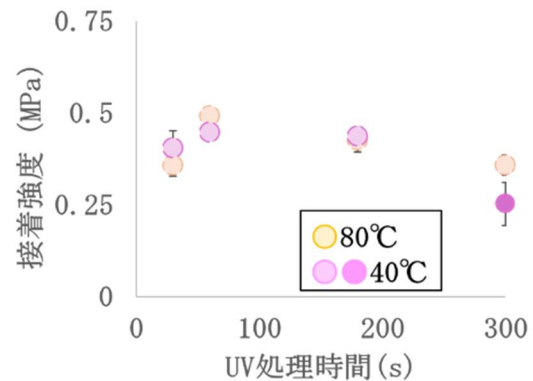


図 13 UV 処理接着試験片の接着強度 (PDMS) ; 濃色の円は界面はく離、淡色の円は材料破壊を表す

3. 2. 3 COP

未処理及び大気圧プラズマ処理又は UV 処理した COP を 80℃で接着したところ、未処理の COP では接着できなかったのに対し、表面改質した COP は強固に接着した。これらの接着試験片を用いて引張試験を行ったところ、接着面は剥離せず、材料が破壊した (図 14、図 15)。これらのことから、COP においても、大気圧プラズマ処理及び UV 処理のいずれの表面改質でも一定時間以上処理し 80℃で熱プレスすることで強固な接着剤レス接着が可能であることが確認された。

一方、大気圧プラズマ処理 0.5 s では材料破壊したのに対し、大気圧プラズマ処理 0.2 s では接着面ではく離した (図 14 濃い緑色のプロット)。それぞれの接触角は、19.3° 及び 25.8° であり、前者は表面改質が十分でないことが示唆される結果となった。

熱プレス温度 40℃では、大気圧プラズマ処理 2.5 s 以下と UV 処理 180 s 以下では接着強度が著しく低く、引

張試験前に接着面が剥離した。大気圧プラズマ処理 5.0 s および UV 処理 300 s では熱プレス温度 40℃でも接着したが、熱プレス温度 80℃と比較して、接着強度は低く、接着試験片は接着面で剥離した。このことから、COP においては、熱プレス温度が高いほど、接着強度が高くなる結果となった。熱プレス温度を高めることで、表面付近に存在する分子鎖の分子運動性が高まり、接着強度に影響を及ぼしているものと考えられる。

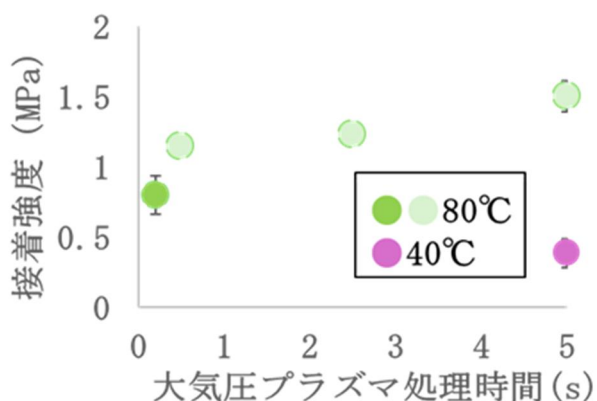


図 14 大気圧プラズマ処理接着試験片の接着強度 (COP) ; 濃色の円は界面はく離、淡色の円は材料破壊を表す

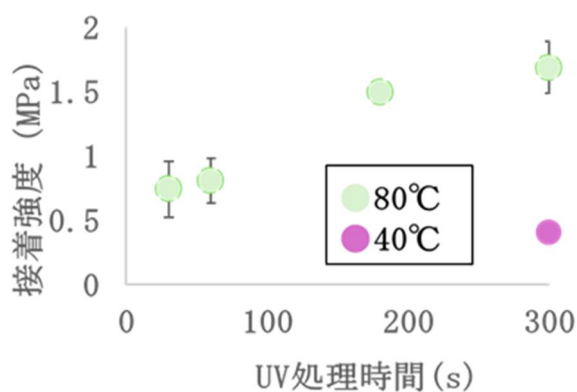


図 15 UV 処理接着試験片の接着強度 (COP) ; 濃色の円は界面はく離、淡色の円は材料破壊を表す

4 おわりに

PMMA、PDMS 及び COP に対して大気圧プラズマ処理又は UV 処理を行い、処理条件が改質樹脂表面に与える影響を評価した。また、表面処理及び熱プレスの条件が接着強度に及ぼす影響を検討し、以下の知見を得た。

- (1) 全ての樹脂において、大気圧プラズマ又は UV 処理時間の増加に伴い、水接触角は低下した。PDMS は、大気圧プラズマ処理 5 s 以上で、一度低下した接触角が上昇した。

- (2) UV 処理した樹脂全てにおいて、処理時間の増加に伴い水酸基やカルボニル基が増加することが FT-IR 分析により明らかになった。大気圧プラズマ処理した樹脂では、FT-IR 分析では変化は見られなかったが、PMMA については XPS 測定で、カルボニル基が付与されたことを示唆する結果が得られた。
- (3) 大気圧プラズマ処理した PMMA、COP は、表面硬さの変化は見られなかった。UV 処理した PMMA、COP は、処理時間の経過に伴い、表面硬さは顕著に低下した。
- (4) UV 処理した PMMA は、熱プレスにより接着剤レス接着できたが、今回実施した条件での大気圧プラズマ処理では接着強度が非常に低かった。
- (5) 大気圧プラズマ処理又は UV 処理した PDMS は、熱プレスにより接着剤レス接着できたが、過剰な UV 処理により接着強度が低下する結果となった。
- (6) 大気圧プラズマ処理又は UV 処理した COP は、熱プレスにより接着剤レス接着できたが、プラズマ処理時間が短い場合、接着強度が低い結果となった。また、熱プレス温度が高い方が接着強度は高くなった。

謝辞

本研究を実施するにあたり試験手法や評価手法に関するご指導並びに技術支援をいただいた大阪大学大学院工学研究科附属精密工学研究センター准教授大久保雄司氏に深く感謝申し上げます。

また、本研究における XPS 測定は、宇都宮大学研究推進機構機器分析センターの設備を利用して実施しました。同センターのご支援に感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 大久保雄司: “成型加工”, 34(11), 410-414, (2022)
- 2) 大久保雄司, 石原健人, 佐藤悠, 遠藤勝義, 山村和也: “表面技術”, 70(10), 551-556, (2016)
- 3) 杉村博久: “表面技術”, 63(12), 751-758, (2012)
- 4) 中島章: “表面技術”, 60(1), 2-8, (2009)
- 5) 杉村博久: “表面技術”, 69(2), 58-64, (2018)
- 6) 岩本令吉: “高分子”, 38(9), 906-909, (1989)
- 7) 清水悟史: “精密工学会誌”, 87(4), 358-362, (2021)
- 8) 山本勝宏, 嶋田繁隆, 辻田義治, 坂口真人: “高分子論文集”, 53(12), 823-828, (1996)

経常研究

保存性向上を目的とした乳酸菌の選抜・培養に関する調査研究

筒井 達也* 郡司 崇浩*

Study on the Selection and Cultivation of Lactic Acid Bacteria
to Improve Food Preservation
TSUTSUI Tatsuya and GUNJI Takahiro

県内発酵食品の保存性向上と製品の差別化を目的として、抗菌性を有し、かつオフフレーバー生成が少ない有用菌株の選抜を目指し、県内食品資源から分離したセンター保有乳酸菌 46 株を対象に抗菌性試験及び香り特性評価を実施した。MRS 培地で培養した乳酸菌上清は枯草菌及び大腸菌に対して抗菌活性を示したが、多くは中和処理により消失し、乳酸菌が産生する有機酸由来の酸依存的な作用であることが示された。一方、*L. plantarum* を中心とする一部菌株では中和後も弱い抗菌活性が確認され、酸以外の抗菌因子の関与が示唆された。これら抗菌活性を示した菌株では、GC-MS 分析によりジアセチルが検出あるいは麴エキス培養試料の官能評価における乳様臭や硫黄臭などのオフフレーバーが確認されたことから、強い抗菌活性とオフフレーバーの発生が少ないという条件を同時に満たす菌株は保有株から見出すことができなかった。

Key words: 乳酸菌、抗菌活性、香り特性、官能評価、保存性向上

1 はじめに

近年、県内の発酵食品製造企業においては、商品の高付加価値化や他社との差別化を図るため、地域資源由来の微生物を活用した製品開発への関心が高まっている。一方、清酒、クラフトビール、漬物、味噌などの製造現場では、発酵に使用する有用菌の制御に加え、汚染菌の混入防止や増殖抑制などが課題となっている。このため、食品添加物への依存を低減し、微生物の機能を活用して保存性を向上させる技術の確立が求められている。

乳酸菌は、有機酸を産生して pH を低下させることにより微生物の増殖を抑制することが知られている。さらに、一部の菌株ではバクテリオシンなどの抗菌性代謝物を産生することが報告されており¹⁾、これらの機能を活用することで、発酵工程における汚染菌抑制や製品の保存性向上への応用が期待される。しかしながら、乳酸菌は乳様臭や硫黄臭などの香り成分を産生する場合があります^{2)、3)}、食品の品質に影響を及ぼす可能性がある。そのため、保存性向上効果と香り特性の両面から菌株を評価することが求められる。

そこで本研究では、県内食品資源から分離し、当センターが保有する乳酸菌 46 株を対象に、抗菌活性と香り特性を体系的に評価することで、汚染菌に対して抗菌性を有し、かつオフフレーバー生成が少ない有用菌株の選

抜を目指し、検討を行った。

2 研究の方法

2. 1 乳酸菌

供試菌株には、当センターが酒母や糠床等といった県内食品資源から分離・同定し、保存している乳酸菌 46 株を用いた(表 1)。各菌株は使用前に MRS 液体培地(Becton, Dickinson and Company 社製 BD Difco Lactobacilli MRS Broth)で前培養し、得られた菌体を試験に供した。対照として市販乳酸菌 2 株(*Latilactobacillus sakei*、*Leuconostoc mesenteroides*)も同様に前培養後、試験に供した。

表 1 乳酸菌の菌種別内訳

属	菌種	株数
<i>Latilactobacillus</i>	<i>L. sakei</i>	15
	<i>L. mesenteroides</i>	13
<i>Leuconostoc</i>	<i>L. lactis</i>	3
	<i>L. citreum</i>	4
<i>Lactiplantibacillus</i>	<i>L. plantarum</i>	6
<i>Pediococcus</i>	<i>P. pentosaceus</i>	2
<i>Weissella</i>	<i>W. cibaria</i>	2
<i>Enterococcus</i>	<i>E. faecium</i>	1

* 栃木県産業技術センター 食品技術部

2. 2 汚染指標菌

抗菌性評価の対象菌として、食品製造現場において問題となる代表的な5つの汚染菌を選択した。具体的には、枯草菌 (*Bacillus subtilis* NBRC111470)、大腸菌 (*Escherichia coli* NBRC3301)、火落菌2株 (*Lactobacillus paracasei*、*Lactobacillus fructivorans* RIB No. 9114)、及び乳酸菌 (*Leuconostoc mesenteroides* subsp. *dextranicum* NBRC100495) を汚染指標菌として用いた。

枯草菌、大腸菌及び乳酸菌は、独立行政法人製品評価技術基盤機構 (NITE) より入手した菌株を使用した。火落菌のうち *Lactobacillus fructivorans* は独立行政法人酒類総合研究所より分譲を受けた菌株を用い、*Lactobacillus paracasei* は、当センターが過去に県内酒蔵より分離し保存している菌株を使用した。

枯草菌及び大腸菌は BHI 培地 (Becton, Dickinson and Company 社製 BD BBL Brain Heart Infusion Agar Medium)、火落菌は SI 培地 (公益社団法人日本醸造協会製 火落菌検出培地)、乳酸菌は MRS 培地 (Becton, Dickinson and Company 社製 BD Difco Lactobacilli MRS Broth) を用いて培養した。

2. 3 抗菌性試験

各乳酸菌株を MRS 液体培地 10 mL に接種し、30℃で48時間静置培養した。培養後、12,000 rpm で10分間遠心分離し、上清を回収した。回収した培養上清は、上清そのものおよび 1 N NaOH (富士フイルム和光純薬(株)) を用いて pH7.0 に中和した上清を調製し、抗菌性試験に供した。

抗菌性試験は、ステンレスカップを用いた寒天重層法により実施した。基本操作は、Ishiyama ら (2008) の方法を参考に一部改変して行った⁴⁾。枯草菌及び大腸菌には BHI 培地、火落菌には SI 培地、乳酸菌には MRS 培地を用い、下層寒天培地は寒天濃度 1.5%、上層寒天培地は 1.0% に調製した。下層寒天培地上に汚染指標菌 ($10^4 \sim 10^5$ cfu/mL) を含む上層寒天を重層し平板を作製した後、平板表面に内径 6 mm のステンレスカップを設置し、カップ内に乳酸菌培養上清 50 μ L を滴下した。30℃で48時間 (火落菌のみ増殖が遅いため 168 時間) 培養後、発育阻止円 (クリアゾーン) の形成状況を観察した。

標準物質としてはナイシン (from *Lactococcus lactis*, N5764; Sigma-Aldrich, St. Louis, MO, USA) を用いた。ナイシンは 0.02 N HCl 水溶液に溶解し、最終濃度が 10、100、1,000 及び 5,000 Units/mL となるよう調製し、カップ内に滴下・培養後、発育阻止円の直径 (mm) を測定した。

2. 4 香気特徴の評価

2. 4. 1 機器分析

香りは DHS-GC/MS 法により測定した。各乳酸菌株を MRS 液体培地を用いて 30℃で48時間培養し、得られた培養上清 0.5 mL を 20 mL 容バイアルに封入した。25℃で5分間加温して発生する揮発性成分を Carboxen B&X チューブに捕集し、加熱脱着装置 (Gerstel 株, TDU2) を用いて吸着管を加熱脱着し、揮発性成分を GC/MS (アジレント・テクノロジー株, Agilent 5977B) に導入し分析した。分析条件は表 2 に示す。

表 2 DHS-GC/MS の分析条件

TDU	30℃ (0.3min) → 720℃/min → 240℃ (3 min)
CIS	10℃ (0.5min) → 12℃/min → 240℃ (20 min)
トランスファー ライン温度	300℃
キャリアガス	He 1.6768 mL/min
注入モード	splitless
カラム	DB-WAX (30 m × 0.25 mm × 0.25 μ m)
オープン温度	40℃ (5min) → 10℃/min → 240℃ (10 min)
イオン源温度	230℃
四重極温度	150℃
イオン化モード	EI

得られたガスクロマトグラムについて、Aroma Office 2D (Gerstel 製) を用いてにおいを有する化合物を抽出し、各ピーク面積値の平均値を算出した。硫黄臭の指標成分としてジメチルジスルフィド (DMDS)、乳様臭の指標成分としてジアセチルを対象とし、内部標準物質としてベンジルアルコール (富士フイルム和光純薬株製、和光特級、純度 99.0% 以上) を添加してピーク面積比により相対定量を行った。

2. 4. 2 官能評価

官能評価用試料は、麴エキス (Brix 12%) 10 mL に乳酸菌培養液を 1% (v/v) 添加し、30℃で48時間培養して調製した。評価はセンター職員4名により実施し、酸臭、硫黄臭及び乳様臭の強度を、0 (感じない)、1 (弱く感じる)、2 (感じる)、3 (強く感じる) の4段階で評価した。各評価項目について平均値を算出し、菌株間の香気特性の違いを比較した。

3 結果及び考察

3. 1 抗菌性試験

3. 1. 1 ナイシンによる基準試験

標準物質として用いたナイシンによる発育阻止円の様子 (*B. subtilis* の例) を図 1 に、ナイシンの各汚染指標菌に対する抗菌活性と発育阻止円の結果を表 3 及び図 2 に示す。ナイシン濃度の増加に伴い、各汚染指標菌

に対する発育阻止円の大きさ（直径）は拡大した。抗菌効果の強さ及び感受性は菌種ごとに異なり、特に枯草菌（*Bacillus subtilis*）、火落菌（*Lactobacillus fructivorans*）及び乳酸菌（*Leuconostoc mesenteroides*）では明瞭な濃度依存性が確認された。これらの汚染指標菌では、ナイシン濃度（対数プロット）と発育阻止円の直径との間に線形関係が見られた。一方、火落菌（*Lactobacillus paracasei*）では阻止円の形成が不十分であり、感受性は比較的低い傾向を示した。

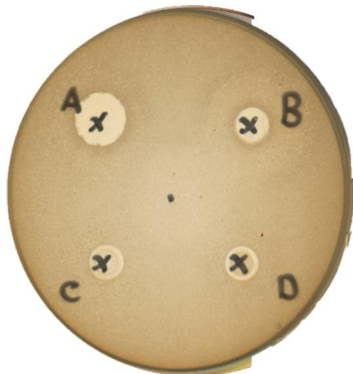


図1 ナイシンによる発育阻止円の様子
 (*B. subtilis* の例)

ナイシン濃度はそれぞれ 5,000 Units/mL (左上)、1000 Units/mL (右上)、100 Units/mL (左下)、10 Units/mL (右下)

表3 ナイシンの各汚染指標菌に対する抗菌活性

汚染指標菌	ナイシン濃度 (Units/mL)			
	10	100	1,000	5,000
<i>B. subtilis</i>	0	6.2	9.0	13.3
<i>E. coli</i>	0	0	8.6	11.8
<i>L. paracasei</i>	0	0	0	5.3
<i>L. fructivorans</i>	0	12.0	24.3	34.7
<i>L. mesenteroides</i>	0	6.8	13.1	16.8

「0」はステンレスカップ内に汚染指標菌の増殖が見られたもの。表中の数値は発育阻止円の大きさ（直径 mm）を示す。

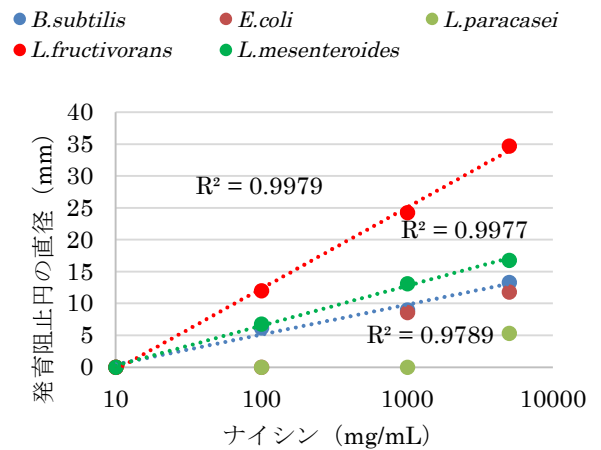


図2 ナイシン濃度と発育阻止円の相関

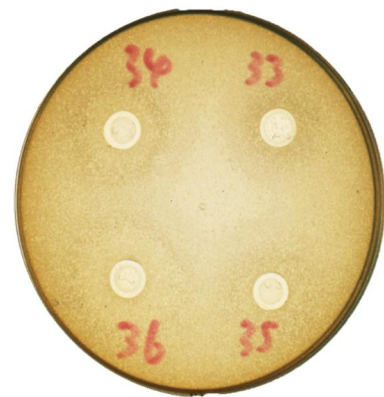


図3 乳酸菌培養液によるクリアゾーンの様子
 (*B. subtilis* の例)

右上：活性あり「+」 左上、左下、右下：活性なし「-」

3. 1. 2 乳酸菌培養上清の抗菌性

乳酸菌培養上清を滴下した際のクリアゾーンの様子（*B. subtilis* の例）を図3に示す。活性が認められない試料では、ステンレスカップ内に汚染指標菌の増殖が観察された。一方、活性が認められた試料では、カップ外に明瞭な抗菌円は形成されなかったものの、カップ内の増殖は抑制された。このため、本試験では発育阻止円の大きさによらず、ステンレスカップ内の増殖抑制が観察された試料を抗菌活性あり（+）、観察されない試料は抗菌活性なし（-）と評価することとした。

乳酸菌培養上清の汚染指標菌に対する抗菌活性の結果を表4に示す。枯草菌及び大腸菌など至適 pH が中性付近の汚染指標菌に対しては、一部の菌株で抗菌活性が認められた。一方、火落菌及び乳酸菌など酸性環境に適応した菌に対しては、いずれの試料でも明確な抗菌活性は認められなかった。

3. 1. 3 中和後培養上清の抗菌性試験

E. coli を例とした中和処理前後のクリアゾーンの様子を図4に示す。中和による活性変化から酸依存性の有無を評価した。上段及び下段はそれぞれ同一試料であり、シャーレの左側が中和処理前、右側が中和処理後を示す。抗菌活性は「+（活性あり）」、「±（弱い活性）」、「-

「-（活性なし）」の3段階で評価した。両試料とも中和前（左側）では抗菌活性が認められているが、中和後（右側）は、下段試料では汚染指標菌の増殖が確認され活性は認められなかった（-）。これに対し、上段試料では増殖が一部抑制され、弱い活性（±）が認められた。

表4 乳酸菌培養上清の各汚染指標菌に対する抗菌活性

No.	菌種	枯草菌 <i>B. subtilis</i>	大腸菌 <i>E. coli</i>	火落菌 <i>L. paracasei</i>	火落菌 <i>L. fructivorans</i>	乳酸菌 <i>L. mesenteroides</i> subsp. <i>dextranicum</i>
1	<i>L. sakei</i>	+	+	-	-	-
2	<i>L. sakei</i>	-	+	-	-	-
3	<i>L. sakei</i>	+	+	-	-	-
4	<i>L. sakei</i>	-	+	-	-	-
5	<i>L. sakei</i>	+	+	-	-	-
6	<i>L. sakei</i>	+	+	-	-	-
7	<i>L. sakei</i>	+	+	-	-	-
8	<i>L. sakei</i>	+	+	-	-	-
9	<i>L. sakei</i>	+	+	-	-	-
10	<i>L. sakei</i>	+	+	-	-	-
11	<i>L. sakei</i>	+	+	-	-	-
12	<i>L. sakei</i>	+	+	-	-	-
13	<i>L. sakei</i>	+	+	-	-	-
14	<i>L. sakei</i>	+	+	-	-	-
15	<i>L. sakei</i>	-	+	-	-	-
16	<i>L. mesenteroides</i>	-	+	-	-	-
17	<i>L. mesenteroides</i>	-	+	-	-	-
18	<i>L. mesenteroides</i>	-	+	-	-	-
19	<i>L. mesenteroides</i>	-	+	-	-	-
20	<i>L. mesenteroides</i>	-	+	-	-	-
21	<i>L. mesenteroides</i>	-	+	-	-	-
22	<i>L. mesenteroides</i>	-	+	-	-	-
23	<i>L. mesenteroides</i>	-	+	-	-	-
24	<i>L. mesenteroides</i>	+	+	-	-	-
25	<i>L. mesenteroides</i>	+	+	-	-	-
26	<i>L. mesenteroides</i>	-	-	-	-	-
27	<i>L. mesenteroides</i>	-	-	-	-	-
28	<i>L. mesenteroides</i>	-	+	-	-	-
29	<i>L. plantarum</i>	+	+	-	-	-
30	<i>L. plantarum</i>	+	+	-	-	-
31	<i>L. plantarum</i>	+	+	-	-	-
32	<i>L. plantarum</i>	+	+	-	-	-
33	<i>L. plantarum</i>	+	+	-	-	-
34	<i>L. plantarum</i>	+	+	-	-	-
35	<i>L. citreum</i>	-	+	-	-	-
36	<i>L. citreum</i>	+	+	-	-	-
37	<i>L. citreum</i>	+	+	-	-	-
38	<i>L. citreum</i>	+	+	-	-	-
39	<i>L. lactis</i>	-	+	-	-	-
40	<i>L. lactis</i>	-	+	-	-	-
41	<i>L. lactis</i>	+	+	-	-	-
42	<i>P. pentosaceus</i>	+	+	-	-	-
43	<i>P. pentosaceus</i>	-	+	-	-	-
44	<i>W. cibaria</i>	-	+	-	-	-
45	<i>W. cibaria</i>	-	+	-	-	-
46	<i>E. faecium</i>	-	-	-	-	-
Ref. 1	<i>L. sakei</i>	+	+	-	-	-
Ref. 2	<i>L. mesenteroides</i>	+	+	-	-	-

「+」：活性あり、「-」：活性なし



図4 中和処理前後のクリアゾーンの様子
(*E. coli* の例)

左上：活性あり「+」（中和前）、右上：弱い活性あり「±」（中和後）、左下：活性あり「+」（中和前）、右下：活性なし「-」（中和後）

多くの菌株では、中和前に確認された抗菌活性が中和後には消失した。この結果から、本試験で認められた抗菌活性の多くは、乳酸菌が産生した有機酸による pH 低下に起因する酸依存的作用と考えられる。

一方、*Lactobacillus plantarum* を中心とする一部の菌株では、中和後も弱い抗菌活性が残存した。これらの菌株では、有機酸以外の抗菌因子（バクテリオシンなど）の関与が示唆された。

なお、枯草菌に対しては抗菌活性が認められたにもかかわらず、大腸菌では活性が認められなかった試料が見られたが、これは大腸菌がグラム陰性菌で外膜構造を有するためグラム陽性菌である枯草菌と比較して有機酸以外の抗菌因子の影響を受けにくいことによるものと考えられた。

3. 2 香気特性

乳酸菌株について、GC-MS による揮発性成分分析及び官能評価を実施した。GC-MS 分析では、内部標準補正後の各香気成分ピーク面積を全株平均値で除した相対比率（%）を算出し、「++（300%以上）」、「+（150～300%）」、「-（検出せず）」の区分で整理した。官能評価は 0～3 の 4 段階で実施し、平均値 1.5 以上 2.0 未満を「+」、2.0 以上を「++」として整理した。

3. 2. 1 供試乳酸菌株の香気特性

乳酸菌 48 株について、乳酸菌培養上清の香気特性結果を表 5 に示す。GC-MS 分析の結果、DMDS は一部の *L. sakei* 及び *L. mesenteroides* 等の菌株で検出された。一方、ジアセチルは主に *L. plantarum* において強く認められた。

官能評価では、酸臭は多くの菌株に共通して認められたが、硫黄臭及び乳様臭は菌株間で差がみられた。DMDS が検出された菌株では硫黄臭が指摘される傾向が見られ、ジアセチルを生成する菌株では乳様臭が認められた。特に *L. plantarum* では乳様臭が顕著であった。

硫黄臭が強く指摘された一部の菌株では DMDS が相対的に高濃度で検出されたが、DMDS が低値であっても硫黄臭が指摘された例も認められた。これは、硫黄系化合物の嗅覚閾値が低いこと、あるいは他の揮発性成分や酸臭との相互作用が影響した可能性が考えられる。

なお、本研究では GC-MS 分析には MRS 培地培養試料を、官能評価には麴エキス培養試料を用いており、培地条件は一致していない。しかしながら、両者の傾向は概ね対応しており、菌株固有の香気生成特性が反映されたものと考えられる。

3. 2. 2 抗菌活性保持菌株の香気特性とその課題

中和後にも弱い抗菌活性を示した菌株（No. 24、No. 29～34）の香気特性については、表 5 のデータに基づき評価した。

No. 29～34 の *L. plantarum* では、GC-MS 分析においてジアセチルが「+～++」と検出され、官能評価においても乳様臭が「+～++」と確認された。

一方、No. 24 の *L. mesenteroides* では、GC-MS 分析においてジアセチルと DMDS が弱いながらも検出されたものの、官能評価においては乳様臭は認められず、硫黄臭は「+」と評価された。

以上より、汚染菌に対する抗菌性を有し、かつオフフレーバー生成が少ない乳酸菌株の選抜を目的として実施したものの、残念ながら供試した菌株からはこれらを同時に満たすものは確認されなかった。しかしながら、抗菌性の判別と、GC-MS 及び官能評価による香気特性解析を組み合わせた本手法は、今後の抗菌活性を有する乳酸菌の食品利用に向けたスクリーニング手法として有用と考えられる。

4 おわりに

本研究では、県内食品資源由来の乳酸菌 46 株を対象に、抗菌活性及び香気特性の両面から有用菌株の選抜を目指して検討を行った。その結果、以下の知見が得られた。

- (1) 枯草菌及び大腸菌など至適 pH が中性付近の汚染指標菌に対しては、一部の菌株で抗菌活性が確認された。一方、火落菌及び乳酸菌など酸性環境に適応した菌に対しては、明確な抗菌活性は認められなかった。

表 5 乳酸菌培養上清の香気特性

No.	菌種	GC-MS 分析※ ¹		官能評価※ ²		
		DMS	ジアセチル	酸臭	硫黄臭	乳様臭
1	<i>L. sakei</i>			+	+	+
2	<i>L. sakei</i>			+		
3	<i>L. sakei</i>			+	+	
4	<i>L. sakei</i>		—	+	+	
5	<i>L. sakei</i>					
6	<i>L. sakei</i>	+			++	
7	<i>L. sakei</i>			++	+	
8	<i>L. sakei</i>			++		
9	<i>L. sakei</i>			++		
10	<i>L. sakei</i>			+	+	+
11	<i>L. sakei</i>					
12	<i>L. sakei</i>					+
13	<i>L. sakei</i>					
14	<i>L. sakei</i>	+	+		+	+
15	<i>L. sakei</i>	+		+	+	
16	<i>L. mesenteroides</i>	++		+	++	
17	<i>L. mesenteroides</i>			+	+	
18	<i>L. mesenteroides</i>			+	+	
19	<i>L. mesenteroides</i>		—	+	+	
20	<i>L. mesenteroides</i>				+	
21	<i>L. mesenteroides</i>			+	++	
22	<i>L. mesenteroides</i>	+		++	+	
23	<i>L. mesenteroides</i>	+		++	+	
24	<i>L. mesenteroides</i>			+	+	
25	<i>L. mesenteroides</i>		+	++		+
26	<i>L. mesenteroides</i>			+	++	
27	<i>L. mesenteroides</i>				+	
28	<i>L. mesenteroides</i>					
29	<i>L. plantarum</i>		++	++		++
30	<i>L. plantarum</i>		+	+		+
31	<i>L. plantarum</i>		++			+
32	<i>L. plantarum</i>		++	+	+	+
33	<i>L. plantarum</i>		++	++	++	++
34	<i>L. plantarum</i>		++	+		+
35	<i>L. citreum</i>	+	—	+	++	
36	<i>L. citreu</i>			++		
37	<i>L. citreum</i>			++		
38	<i>L. citreum</i>			++		
39	<i>L. lactis</i>		—	+		
40	<i>L. lactis</i>			+	+	+
41	<i>L. lactis</i>		+	+	++	++
42	<i>P. pentosaceus</i>					
43	<i>P. pentosaceus</i>	+		++	++	+
44	<i>W. cibaria</i>		—	+	++	
45	<i>W. cibaria</i>			+		
46	<i>E. faecium</i>	+	+		++	+
47	<i>L. sakei</i>		++		++	+
48	<i>L. mesenteroides</i>		—		+	

※1 GC-MS による香気成分の評価は、内部標準補正後の各成分のピーク面積値を全供試菌株の平均値で除して相対比率(%)を算出し、以下の基準で区分した。

「++」：300%以上、「+」：150%以上 300%未満、150%未満は空欄、検出されなかった場合は「—」とした。

※2 官能評価は「0：感じない、1：弱く感じる、2：感じる、3：強く感じる」の4段階で実施し、各評価の平均値に基づき以下の基準で表示した。

平均値 1.5 未満は空欄、1.5 以上 2.0 未満は「+」、2.0 以上は「++」とした。

- (2) 抗菌活性を示した多くの菌株では、培養上清を pH7.0 に中和することで抗菌活性が消失したことから、本研究で確認された抗菌作用の主体は、乳酸菌が産生した有機酸による pH 低下に起因する酸依存的作用であると考えられた。
- (3) *Lactobacillus plantarum* を中心とする一部菌株では、中和後も弱い抗菌活性が残存し、有機酸以外の抗菌因子（バクテリオシン様物質等）の関与が示唆された。
- (4) GC-MS 分析及び官能評価の結果、中和後に抗菌活性を示した菌株の一部ではジアセチルや DMDS の生成が確認され、乳様臭や硫黄臭などのオフフレーバーが認められた。
- (5) 本研究の範囲では、強い抗菌活性とオフフレーバーの発生が少ないという条件を同時に満たす菌株は確認されなかったが、抗菌活性の判別（中和試験）と GC-MS 及び官能評価による香気特性解析を組み合わせた本評価法は、抗菌活性を有する乳酸菌の食品利用に向けたスクリーニング手法として有用であると考えられる。

謝 辞

本研究の実施にあたり、技術的助言及び御協力を賜りました小山工業高等専門学校 物質工学科 微生物工学研究室 准教授 高屋朋彰 先生に深く感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 善藤 威史、石橋 直樹、園元 謙二. “乳酸菌バクテリオシンの探索と利用. 日本乳酸菌学会誌”、25 (1) : 24-33 (2014). DOI:10.4109/jslab.25.24
- 2) 岩佐 悟、飛田 啓輔、吉浦 貴紀. 漬物の発酵に由来する香りの研究（第6報）—乳酸菌の選抜と香気成分の探索. 平成 29 年度研究報告書（第 46 号）、茨城県産業技術イノベーションセンター、（2017）
- 3) 内藤 茂三. 乳酸菌と酵母による食品工場汚染と食品の異臭変敗. におい・かおり環境学会誌 41 (4) : 226-239 (2010). DOI:10.2171/jao.41.226.
- 4) Ishiyama Yohei et al.. Production of bacteriocin by *Staphylococcus* sp. NPSI 38 in Koji Extract Medium with Rice Protein Hydrolyzate and Its Growth-inhibitory Activity against Hiochi-bacteria. Food Sci. Technol. Res., 14 (3) : 239-248 (2008).

経常研究

スマートテキスタイル分野への参入に向けた 繊維素材への機能性付与技術に関する調査研究

井田 恵司* 島田 千花子*

Investigation research about the functional grant technology to the textile
materials for the entry to the field of smart textile

IDA Keiji and SHIMADA Chikako

スマートテキスタイル分野で求められる、導電性等の電気的特性に係る機能性付与に関する大学等の学術シーズと、地域の繊維関連企業が有する技術を結びつけるために、3つの学術シーズに関して、シーズの概要紹介資料を作成した。さらに、特に地域繊維関連企業と具体的な取組に発展することが期待できる学術シーズに基づく試作を行い、試作品の電気的特性評価を実施した。試作した生地は、130%のひずみを与えた時も高い導電性を維持することを示した。また、試作した糸は15%のひずみまで導電性を維持した。

このことから、本研究で作製した試作生地と試作糸は、いずれも導体としての性能を有しており、スマートテキスタイル分野で使用可能と考えられる。

Key words: スマートテキスタイル、機能性付与、導電性ペースト、導電性評価

1 はじめに

センサ等を組み込んだ衣服やインテリアなど、情報通信技術と連携した繊維製品（以下、スマートテキスタイル）の市場は、今後も継続的に拡大していくことが期待される。そのため、繊維関連業界には、スマートテキスタイルに関連した技術開発が求められているが、電気・電子関連分野と繊維分野相互の技術的連携は十分には進んでおらず、例えば導電性繊維の開発、電気的接続・実装技術の開発、耐久性や信頼性の確保等、これまでに地域繊維関連企業が取り組んだことのない技術課題^{1) 2)}が多く、参入への障壁は高い状態である。

そこで、本調査研究では、大学等有する学術シーズを調査し、スマートテキスタイル分野で求められる導電性等の電気的特性に係る機能性付与に関して、地域の繊維関連企業が有する撚糸・製織・編成・染色・縫製等の技術と学術シーズを結びつけるために、シーズの概要紹介資料を作成した。さらに、特に地域繊維関連企業と具体的な取組に発展することが期待できる学術シーズを選び、当該シーズに基づき、サンプル試作とその電気的特性評価を行った。

2 研究の方法

2. 1 学術シーズ調査及び概要紹介資料の作成

* 栃木県産業技術センター 繊維技術支援センター

学術シーズ調査は、スマートテキスタイルに関する研究を行っている研究室のホームページの検索、シーズ保有者に対する電話や対面によるヒアリング等で行った。

また、概要紹介資料は当該研究を行う研究室への訪問等により、学術シーズ保有者の専門知識に基づく指導を受けた結果に基づき、これを地域繊維関連企業が実際に活用する際の視点から作成した。

2. 2 試作に使用する試料等

①生地・・・ポリエステル編地（アリス KT-2028A）

②糸・・・ウーリーナイロン糸（グンゼ㈱ウーリーナイロン 210 タイプ（24 TEX））

③導電性ペースト材料

I 導電材料・・・銀粉末（関東化学㈱製）

II バインダー
┌ ホワイト AR-2（松井色素㈱製）
└ バインダーDL（㈱田中直染料店製）

さらに、導電性ペーストには、ペーストの粘度調整やペーストの混合状態の向上を図るため界面活性剤（スコアロール 400（北広ケミカル㈱製））を加えた。

2. 3 試作生地の作製

試作生地は、図1に示す手順で作製した。

作製にあたり、本研究では生地表面への電気回路実装を想定していることから、ペーストの裏面への染みだしや短絡の防止を図るため、生地への絶縁処理を施した後、導電性ペースト加工を行うこととした。

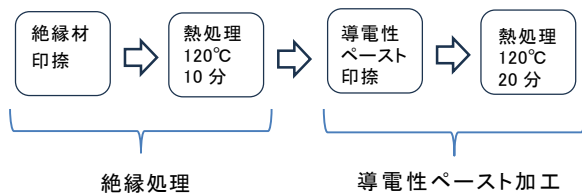


図1 試作生地作成手順

具体的には、図1のとおり、ポリエステル編地に対し、まず絶縁性を確保するための処理として導電性ペーストを塗布する部分の下地に絶縁材となるバインダーを試験用スクリーン捺染機（㈱シンワキカイ製 #ST-800E）を用いて印捺した。

この時のバインダーの処方ホワイトAR-2とバインダーDLを混合したものとした。ホワイトAR-2は、伸縮性があるウレタン系のバインダーであり、バインダーDLは、粘性が低い特性があり、絶縁材を印捺する際のハンドリング向上のために添加した。両者の混合割合は、ホワイトAR-2が80 wt%、バインダーDLが20 wt%とした。

印捺後、送風定温乾燥機（ヤマト科学㈱製 DKN602）を用いて120℃で10分間熱処理を行い、バインダーを固着させた。

次に、この編地に導電性ペーストを印捺した。

導電性ペーストの処方は、80 wt%の銀粉末、16 wt%のホワイトAR-2、4 wt%のバインダーDL及び微量の界面活性剤とした。これらを脱泡混練機（㈱シンキー製 AR-100）で均一に混ざるまで攪拌混合して導電性ペーストを調製した。スクリーン捺染機で印捺後、送風定温乾燥機を用いて120℃で20分間熱処理を行い、導電性ペーストを固着させた。

2. 4 試作系の作製

糸は電線を模した構造であり、裏面が無く全面が表面となるため、試作系については、絶縁材の印捺による絶縁性を付与する必要が無く、導電性ペーストの塗布のみを行った。ただし、導電性ペーストの塗布にあたっては、糸の全面に均一に塗布するように配慮した。導電性ペーストをウーリーナイロン糸に塗布した後、送風定温乾燥機を用いて120℃で20分間熱処理を行った。

2. 5 評価

試作生地及び試作系における導電性ペーストの固着状態等を確認するため、試料の表面観察を行った。拡大写真については、デジタルマイクロスコープ（HIROX 製 KH-7700）を用いた。

また、繊維素材としての使用を想定し、試作品（試作生地及び試作系）の電気的特性評価として、試作品を伸長させることによる電気抵抗値の変化を調べた。試作品の伸長には、万能引張試験機（インストロン製 5569）を使用し、チャック間距離は20 mmとした。本評価に供す

るサンプルは、試作生地の場合は試験片幅を10 mm（内、導電性ペースト印捺幅5 mm）とし、試作系の試験は1本の試作系で実施した。抵抗値はデジタルマルチメーター（OWON 製 XDM3051）を使用し、4端子法にて測定した。

3 結果及び考察

3. 1 シーズ調査及び概要紹介資料の作成

大学をはじめとして、各研究機関においてスマートテキスタイルに関する研究が実施されている。その中から、本県の繊維関連企業へ周知することでスマートテキスタイル分野への参入の障壁が下がることが期待できる学術シーズ³⁾を選び、シーズ調査を行った。

調査を行った結果、以下の3つのテーマについては、地域繊維関連企業が連携できる可能性が高いと考えられた。そのため、当該学術シーズの概要、連携して開発に取り組む際に必要な設備や開発期間、連携する前に検討しておくべき事項、開発できる製品のイメージ、連携の形態等について、ヒアリング等を通して明確にした上で、学術シーズごとに「学術シーズ概要紹介資料」としてまとめた。

シーズ1：無給電動作可能なファブリック型タッチ/圧力センサ（京都工芸繊維大学）⁴⁾

シーズ2：高伸縮導電性ペーストを用いたウェアラブルデバイス（群馬大学）^{5) -7)}

シーズ3：高生体適合性フレキシブル繊維電極（東北大学）⁸⁾

作成した学術シーズ概要紹介資料を図2～4に示す。

3. 2 サンプルの試作及び試作品の評価

3. 1で概要紹介資料を作成した学術シーズのうち「高伸縮導電性ペーストを用いたウェアラブルデバイス」は、比較的少ない初期経費で企業が試作に取り組めることや、地域の繊維に関わる各業種（撚糸、編織、染色、縫製）が連携するなどし、それぞれへの展開が期待できると考えられた。

そこで、当該シーズに基づき、地域の繊維関連企業が日常的に取り扱う繊維素材である糸や生地に対して、当センターが保有する機器等を用いて、導電性を付与した糸及び生地の試作を行った。

3. 2. 1 試作生地の作製

2. 3で示した方法で製作した試作生地の表面観察結果を図5に示す。

図5から、銀と思われる微細な粒子が隙間なく印捺できていることがわかる。一方で、ペースト部分における表面の凹凸も確認できる。

これは、今回実験に使用した銀粉末の粒子サイズが45 μm以上と比較的大きいためであると考えている。今後、

無給電動作可能なファブリック型タッチ/圧力センサ

シーズ保有者 京都工芸繊維大学 大学院工学部研究科 先端ファブ科学専攻
スマートテキスタイル研究室 石井祐孝 准教授

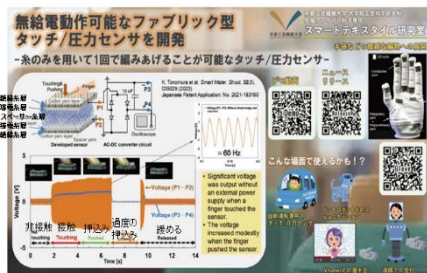
シーズの概要

導電性糸と絶縁性糸を用いて、ホールカーメットで無給電動作可能なファブリック型タッチ/圧力センサを編み上げる技術を開発。(特許取得済み)

全体が糸だけで構成されていることから、肌触りが良好であり、軽量化と通気性に優れた上に、洗濯することも可能。

さらに、環境中に常時放電されている電圧差を利用しているため無給電でのセンシングが可能。

当該センサは、電気自動車や自動運転車などのヘルメットのタッチ/圧力センサなどの活用が期待でき、当該分野で使用する部材等の共同開発が可能である。



シーズ概要説明図 京都工芸繊維大学 初のシーズ実用化引用

連携のポイント

①シーズの活用が見込まれる繊維業界

靴業界、製靴業界、製襪業界

②共同開発や連携に必要な設備等

- ・使用する素材(糸)・・・導電糸(銀の粒子)、絶縁性糸(ポリエステル系フィラメント糸)
- ・必要となる設備・・・多層編織を編織できる編織機・織機
- ・その他(あれば望ましいもの)・・・評価機器等(マルチメータ)

③連携(技術導入)に伴い、検討しておくべき事項

- ・開発するデバイスの用途(用途に応じて、必要な圧力(圧)の厚み・押し込み圧力等)が異なる。それに応じて使用する素材も変わってくるため、使用する目的や開発期間等も含めて明確にしていただく。
- ・生地(作製)の用途(用途)に関するノウハウが必要(比較検討、導電性糸を用いる場合は、これまでのメンテナンスが必要)
- ・ファブリックを製造するための体制の確保(自社で製造可能な場合は技術提携、外注先を確保することが望ましい)

④開発する製品イメージ及び進出が見込まれる産業分野

製品イメージ・・・触れて「熱い」「冷たい」を感知するタッチ/圧力センサ(人間だけでなく家電・ペットにも利用可)
産業分野(例)・・・産業用機器、モバイル機器、家電製品、自動車関連、医療機器・介護機器等

⑤連携の形態

共同研究(例:共同でデバイスの仕様を検討し、企業で試したものを大学の装置を使用して、性能等評価するイメージ)
共同研究実施にあたっての注意事項:なし
技術指導(例:大学の連携窓口で問い合わせ、技術指導の申請書を提出すれば大学からコンタクトがあるシステム)

⑥シーズ保有者コメント

タッチ/圧力センサはウェアラブルエレクトロニクス分野やヘルス分野への応用展開が可能です。人体に直接触れる部分となるため、生地の厚みや硬さが影響するセンサー等ではなく、素材や太さを自由に決定することができ、そのため、圧力センサの感度や圧力範囲に合わせたカスタマイズが可能です。皆さまからの御相談をお待ちしております。



連携に興味がある方へ

問い合わせ先: 栃木県産業技術センター 繊維技術支援センター TEL 0284(21)2138
シーズ関連問合せ先: 京都工芸繊維大学 スマートテキスタイル研究室 TEL 075(724)7883

Industrial Technology Center of Tochigi Prefecture

図2 シーズ1の概要紹介資料

高伸縮性導電性ペーストを用いたウェアラブルデバイス

シーズ保有者 群馬大学 大学院理工学部物質・環境部門
井上 雅博 准教授

シーズの概要

エラストマバインダー中に数ミクロンサイズの銀フィラメントを分散させた高伸縮性導電性ペースト(銀:80wt%バインダー20wt%程度)をテキスタイル上にプリントした後、熱処理することで、伸縮に対応できる配線・電極・接続部分等を実現する実証技術を開発。

これまでに、市販のコブレーションシャツに生体信号計測用の電極をプリントし、試作したウェアラブルデバイスで、生体電気信号測定が可能であることを実証している。(IEEJ Trans.SM, Vol.137, No.12, 2017)

研究室では、伸縮性を有する電極の作製方法に関する知見を有しており、生体計測をはじめとした各種目的に応じた電極の作製に関する連携や共同開発が可能である。



連携のポイント

①シーズの活用が見込まれる繊維業界

靴業界、製靴業界、製襪業界、染色業界、縫製業界

②共同開発や連携に必要な設備等

- ・使用する素材(糸)・・・金属フィラメント(数μmサイズの銀粉末)、バインダー
- ・必要となる設備・・・高精度塗布装置、遠赤外線加熱装置(100～120℃で使用できるもの)
- ・その他(あれば望ましいもの)・・・導電性ペースト塗布装置(スクリーン印刷機等)、評価機器(デジタルマルチメータ)等

③連携(技術導入)に伴い、検討しておくべき事項

- ・開発するデバイスの用途(用途に応じて、必要な電圧のバックが異なるため、使用する目的や開発期間等も含めて明確にしていただく)
- ・開発するデバイスの使用環境(伸縮性の程度、加工工程はどの程度になるか、洗濯性が必要か、その他必要な機能は・・・等)
- 導電性ペーストの塗布工程に適合する材料(伸縮性、熱安定性、ペースト保持性、等)
- ペーストをプリントした後の加工後生地の導電性にも影響を及ぼすことがわかっていない
- ・開発したデバイスを用いたビジネス展開(生産量・価格・イメージ・上場までのタイムスケジュール)
- ・生産のイメージ(自社対応の可否)

④製品イメージ及び進出が見込まれる産業分野

製品イメージ・・・心電・脳電計測用ウェアラブルデバイス(人間だけでなく、家電・ペットにも利用可)
産業分野(例)・・・スポーツ、医療機器・介護機器、産業用機器、モバイル機器、家電製品、自動車関連等

⑤連携の形態

共同研究(例:自社で素材(生地等)を準備し、大学の装置を使用して導電性ペーストを試作するイメージ)
共同研究実施にあたっての注意事項:なし
技術指導(例:群馬大学の規程に基づく技術指導(学術シーズ保有者の知見・大学の装置を使用した技術指導等)のメニューあり)

⑥シーズ保有者コメント

銀を含有する高伸縮性導電性ペーストを塗布することで、生体の低抵抗を持つウェアラブルデバイス材料の開発が可能です。これまでの研究で、高伸縮性ペーストのプリントは50μm以上ありますが、基材と用途が明確であれば、様々な仕様を満足したデバイスの提案が可能です。皆さまからの御相談をお待ちしております。



連携に興味がある方へ

問い合わせ先: 栃木県産業技術センター 繊維技術支援センター TEL 0284(21)2138
シーズ関連問合せ先: 群馬大学 大学院理工学部 物質・環境部門 井上研究室 TEL 0276(50)2250

Industrial Technology Center of Tochigi Prefecture

図3 シーズ2の概要紹介資料

高生体適合性フレキシブル繊維電極

シーズ保有者 東北大学 災害科学国際研究所
鳥光 慶一 学術研究員

シーズの概要

各種繊維に導電性分子(PEDOT)をコーティングし、生体適合性、肌触り、風合いが良い導電性材料であるフレキシブル繊維電極を開発。

糸状、リボン状、布状の基材等に対して加工が可能である。

計測によるストレスを低減させるため、着用した際の圧迫感を抑制し、さらけなく計測することを狙っているため、肌への刺激を抑制した素材であることが、他の研究に対する大きなアドバンテージとなっている。

研究室では、フレキシブル繊維電極を人体に接触させることで心電や筋電を計測する技術だけでなく、直接人体に触れることなくセンサを取得(例:着座時に背盤に電極が見える化)する技術も開発している。さらに、生体適合性が高い材料を生かした生体の脳神経活動及び筋肉内部の電位計測の技術等の開発に取り組んでいる。様々な研究実績を有していることから、アプリケーション開発も含めた連携や共同開発が可能である。



※ 東北大学鳥光研究室の学術写真

連携のポイント

①シーズの活用が見込まれる繊維業界

靴業界、製靴業界、製襪業界、染色業界、縫製業界

②共同開発や連携に必要な設備等

糸状、リボン状、布状の基材等に対する導電性分子の加工及びフレキシブル繊維電極の提供は、東北大学のスタートアップ企業として設立されたヒュートエクス株式会社(シーズ保有者が代表取締役)が担う。
ヒュートエクス株式会社・・・〒980-0021 宮城県仙台市青葉区中央2-2-30 電話番号 022-228-7805 <https://beyond-s-corp.com/>

③連携(技術導入)に伴い、検討しておくべき事項

・開発するデバイスの用途(用途に応じて、基材の形状や厚みが異なるため、使用する目的や開発期間等も含めて明確にしていただく)

・センサシステム(繊維電極を接続する形態)の設計、アプリケーションの開発、OEM/ODMシステムとして販売する形態の検討、方向性が異なる。特に後者であれば、商品化を進める上で不可欠な開発後の連携も見据えていただく。

④製品イメージ及び進出が見込まれる産業分野

製品イメージ・・・テキスタイルセンサ(特に生体適合性を生かした生体電極(心電・筋電測定デバイス)、荷重センサ、電圧検出材料(人間だけでなく、家電・ペットにも利用可))

産業分野(例)・・・スポーツ、産業用機器、モバイル機器、家電製品、自動車関連、医療機器・介護機器等

⑤連携の形態

共同研究(例:共同で仕様等を検討し、スタートアップ企業も加わった上で試作等を行うイメージ)

共同研究実施にあたっての注意事項:なし

⑥シーズ保有者コメント

フレキシブル繊維電極は、基材である繊維の風合いや肌触りを生かすことなく導電性を付与しているだけでなく、高い生体適合性を有していることから、分野での活用が期待できます。また、電極自身がセンサになるという繊維電極の特長から、日常、繊維産業に活用される企業様としてウェアラブルセンシング分野への参入のハードルが低くなるものと考えます。皆さまからの御相談をお待ちしております。



連携に興味がある方へ

問い合わせ先: 栃木県産業技術センター 繊維技術支援センター TEL 0284(21)2138
シーズ関連問合せ先: 東北大学災害科学国際研究所 鳥光研究室 TEL 022(795)5833

Industrial Technology Center of Tochigi Prefecture

図4 シーズ3の概要紹介資料

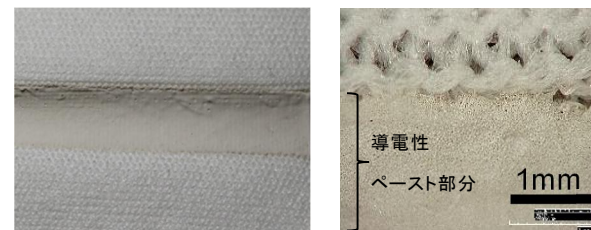


図5 試作生地の表面観察結果

(左: 生地の全体写真 右: ペースト部分拡大写真)
技術移転等の中で試作を進める際は、銀粉末のサイズやバインダーの種類は作製する製品に応じ、適宜変更する必要があると考えられることから、目的に応じた導電性ペーストのレシピ等の知見をさらに蓄積する必要があると考えている。

3. 2. 2 試作系の作製

導電性ペーストをウーリーナイロン糸へ塗布する方法を図6に示す。

図6に示した導電性ペースト塗布用治具の中には、導電性ペーストを満たしている。

治具の上部から治具内に入ったウーリーナイロン糸が、治具内で満たされた導電性ペースト内を通過することで当該ペーストが糸の周囲から付着する。治具の下部は細くなっており、糸に過剰に付着した導電性ペースト

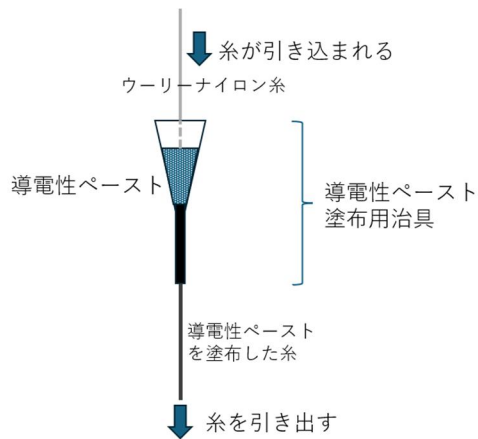


図6 糸への導電性ペースト塗布方法
をしごく役目をしている。下方から糸を引き出すと、ウーリーナイロン糸の周囲に導電性ペーストが付与できていることが目視で確認できた。

本方法で得た試作糸の表面観察結果を図7に示す。

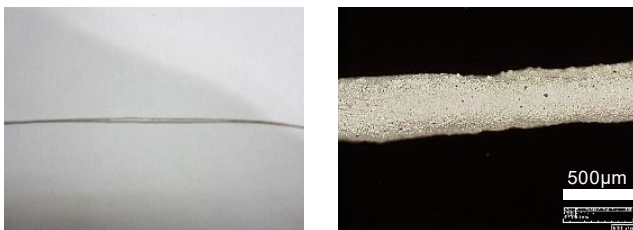


図7 試作糸の表面観察結果

(左：糸の全体写真 右：糸の拡大写真)

図7から、銀と思われる微細な粒子がウーリーナイロン糸の周囲を隙間なく覆っていることが確認できた。これにより、図6に示した方法で導電性ペーストを比較的均一に糸に塗布できたものと考えられる。

3. 2. 3 試作品の評価

3. 2. 1 及び 3. 2. 2 で製作した試作生地及び試作糸それぞれについて、電気特性評価として、伸長時の抵抗値を測定した。測定状況を図8に示す。



図8 伸長時の抵抗値測定の様子

図8に示したとおり、サンプルをセットした引張試験機を2 mm（サンプルに対するひずみは10%に相当）伸長した後、一定時間（10分）経過した時の抵抗値をマルチメータで計測し、これを繰り返した。これは、

伸長直後は、抵抗値が急激に上昇し、その後時間の経過と共に抵抗値が低下し、約10分で安定する状況が観測されたためである。

この方法で試作生地における伸長時の抵抗値変化を測定した結果を図9に示す。

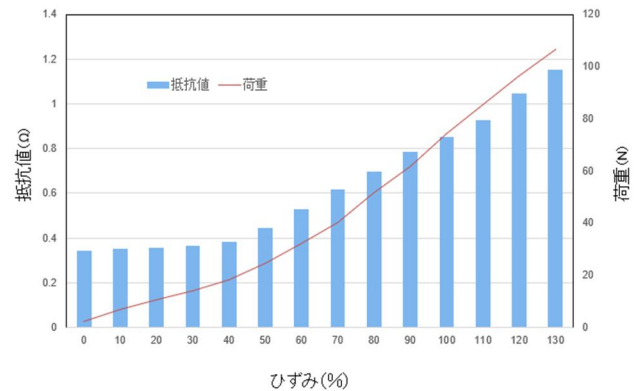


図9 試作生地における伸長後10分経過時の抵抗値

図9から、ひずみが0～40%程度（伸長値0～10 mm）では、ほとんど抵抗値に影響を及ぼさないことがわかる。50%以上のひずみになると、ひずみの増加に伴い抵抗値が直線的に増加する傾向が顕著になり、130%のひずみまで同様の傾向が続くことがわかる。

さらに、伸長を続け、ひずみが140%（伸長値28 mm）の測定を試みる際、基材であるポリエステル生地ごと切断した。

一般的に、膝や肘をはじめとした皮膚の伸びは、50%程度であると言われている⁹⁾ことから、試作生地は、衣料分野で利用できる可能性があることが認められる。

以上を踏まえると、試作生地は、衣料品用途に適するひずみの範囲（0～40%）では、抵抗値がほぼ変動せず、それ以上のひずみの範囲（50～130%）では、抵抗値が比較的にリニアに上昇する特性を有することが明らかになった。

また、試作生地は先に述べたとおり、一定時間経過後に抵抗値が安定する現象について、特徴的な特性を示した。その一例として、図10に80%のひずみから90%のひずみに生地を伸長した際、2分ごとに抵抗値の変化を測定した結果を示す。

試作生地に80%のひずみを与えて定常状態であった時点（グラフが実線になる時点）から90%ひずみを与える状態（90%ひずみに伸長した時点。すなわち、90%ひずみに伸長した時点からの経過時間が0分の時点）まで伸長を行った。その後、90%のひずみを与えてから定常状態（90%ひずみに伸長した時点からの経過時間が10分の時点）に到達するまでの間（10分間）、抵抗値が時間と共に変化していく状況を確認した。

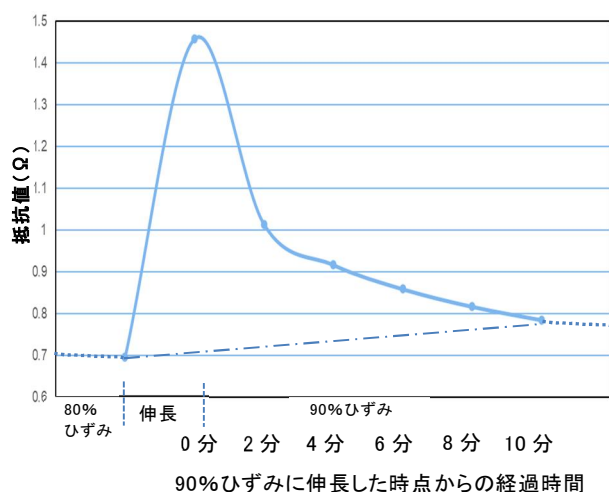


図 10 生地伸長試験時における過渡的現象例

本事象のようにひずみ値を変化させた時、変化直後の抵抗値が急上昇した後、徐々に低下し、安定した抵抗値に至るような経過をたどることを過渡的現象と言われている。

図 10 では、ひずみを 80% から 90% に伸長した時の経過を記載したが、今回の試験では、0～130% まで、全てのひずみ値で過渡的現象が確認できた。このことから、試作生地を伸長した際の抵抗値は、一定時間経過後は比較的にリニアな特性を示すが、伸長した瞬間からは過渡的に変化することがわかった。このことから、試作生地は本特性を利用することで、伸びにより変光・変色するデバイスや、ひずみゲージに相当するセンサ等の新たなデバイスの可能性も示唆されたと考えている。

次に、試作系における伸長後 10 分経過した時の抵抗値の測定結果を図 11 に示す。

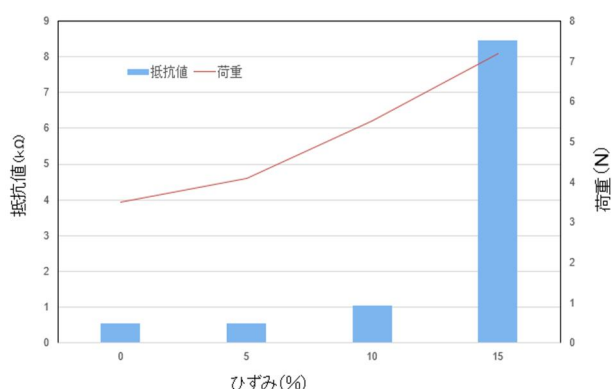


図 11 試作系における伸長後 10 分経過時の抵抗値

図 11 から試作系は、試作生地と比べると初期抵抗値（ひずみが 0% の時の抵抗値）が高いことがわかる。初期抵抗値は、0.5 kΩ 程度を示し、ひずみが 10% まで（伸長値 0～2 mm）であれば、1 kΩ 程度であったものの、ひずみを 15% まで伸長すると抵抗値は 8 kΩ

を超える値を示した。さらに伸長を続けたが、ひずみが 20%（伸長値 4 mm）の測定を試みる際、基材であるウーリーナイロン糸は切断していないにも関わらず、電氣的な破断が発生した。

なお、試作系においても、0～15% までの全てのひずみ値で過渡的現象が確認された。

企業等での活用を想定すると、試作系の抵抗値を低くすることやひずみに対する耐性を向上させることが求められると考えられる。そのため、今後は、この導電糸を数本撚り合わせるなどの検討を行い、抵抗値の低下とひずみに対する耐性を向上させる必要があると考えられる。

4 おわりに

大学等有する学術シーズを調査し、スマートテキスタイル分野で求められる導電性等の電氣的特性に係る機能性付与に関して、地域の繊維関連企業が有する技術と当該シーズを結びつけるために、繊維企業向けに学術シーズ概要紹介資料を作成した。

さらに、特に地域繊維関連企業と具体的な取組に発展することが期待できる学術シーズに関して、サンプルの生地と糸を試作し、それらの電気特性評価を行った。その結果、以下の知見を得た。

- (1) 地域企業が比較的活用しやすいと考えられる学術シーズとして 3 テーマを選定し、学術シーズ概要紹介資料を作成した。
- (2) 群馬大学の「高伸縮導電性ペーストを用いたウェアラブルデバイス」の学術シーズに基づき、当センターで保有している装置等を用いて、導電性を有するサンプル（試作生地及び試作糸）の製作を行った。
- (3) サンプルの性能評価として、電気特性評価を実施した結果、試作生地については 130% のひずみを与えた時でさえ、高い導電性を維持することを示した。また、試作糸は 15% のひずみまでは導電性を維持することを確認した。
- (4) 試作品（試作生地及び試作糸）はいずれも導体としての性能を有するだけでなく、伸長に応じて、リニアに抵抗値が変化する特性や、伸長時の抵抗値が過渡的現象を示すという特性を有しており、配線だけでなく、センサ等への活用が期待できることを確認した。

謝 辞

本研究の実施に関し、シーズ概要紹介資料の作成等にあたり、シーズ保有者である群馬大学の井上雅博

先生、京都工芸繊維大学の石井佑弥先生、東北大学の鳥光慶一先生に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 堀照夫：“エレクトロニクス実装学会誌”，23(5)316, (2020)
- 2) 牛島洋史：“スマートテキスタイル開発の現状”，繊維製品における資源循環システム検討会資料，
https://www.meti.go.jp/Shingikai/mono_info_service/resource_recycling/pdf/006_04_00.pdf
- 3) 例えば、福井県工業技術センター研究開発情報：
<https://www.fklab.fukui.fukui.jp/kougi/kenkyu/index.html>
- 4) K. Tonomura, A. Yu, Y. Ishii：“Smart Materials and Structures”，32(3), 035029 (2023)
- 5) 井上雅博ら：“IEEJ Trans SM”，136(1), 18, (2016)
- 6) 井上雅博ら：“IEEJ TransSM”，137(12), 426, (2017)
- 7) 井上雅博ら：“エレクトロニクス実装学会誌”，18, 6, 413, (2015)
- 8) 鳥光慶一：“オレオサイエンス”，20(12), 27, (2020)
- 9) 原田龍司ら：“繊維機械学会誌”，36(6), 275(1983)

経常研究

プラスチックの水平リサイクルに関する調査研究

八丁 佳功* 伊藤 繁則*

Investigative Study on Horizontal Recycling Processes for Plastics
HATCHO Yoshinaru and ITO Shigenori

本研究では、ポリスチレン (PS) 及びポリカーボネート (PC) の水平リサイクル実現を目的として、樹脂の繰り返し成形試験によって得られた成形品について、機械的物性評価、赤外線分光分析による構造評価及び動的粘弾性評価を行い樹脂の劣化要因を解析した。その結果、PC と PS では繰り返し成形による劣化挙動が異なることが明らかとなった。PS については、分子量の低下及び分子鎖の絡み合いの減少が主な劣化要因であることが示された。一方、PC のリサイクル成形品では、繰り返し成形による物性や動的粘弾性に大きな変化は認められず、繰り返し成形による分子構造の変化がほとんど生じないことが示唆された。

Key words: 水平リサイクル、射出成形、繰り返し成形、レオロジー、動的粘弾性

1 はじめに

プラスチックのリサイクルには、主にマテリアルリサイクル、ケミカルリサイクル及びサーマルリサイクルの3つが挙げられる。このうち、マテリアルリサイクルは資源循環の観点から特に有効とされており、その普及が期待されている。マテリアルリサイクルの中で、使用済みプラスチック製品を原料に用いて、同種の製品を製造することを「水平リサイクル」と呼んでいる。飲料用ペットボトルに使われているポリエチレンテレフタレート (PET) が代表的な事例であるが、他のプラスチックでは普及が進んでいない。

プラスチック成形加工業界では、製造工程内で発生する端材などを成形原料の一部として再利用するリサイクルが広く行われている。こうした中、リサイクル率向上や製造コスト削減を目的とし、ポリスチレン (PS) やポリカーボネート (PC) 製の自社製品を市場から回収して再利用する水平リサイクルを目指している企業がある。

本研究では、このような企業ニーズに応えるため、PS 及び PC について繰り返し成形試験を行い、作製した成形品について、機械的物性評価、赤外線分光分析による構造評価、及び動的粘弾性評価を行うことで、水平リサイクル技術の確立に向けた検討を行った。

2 研究の方法

2. 1 樹脂の成形繰り返し試験

* 栃木県産業技術センター 県南技術支援センター

樹脂材料に PS 及び PC を使用し、射出成形機 (日精樹脂工業 (株) 製、NEX 80IV-9EG) により射出成形した。得られた成形品を粉砕した後、再度射出成形する工程を繰り返し行った。なお、PC のリサイクル成形を行う際は、使用する材料を事前に箱形乾燥機 ((株) 松井製作所製 P0-50SH-J) で 120℃、4 時間予備乾燥させてから成形した。また、射出速度は全ての成形において 10 mm/s とした。

2. 2 成形品の機械的物性評価

PC 及び PS のバージン材と成形品粉砕材のメルトマスフローレイト (MFR) は、JIS K 7210-1 : 1999 に準拠し、メルトインデクサー (宝工業 (株) 製、L-207) を用いて測定した。試験条件は、PS については試験温度 200℃、試験荷重 5.0 kg、PC については試験温度 300℃、試験荷重 1.2 kg とした。

射出成形により得られた PS 及び PC の成形品をゲートカットして JIS K7139 : 2009 のダンベル形引張試験片タイプ A1 を作製した。また、PS のダンベル形引張試験片の一部を樹脂試験片ノッチ加工機 ((株) 安田精機製作所製、No. 189-PNCA) を用いて加工し、曲げ試験用の短冊形試験片とシャルピー衝撃試験用 2 mm 深さノッチ入り短冊形試験片を作製した。なお、PC のシャルピー衝撃試験用の短冊形試験片は JIS K6719-2:2011 により、ノッチを入れずに作製した。

作製した PS 及び PC 成形品のダンベル形引張試験片の引張強さ、弾性率は、JIS K 7161-1 : 2014 により万能材料試験機 (50 kN) ((株) 島津製作所製、AG-50kN-XV (特

型)) を用いて測定した。PS 成形品について試験速度 $v_1=1$ mm/min、 $v_2=5$ mm/min で、PC 成形品について試験速度 $v_1=1$ mm/min、 $v_2=50$ mm/min とした。PS 及び PC 成形品の引張弾性率の測定には接触式伸び計 ((株)島津製作所製 SSG50-10SH、標線間距離 50 mm) を用いた。短冊形試験片の曲げ強さ、弾性率は PS 及び PC 成形品ともに、JIS K 7171 : 2016 により万能材料試験機 (50 kN) を用いて、支点間距離 64 mm、試験速度 2 mm/min で測定した。曲げ弾性率の測定には、たわみ測定装置 ((株)島津製作所製、3 点曲げ試験用たわみ測定装置) を用いた。シャルピー衝撃強さは、JIS K 7111-1:2012 により衝撃試験機 ((株)東洋精機製作所製、IT) を用いた。PS 成形品はノッチ有り短冊試験片を 2 J ハンマーで、PC 成形品はノッチ無し短冊試験片を 15 J ハンマーで試験した。

2. 3 成形品の解析

2. 3. 1 成形品の赤外線分光分析

PS 及び PC 成形品について、フーリエ変換赤外分光光度計 (日本分光(株)製、FT/IR-4600) を用いて、赤外線吸収スペクトルを測定し、分子構造解析を行った。

2. 3. 2 成形品の分光測色

PS 及び PC 成形品の分光測色は、測色システム (コニカミノルタ(株)製、CM-3700d) を用いて、光源 D65、測定径 8 mm、視野 10 度、正反射込み (SCI) 方式で測定した。

2. 3. 3 成形品の動的粘弾性測定

PS 及び PC 成形品の動的粘弾性は、ツインドライブ型レオメータ (Anton Paar 社製、MCR702-Tg) を用いて、せん断ひずみ 10%、角周波数 0.1~100 rad/s における粘弾性を測定した。樹脂ペレット及び樹脂成形品の粉砕材を用いて、圧縮成形機により、直径 25 mm、厚さ 1 mm の円形サンプルを作製し、それを測定用試料として用いた。なお、PS は 180℃、200℃、220℃の温度条件下で、PC は 280℃、290℃、300℃の温度条件下で測定した。

3 結果及び考察

3. 1 樹脂の成形繰り返し試験

PS 及び PC を用いて射出成形した後それぞれの成形品を粉砕し、再度射出成形する試験を繰り返し行った。PS および PC の繰り返し成形における射出成形条件を表 1 に示す。バージン PS 及びバージン PC 並びにリサイクル成形品は、表 1 の条件でいずれも外観不良なく射出成形することができた。

表 1 各種材料の射出成形条件

材料	成形温度 (℃)	シリンダー回転数 (rpm)	金型温度 (℃)	保圧 (MPa)	保圧時間 (s)
PSバージン	220	80	45	34.8	15
PSリサイクル1回 (PS R1)				35	15
PSリサイクル2回 (PS R2)				32.6	15
PSリサイクル3回 (PS R3)				36.5	15
PSリサイクル4回 (PS R4)				36	20
PCバージン	300	80	80	55.9	15
PCリサイクル1回 (PC R1)				54.6	10
PCリサイクル2回 (PC R2)				54.7	15
PCリサイクル3回 (PC R3)				46.2	20
PCリサイクル4回 (PC R4)				47	20

3. 2 成形品の機械的物性評価

バージン PS 及びリサイクル成形品 (PS R1~PS R4) の MFR 測定結果と物性評価の結果を図 1 に示す。バージン PS と比較して、リサイクル成形品の MFR 値は高くなっており、特に PS R4 はバージン PS の 2 倍の MFR 値となり、リサイクル成形による流動性の増加がみられた。シャルピー衝撃強さは、バージン PS と比較し、リサイクル成形品が低下する結果となった。MFR 値がリサイクル成形品で増加している結果を考慮すると、リサイクル成形による分子量の低下により衝撃強さの値が低下したと推察される。一方、引張強さ、引張弾性率、曲げ強さ、曲げ弾性率については、バージン PS と比較し、リサイクル品 PS R1~PS R4 はほとんど変わらなかった。

同様に、バージン PC、リサイクル成形品 (PC R1~PC R4) の MFR 測定結果と物性評価の結果を図 2 に示す。PC のリサイクル成形品の MFR 値は、バージン PC と比較してわずかに増加していた。一方、引張強さ等の物性値は、バージン PC と比較しても、顕著な変化は確認されなかった。

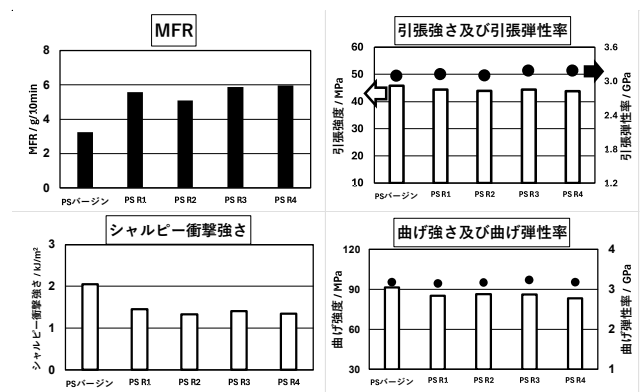


図 1 PS 成形品の物性試験結果

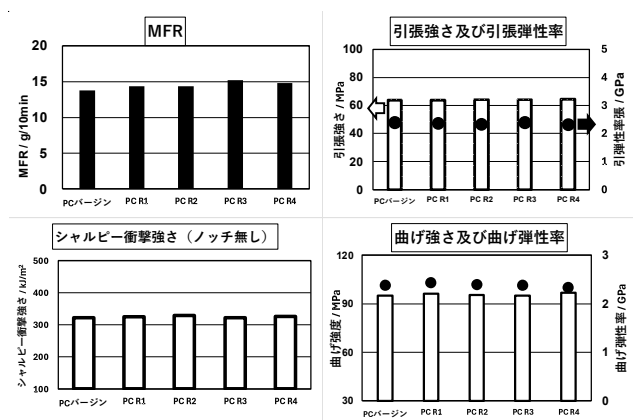


図2 PC成形品の物性試験結果

3. 3 成形品の解析

3. 3. 1 成形品の赤外線分光分析

試作した成形品について、分子構造の差異を確認するため、赤外線分光分析を行った結果を図3に示す。この結果から、PS及びPCの赤外線吸収スペクトルについて、バージン材とリサイクル成形品で同様のピークが確認され、リサイクル成形品とバージン材との間に顕著な構造的な差異は認められず、リサイクル成形品については化学劣化や構造変化は生じていないと推察される。

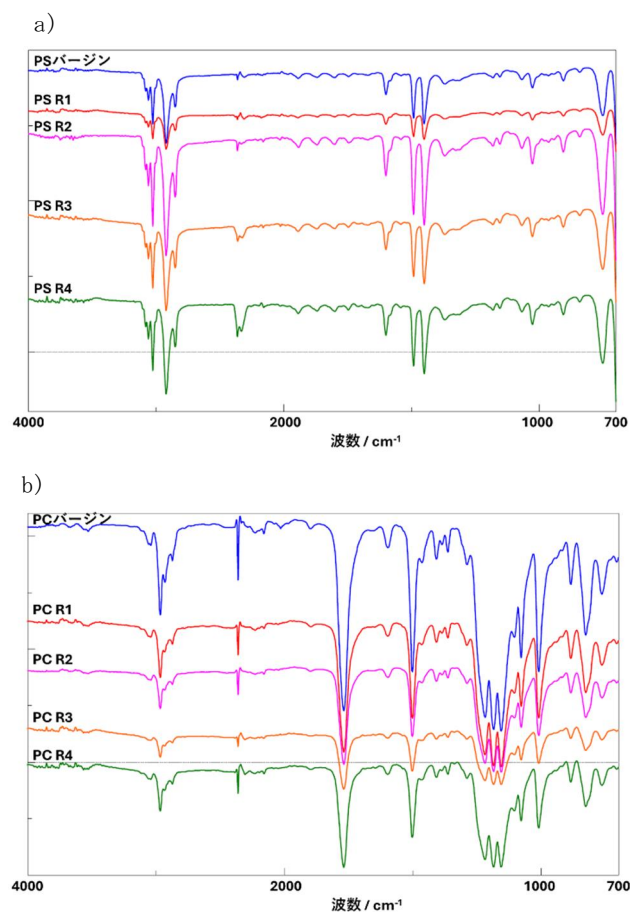


図3 成形品の赤外線吸収スペクトル

a) PS成形品、b) PC成形品

3. 3. 2 成形品の分光測色

試作した全ての成形品について分光測色を行った。PC成形品及びPS成形品の分光測色の結果を図4及び図5に示す。PC成形品で、リサイクルの回数の増加に伴い、 b^* 値(正の値が大きいほど黄色が強い)も増加しており、リサイクル成形品の黄変化が進んでいることが分かった。PCは酸化劣化に対して安定な構造を有しているが、加水分解するとビスフェノールAが生成し、PCの熱変色の主因とされる発色団を生成することが知られている¹⁾。すなわち、繰り返し成形により樹脂の再溶融と冷却が繰り返されて分子鎖中の加水分解が進行し、発色団が生成したことで黄変化が進行したと推察される。

また、PCは機械的物性がほとんど変化しない程度のわずかな構造変化でも、変色し易い材料である。本研究においても、測色結果に変化が見られた一方でPCの機械的物性の低下がほとんど確認されなかったことから、繰り返し成形によってPCの構造変化が物性に影響を及ぼすほど大きく進行していないと考えられる。

一方、PCと比較して変色しにくいPSでは、測色の変化は小さく、機械的物性にもほとんど変化は認められなかった。

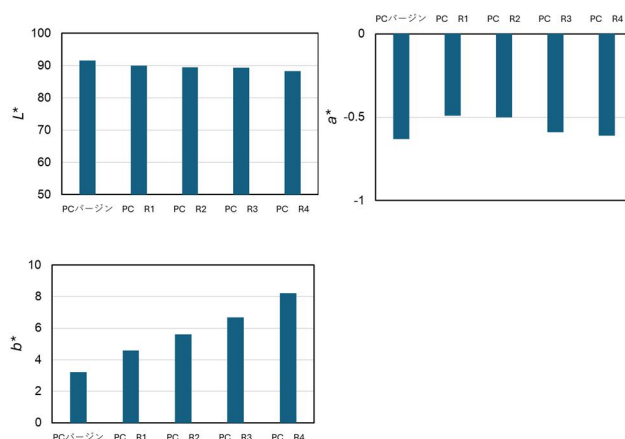


図4 PC成形品の分光測色結果

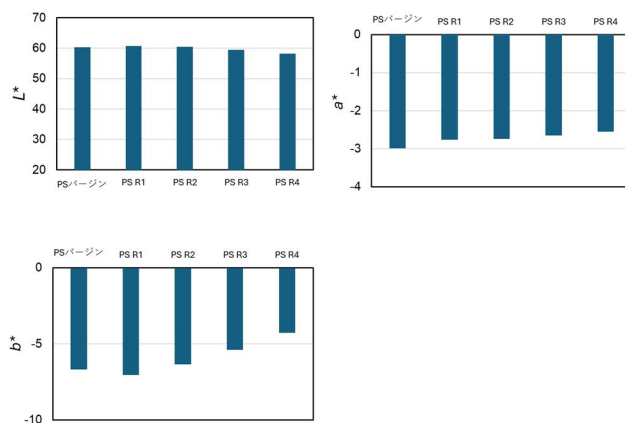


図5 PS成形品の分光測色結果

3. 3. 3 成形品の動的粘弾性測定

バージン PS 及び PS R4 について、ツインドライブ型レオメータによる動的粘弾性測定を行った。各温度（180℃、200℃、220℃）における測定結果を時間-温度換算則²⁾（以下、TTS）により合成したマスターカーブを図6に示す。両試料とも角周波数の増加に伴い、貯蔵弾性率（ G' ）及び損失弾性率（ G'' ）は単調に増加した。低周波数域では G'' が G' を上回り、粘性支配の挙動を示す一方、高周波数域では G' が増大し、弾性寄与が顕著となった。全周波数域において、リサイクル PS の G' および G'' はバージン PS と比較して低い値を示した。特に低～中周波数域において G' の低下が顕著であった。一般的に、熔融高分子の貯蔵弾性率および損失弾性率は分子量及び絡み合い密度に強く依存する。本研究においてリサイクル PS の G' 及び G'' がバージン PS より低い値を示したことは、繰り返し成形における熱及びせん断履歴により分子鎖切断が生じ、平均分子量及び分子鎖の絡み合いが低下したことを示唆している。この分子鎖切断が熔融状態における流動性の増加の要因となり、MFR 値（図1）が増加したことに寄与している。

さらに、繰り返し成形による PS の分子構造変化を確かめるため、粘弾性測定データを用いて van Gurp-Palmen（以下、vGP）プロットを作成した。図7に示す vGP プロットにおいて、バージン PS 及び PS R4 はほぼ同一の曲線上に分布した。一般に、vGP プロットの形状変化は長鎖分岐の形成や分子量分布の変化を反映することが知られている³⁾。したがって、リサイクル工程においては、新たな分岐構造の形成や分子量分布の著しい変化は生じていないと判断できる。図6に示した粘弾性の低下は、機械的特性に顕著な変化が生じない範囲（図1）であっても、動的粘弾性測定により微小な劣化を明確に捉え得ることを示している。また、赤外分光測定では繰り返し成形によるスペクトル変化はほとんど認められなかった一方、動的粘弾性測定では構造変化を高感度で検出できた。

一方、PC は PS と異なる動的粘弾性挙動を示した。各温度（280℃、290℃、300℃）において傾向は同様であり、代表として図8に 290℃におけるバージン PC 及びリサイクル成形品 PC R4 の結果を示す。 G' 及び G'' とともに角波数の増加に伴い単調に増加した。しかし、PS でみられたような G' と G'' のクロスオーバーは認められず、測定した周波数全域で G'' （粘性） $>$ G' （弾性）であった。この粘性優勢の挙動は、MFR が比較的高値を示し（図2）、熔融状態での流動性が高いことと整合している。さらに、バージン PC と PC R4 の G' 及び G'' に有意な差は認められず、繰り返し成形による分子構造の顕著な変

化は生じていないと考えられる。この結果は、MFR、機械的特性、ならびに赤外線吸収スペクトルにおいても差がほとんど認められなかった結果と一致する。

なお、PS では測定結果を TTS によりマスターカーブ（図6）が作成できた一方、PC では TTS が成立せずマスターカーブは得られなかった。PC の G' と G'' 角周波数の増加に対して単調に増加するものの、角周波数 1～10 rad/s 付近でわずかに屈曲が認められる曲線となっている。これは熱レオロジー単純性が満たされないことを示唆し、微量添加剤やわずかな構造の差異などが要因として考えられるが、他の評価法や材料の作製状況など種々の検討が必要である。

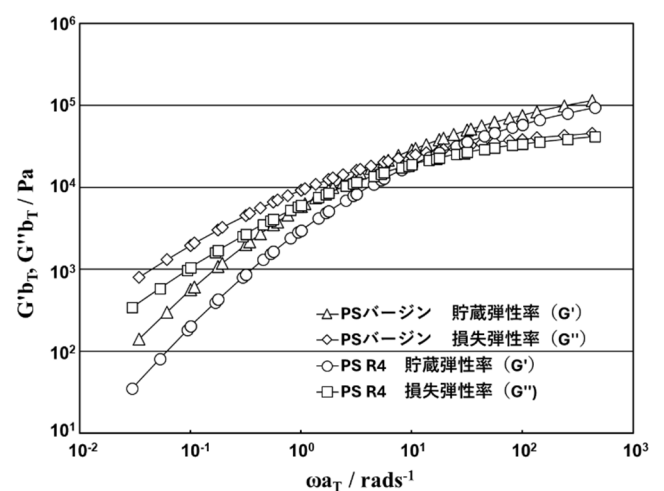


図6 バージン PS 及び PS R4 の動的粘弾性

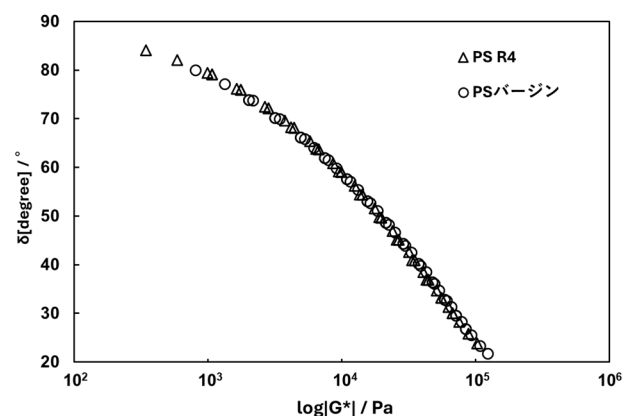


図7 バージン PS 及び PS R4 の van Gurp-Palmen プロット

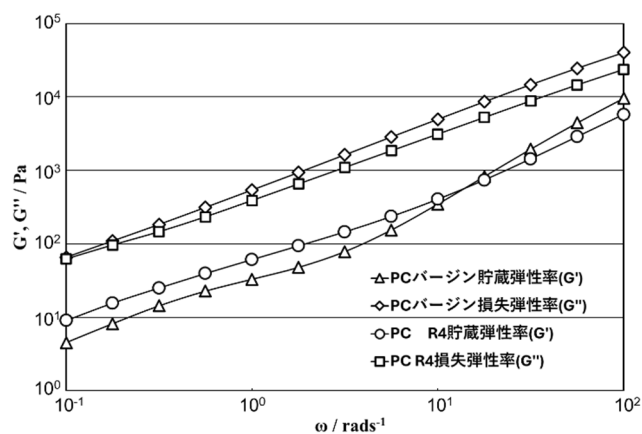


図8 バージンPC及びPC R4の動的粘弾性

4 おわりに

PS及びPCの繰り返し成形と成形の評価解析により以下の知見が得られた。

- (1) PSのリサイクル成形品では、繰り返し成形に伴う溶融粘度及びシャルピー衝撃強さの低下が確認され、動的粘弾性測定においても粘弾性の低下が認められた。これらの結果から、主な劣化要因は分子量の低下及び分子鎖の絡み合いの減少であること

が明らかとなった。

- (2) PCのリサイクル成形品については、繰り返し成形による機械的物性に顕著な変化が認められず、バージン材との比較で動的粘弾性にも大きな差が確認されなかった。これらの結果より、PCは繰り返し成形による分子構造の変化がほとんど生じないことが示唆された。

謝 辞

ツインドライブ型レオメータの利用及び測定への御協力と御指導をいただきました山形大学大学院有機材料システム研究科 教授 杉本昌隆氏に深く感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 山ノ井博：“マテリアルライフ学会誌”，19，3，103～108（2007）
- 2) M.L.Williams *et al.*：“*J. Am. Chem. Soc.*”，77，3701-3707(1955)
- 3) M.Van Gurp, J.Palmen：“*Rheol. Bull.*”，67，5-8（1998）

経常研究

超音波振動を援用したチタン合金の MQL エンドミル加工に関する研究

近藤 弘康* 山下 健介*

Study on Ultrasonic Vibration-Assisted MQL End Milling of Titanium Alloys
KONDO Hiroyasu and YAMASHITA Kensuke

チタン合金の MQL 加工において工具寿命延長効果が得られるエンドミルとノズルの距離を延長するため、工具刃先と被削材切削面の摩擦抵抗を低減できる超音波振動に着目し、超音波振動が切削力や凝着の除去に与える影響を調査した。超音波振動を付与した際に工具と被削材が連続接触する条件で圧延 64 チタンの側面切削における主分力を評価した結果、超音波振動の有無で切削力の値に顕著な差は見られなかった。一方、切削力に微振動が見られ、その振動周期は超音波振動の周波数と一致した。また、MQL の工具寿命延長効果が損なわれるノズル距離で工具すくい面の凝着を比較した結果、超音波振動の付与で凝着が低減した。

Key words: 超音波振動、エンドミル加工、チタン合金、切削力、凝着

1 はじめに

ボーイング 787、エアバス 350 等の新型航空機では、機体の軽量化等を目的とした CFRP の利用増に伴い、熱膨張率や電蝕の問題から CFRP と接する金属部材にチタン合金が多用されている。

チタン合金は熱伝導率が小さく、切削時の刃先温度が高温になる等の要因のため工具寿命が著しく短く、部品製造コストの工具費の割合が高くなっており、工具の長寿命化によるコスト低減が求められている。

工具の長寿命化のため、微量の切削油剤を圧縮空気とともにオイルミストとして供給する MQL (Minimal Quantity Lubrication) 加工をチタン合金に用いたところ、加工機の差異に関係なく、従来用いられている高压クーラントに比べて 10 倍以上の工具寿命が得られた¹⁾。また、エアブロー衝撃力評価手法を用いてノズル形状等を選定し、エンドミルとノズルの距離（以下、ノズル距離）が 120 mm においても工具寿命延長効果が得られる MQL 供給システムの開発を実現した²⁾。

これらの成果は加工現場に適用を進めているものの、現場の作業性向上や更なる大型部品への適用のため、更なるノズル距離延長のニーズがある。

チタン合金の MQL 加工は刃先に発生する凝着をエアブローで除去することで工具の長寿命化を実現していると考えられる³⁾。そのため、刃先の摩擦係数を低減し凝着の結合を抑制することで、ノズル距離が大きくエアブロー衝撃力の小さい条件においても凝着を除去し、工具寿命延長効果を得ることが期待できる。

そこで本研究では、工具刃先と被削材切削面の摩擦抵抗を低減できる超音波振動に着目し、超音波振動が切削力や凝着の除去に与える影響を調査した。

2 研究の方法

2. 1 超音波振動条件が側面切削に与える影響の調査

2. 1. 1 超音波スピンドルの振動振幅の評価

超音波切削加工は切削抵抗の低減や加工面品質の向上などの効果が知られており、脆性材料や難削材等の加工に多くの事例が報告されている。超音波振動条件のうち、振動周波数と振動振幅は工具振動の瞬間最大速度 V_c を決定するパラメータであり、切削速度 V よりも V_c が大きい場合、工具刃先は加工物から瞬間的に離れるが、 V よりも V_c が小さい場合、工具刃先は加工物と連続接触することが知られている⁴⁾。

そこで、本研究で使用する超音波スピンドル（アリュージ DUS シリーズ）の切削状態を把握するため、レーザードップラー振動計（Polytec NLV-2500-2）を用いて、加工段取りにおける工具の軸方向振動の振動振幅の測定を行った（図 1）。

なお、当超音波スピンドルは、工具長・材質等から決定される工具の共振周波数を 18-40 kHz の周波数範囲で自動調整するため、安定して共振がなされた 26 kHz を振動周波数とし、超音波スピンドルに供給する高周波電気出力を装置最大で設定した。また、工具は径 4 mm、1 枚刃の超硬エンドミルを用い、突き出し長さ 20 mm で評価を行った。なお、当工具は工具振れの影響を抑えるため、2 枚刃の工具から 1 枚刃を削り取ったものである。

* 栃木県産業技術センター 機械電子技術部

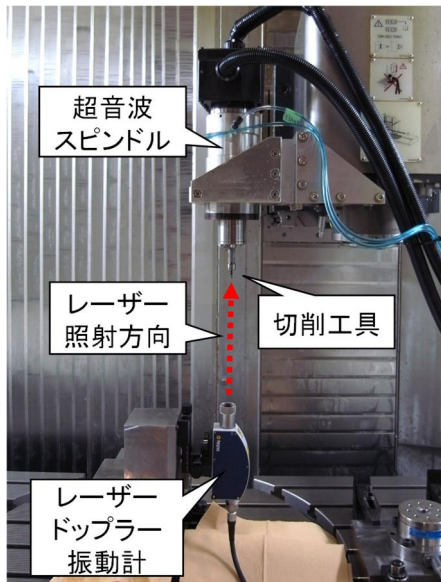


図1 超音波スピンドル軸方向振動測定段取り

2. 1. 2 側面切削試験

超音波振動の有無がチタン合金のMQL加工における切削力や加工面性状に与える影響を評価するため、加工現場におけるチタン合金の仕上げ加工に相当する表1の条件で5軸マシニングセンタ（DMG 森精機 DMF180）に取り付けた超音波スピンドルを用いて、64 チタン圧延材（AMS4911）の切削試験を実施した（図2、3）。

なお、切削力は切削抵抗測定装置（日本キスラー 9257B）を用いて測定し、加工面の表面粗さは非接触表面粗さ測定機（Taylor Hobson CCI-MP）を用いて測定した。

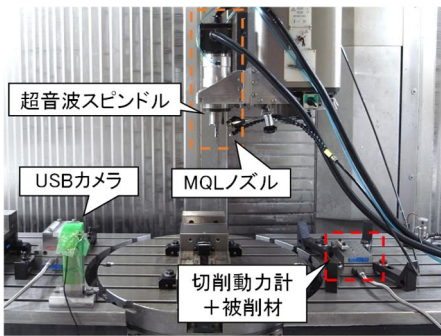


図2 側面切削試験段取り

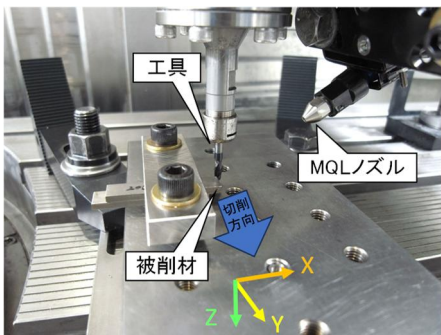


図3 側面切削試験段取り（拡大）

表1 側面切削試験条件

工具	径	4 mm	
	形状	ラジアスエンドミル	
	コーティング	TiAlN	
	母材	超硬	
	刃数	1 枚刃	
切削条件	切削速度	50 m/min	
	1 刃送り	0.1 mm/tooth	
	軸方向切込み	3.2 mm	
	半径方向切込み	0.1 mm	
超音波条件	超音波振動	あり	なし
	振動周波数	26 kHz	—
	電気出力	装置最大	—
MQL条件	ノズル距離	50 mm	
	ノズル角度	30°	
	ノズル口径	2 mm	
	エアー入力圧	0.7 MPa	
	エアー流量	145 L/min	
	油供給量	30 ml/h	
	使用油	BLUEBE LB-1	

2. 2 ノズル距離が凝着に与える影響の調査

超音波振動により工具刃先と被削材切削面の摩擦抵抗が変化する場合、刃先への凝着の付着に差が生じると考え、表2のとおり、超音波振動ありはノズル距離 150 mm、超音波振動なしはノズル距離 120 mm、150 mm の2条件で 64 チタン圧延材（AMS4911）の切削試験を行った。なお、工具、切削条件は表1の条件を用いた。

また、工具は条件毎に新品工具を用い、繰り返し5回側面切削を実施した後、走査型電子顕微鏡（日立ハイテック SU3800）を用いて工具のすくい面における凝着の観察を行った。

表2 凝着確認試験条件

超音波条件	超音波振動	あり	なし
	振動周波数	26 kHz	—
	電気出力	装置最大	—
MQL条件	ノズル距離	150 mm	120, 150 mm
	ノズル角度	30°	
	ノズル口径	2 mm	
	エアー入力圧	0.7 MPa	
	エアー流量	145 L/min	
	油供給量	30 ml/h	
	使用油	BLUEBE LB-1	

3 結果及び考察

3. 1 超音波振動条件が側面切削に与える影響の調査

3. 1. 1 超音波スピンドルの振動振幅の評価

レーザードップラー振動計で測定した振動速度を図4に示す。振動周波数が一定の場合、変位は速度 $\div 2\pi f$ (f :振動周波数)の関係が知られているため、速度振幅のピーク平均から算出した振動振幅 A は $0.68 \mu\text{m}$ と算出できる。また、文献5)で示された工具振動の瞬間最大速度 V_c の算出式(1)を用いると、 6.7 m/min よりも大きい切削速度の場合、工具刃先は加工物と連続接触すると考えられる。

$$V_c = 2\pi f A \quad (1)$$

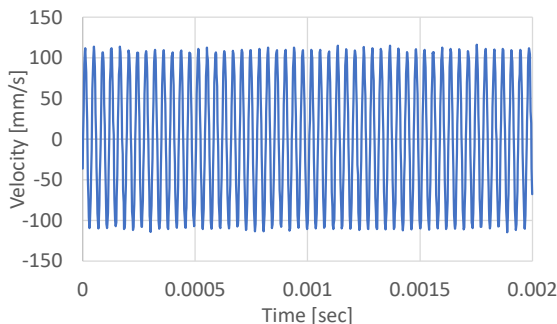


図4 振動速度測定結果

3. 1. 2 側面切削試験

主分力 (X 方向) の切削力測定結果を図5に示す。1切込み毎のピーク平均 ($n=6$) を比較すると、超音波振動ありは 39.46 N 、超音波振動なしは 39.55 N であり、顕著な差は見られなかった。

次に同試験の1切込みの切削力主分力を図6、FFTによる周波数スペクトルを図7に示す。超音波振動ありは切削力に微振動が見られ、周波数スペクトルに超音波スピンドルの振動周波数である 26 kHz にピークが見られる。これは試験条件の切削速度は 50 m/min であり、工具振動の瞬間最大速度 6.7 m/min よりも大きいため、工具刃先は加工物と連続接触している一方、超音波振動により切削速度が変動することから、この結果が得られたものと考えられる。また、表面粗さは、超音波振動ありは $R_z 1.87 \mu\text{m}$ 、 $R_a 0.25 \mu\text{m}$ に対し、超音波振動なしは $R_z 1.84 \mu\text{m}$ 、 $R_a 0.25 \mu\text{m}$ であり、ほぼ同程度であった。

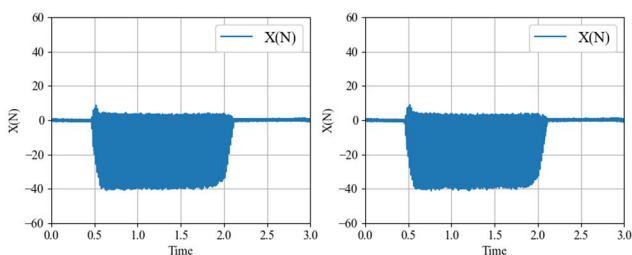


図5 切削力主分力

(左：超音波振動あり、右：超音波振動なし)

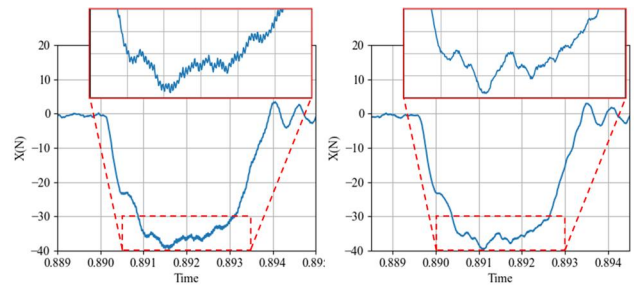


図6 1切込みの切削力主分力

(左：超音波振動あり、右：超音波振動なし)

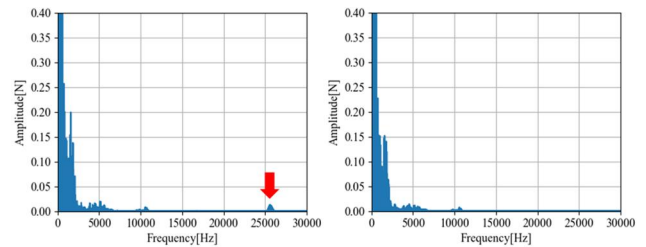


図7 周波数スペクトル

(左：超音波振動あり、右：超音波振動なし)

3. 2 ノズル距離が凝着に与える影響の調査

図8～10に各条件の工具すくい面の観察結果を示す。超音波振動なしのノズル距離 120 mm (図8) と 150 mm (図9) を比較すると、ノズル距離 120 mm では凝着が見られないものの、ノズル距離 150 mm では広い範囲で刃先に凝着が見られる。これはノズル距離が大きくなることでMQLのエアブロー衝撃力が小さくなり、切削時に刃先に発生した凝着を除去できず、刃先に残存したのと考えられる。これは、過去の研究²⁾において、超音波振動なしの場合、ノズル距離 120 mm は長寿命である一方、ノズル距離 150 mm は短寿命であることから、MQLの工具寿命延長効果は刃先の凝着の有無と関連があることを裏付ける結果と言える。

一方、超音波振動ありのノズル距離 150 mm (図10) は、超音波振動なしと異なり、凝着は見られなかった。これは、超音波振動により、工具刃先と被削材切削面の摩擦抵抗が低減し、小さいエアブロー衝撃力でも刃先に発生した凝着を除去できた可能性が考えられる。そのため、当条件で工具摩耗試験を行う場合、超音波振動なしで工具寿命延長効果が損なわれるノズル距離 150 mm においても超音波振動によって刃先の凝着を低減し、工具の長寿命化が期待できる。

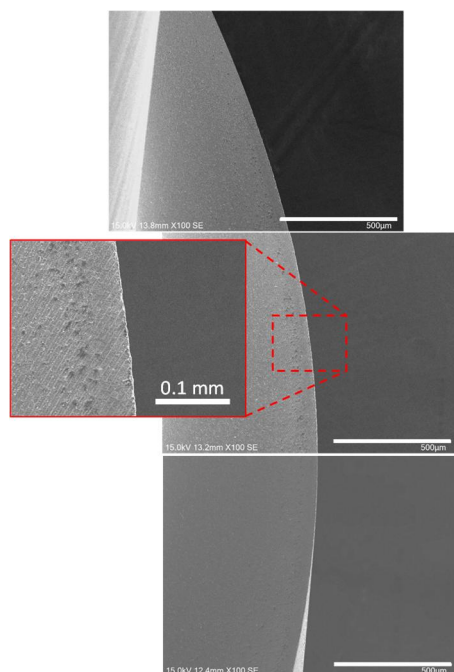


図8 すくい面観察結果（超音波振動なし、120 mm）

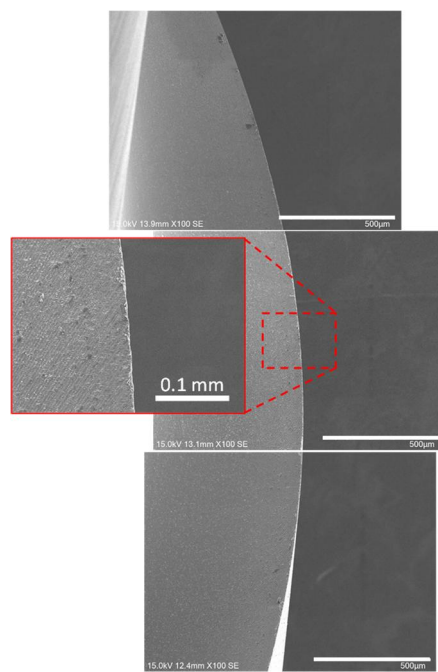


図10 すくい面観察結果（超音波振動あり、150 mm）

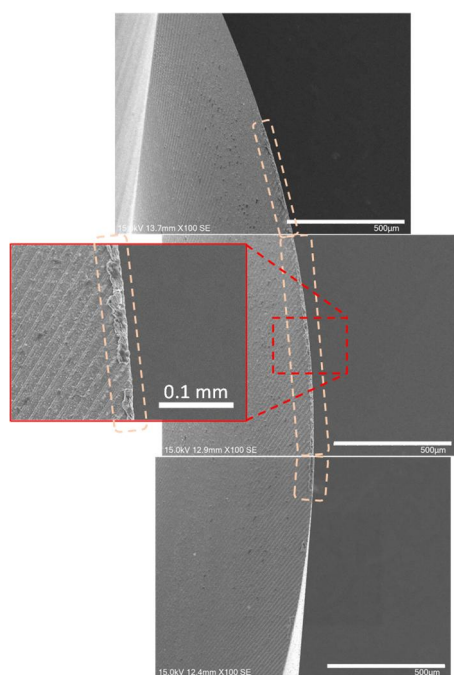


図9 すくい面観察結果（超音波振動なし、150 mm）

4 おわりに

本研究では、圧延 64 チタン合金の MQL エンドミル加工において超音波振動が切削力や凝着の除去に与える影響を調査し、以下の知見を得た。

- (1) 本研究で用いた超音波スピンドルの変位振幅は約 $0.68 \mu\text{m}$ と小さいため、実施した切削条件 (V_c 50m/min) では工具と被削材が連続接触する。
- (2) 側面切削における主分力を評価した結果、超音波振動の有無で切削力の大きさに顕著な差は見られ

なかった。一方、切削力に微振動が見られ、超音波振動の周波数と一致した。

- (3) MQL の工具寿命延長効果が損なわれるノズル距離 150 mm において工具すくい面における凝着を比較した結果、超音波振動の付与で凝着が低減した。

謝 辞

本事業で用いた測定機の一部は公益財団法人 JKA の補助事業によるものであり、競輪マークを記して謝意を表する。

参考文献

- 1) 近藤 弘康ほか：「栃木県産業技術センター研究報告」，19，1-5，(2022)
- 2) 近藤 弘康ほか：「栃木県産業技術センター研究報告」，21，1-7，(2024)
- 3) 笹原 弘之ほか：「精密工学会誌」，66 (1)，80-84，(2000)
- 4) 隈部 淳一郎：「精密加工振動切削-基礎と応用-」，実教出版，(1979)
- 5) 原 圭祐ほか：精密工学会学術講演会講演論文集 2013S，117-118，(2013)



本研究は、公益財団法人 JKA 補助事業により整備した機器を活用して実施しました。

経常研究

トロコイド加工による切削加工の生産性向上に関する研究

荒井 辰也* 近藤 弘康* 水堀 文剛*

Research on Productivity Improvement in Trochoidal Milling
ARAI Tatsuya, KONDO Hiroyasu and MONDORI Bungo

トロコイド加工における条件設定の知見蓄積を目的として、工具径や切削条件が切削力に与える影響を調査するとともに、生産性向上の効果について検証を行った。その結果、溝幅に対して工具径が大きいと切削力変動が生じて工具寿命が低下するおそれがあることや、半径方向切込みに比べて1刃送り量や切削速度の増加が切削力変動に与える影響は小さいことが分かった。また、工具摩耗試験を行うことで、通常加工に比べてトロコイド加工は工具寿命が長く、単位時間当たりの加工効率が良いことを実証し、生産性の高い加工が可能となることを示した。

Key words: トロコイド加工、切削力、工具寿命、加工効率、高生産性

1 はじめに

切削加工を行う中小企業は、国内外における価格競争のため、生産性向上や製造コストの低減が求められている。中でも、荒加工工程では、金属板等の材料から部品形状の概形を削り出すため除去量が多く、加工時間が長く工具の損傷が大きいことから、加工時間の低減や工具寿命の増大による加工コストの削減効果が大きく、これらを実現する高効率な加工方法が必要とされている。

高効率かつ工具寿命の長い加工を行うための加工法の1種として、トロコイド加工が挙げられる。トロコイド加工とは、円周軌道と直線運動を組み合わせた円弧状の軌跡で加工する方法で、狭い領域であっても工具の負荷を抑えながら、生産性の高い加工を行うことができると注目されている。

本加工法は、加工事例の紹介¹⁾や工具寿命評価^{2)・3)}といった取組はなされているものの、溝幅に対する工具径や切削条件の選定方法に関する情報は少ない。現場で適用するには、加工法の特徴を活かし、十分に効果を発揮するための条件設定に関わるノウハウの蓄積を必要とする。

そこで本研究では、トロコイド加工の条件設定の知見蓄積を目的として工具径や切削条件が切削力に与える影響を調査するとともに、工具摩耗試験を行うことで生産性向上の効果について検証を行った。

2 研究の方法

2.1 加工条件が工具負荷に与える影響

2.1.1 加工する溝幅の検討

溝形状を対象とするトロコイド加工において、溝幅に対する工具の選定方法を調査するため、溝幅と工具径の組み合わせによる加工実験を行った。加工機は5軸マシニングセンタ (DMG 森精機 DMF180) を用いて、図1に示すとおり被削材 (S50C) を切削抵抗測定装置 (日本キスラー 9265B) 上に固定して加工した。

工具は径10 mm、8 mm、6 mmの3種の超硬スクエアエンドミル (ミスミ TSC-HEM4R10, TSC-HEM4R8, TSC-HEM4R6) を用いた。加工時の工具経路を図2に示す。溝幅に対して工具径が大きくなると、円弧部の加工において1切込みの接触長さが大きくなり、予期せぬ振動が発生する恐れがある。一方、工具径が小さいと、剛性不足による工具破損の恐れがあるため、溝幅に対する工具径



図1 実験段取り

* 栃木県産業技術センター 機械電子技術部

の影響を調査する必要がある。そこで、加工円弧と工具中心軌跡の径の比を円弧比とし、円弧比が 0.25、0.33、0.50、0.67 となるように工具径ごとに 4 種類の溝幅を設定した。溝幅条件を表 1 に示す。

切削条件は側面切削のメーカー推奨条件と同値とし、軸方向切込みは工具径の 1.5 倍、半径方向切込みは工具径の 0.1 倍とした（表 2）。なお、円弧内側切削の場合、加工円弧の方が工具中心軌跡よりも経路が長くなることから、工具外径の送り速度は工具中心の送り速度よりも大きくなる。そのため、送り速度に円弧比を乗じ、工具外径の送り速度が表 2 の値となるよう補正を行った。以後、トロコイド加工において、送り速度は補正後の工具中心の値で表し、1 刃送り量は工具外径における値で表す。

2. 1. 2 切削条件の検討

生産性向上を目的として単位時間当たりの切りくず排出量を増加する際、1 刃送り量 f_z 、切削速度 V_c 、半径方向切込み a_e の各条件が切削力に与える影響を把握する必要がある。そこで各条件を基準からそれぞれ 0.6 倍、1.4 倍に変更し加工試験を行った。溝幅は 30 mm とし、基準条件は前項の工具径 10 mm、円弧比 0.67 の条件とした。各切削条件を表 3 に示す。なお、実験段取りは図 1 と同様とした。

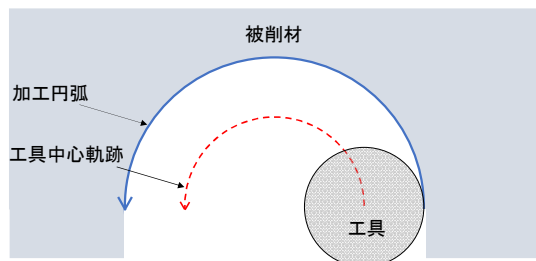


図2 被削材と工具の経路

表1 溝幅条件

工具径 D	10				8				6			
溝幅(加工円弧径) H	13.3	15	20	30	10.7	12	16	24	8	9	12	18
工具中心軌跡径 H-D	3.3	5	10	20	2.7	4	8	16	2	3	6	12
円弧比 (H-D)/H	0.25	0.33	0.50	0.67	0.25	0.33	0.50	0.67	0.25	0.33	0.50	0.67

表2 切削条件

工具径 [mm]	10	8	6
切削速度 V_c [m/min]	100	100	100
軸方向切込み a_p [mm]	15	12	9
半径方向切込み a_e [mm]	1.0	0.8	0.6
回転数 n [rpm]	3,200	4,000	5,300
送り速度 V_f [m/min] (補正前)	1,140	1,160	1,170
1 刃送り量 f_z [mm/tooth]	0.09	0.08	0.07

2. 2 工具摩耗試験

2. 2. 1 通常加工との比較

幅 30 mm、長さ 100 mm、深さ 15 mm の溝を加工形状として、トロコイド加工と通常加工での工具摩耗試験を行った。試験段取りは図 3 のとおりとし、摩耗試験用被削材で溝を 1 つ加工するごとに USB カメラで刃先を観察し、切削抵抗測定装置（日本キスラー 9265B）を用いて切削力を測定した。なお、溝は 1 条件につき 4 回加工した。

通常加工のパスは a_p 3 mm の溝加工を 2 回（溝両端）行った後、残りの 10 mm は a_e 4 mm 2 回と a_e 2 mm 1 回の肩削り加工により除去し、これを 1 セットとして深さ方向に 5 セット行うことにより、1 つの溝を加工した（図 4）。

表3 切削条件

	基準	f_z 0.6 倍	f_z 1.4 倍	V_c 0.6 倍	V_c 1.4 倍	a_e 0.6 倍	a_e 1.4 倍
切削速度 V_c [m/min]	100	100	100	60	140	100	100
軸方向切込み a_p [mm]	15	15	15	15	15	15	15
半径方向切込み a_e [mm]	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	0.6	1.4
回転数 n [rev/min]	3,200	3,200	3,200	1,920	4,480	3,200	3,200
送り速度 V_f [m/min]	760	456	1,064	456	1,064	760	760
1 刃送り量 f_z [mm/tooth]	0.09	0.05	0.12	0.09	0.09	0.09	0.09

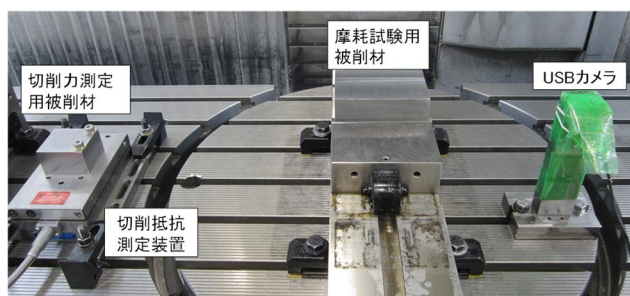


図3 工具摩耗試験段取り

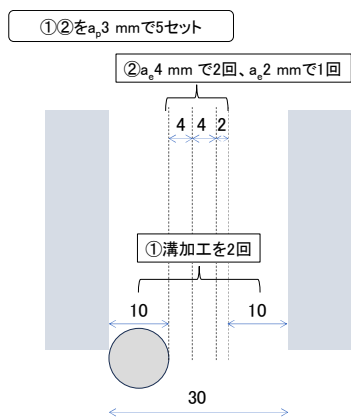


図4 通常加工のパス

各切削条件を表4に示す。トロコイド加工は基準条件とした。通常加工の条件は、単位時間当たりの切りくず排出量 $Q(a_p \times a_e \times V_f / 1000 \text{ cm}^3/\text{min})$ をトロコイド加工と等しくするため、送り速度を 380 mm/min (条件1) としたが、加工時の音が激しく、加工面の凹凸が著しかったため、送り速度を 190 mm/min (条件2) とした。また、切削力は、切削力測定用被削材を表5に示す切削条件で肩削り加工して測定し、主成分の1刃切込みごとの最大値の平均値を算出した。トロコイド加工と通常加工では

表4 工具摩耗試験切削条件

	トロコイド加工条件	通常加工条件	
		条件1	条件2
切削速度 V_c [m/min]	100	100	100
軸方向切込み a_p [mm]	15	3.0	3.0
半径方向切込み a_e [mm]	1.0	10	10
回転数 n [rev/min]	3,200	3,200	3,200
送り速度 V_f [m/min]	760	380	190
1刃送り量 f_z [mm/tooth]	0.09	0.03	0.02
単位時間当たりの切りくず排出量 Q [cm ³ /min]	11.4	11.4	5.7

表5 切削力測定時の切削条件

切削速度 V_c [m/min]	100
軸方向切込み a_p [mm]	トロコイド加工: 15 通常加工: 3.0
半径方向切込み a_e [mm]	1.0
回転数 n [rev/min]	3,200
送り速度 V_f [m/min]	1,140
1刃送り量 f_z [mm/tooth]	0.09

a_p が異なることから、結果は摩耗試験開始前の各値で徐し、変化率の比較を行った。

3 結果及び考察

3. 1 加工条件が工具負荷に与える影響

3. 1. 1 加工する溝幅の検討

トロコイド加工を1回行った際の切削力波形を図5に示す。なお、工具が円弧を描くため、XY平面上で主成分と送り成分の方向が変化していくことから、X方向及びY方向の切削力の合力を算出した。

工具径 10 mm、8 mm の円弧比が小さい条件において、波形が大きく変動する様子が見られた。この特徴について調査するため、周波数解析を行った。

切削力波形をFFT解析した結果の例を図6に示す。切削力変動が見られる工具径 10 mm、円弧比 0.33 の条件においては、2,000 Hz 付近に大きなピークが見られるため、切削力変動の原因であることが推察される。そこで、工具の刃が被削材と接触する周波数(強制振動周波数)より高い周波数を、切削力変動に伴う振動周波数と考え、周波数帯域により波形の分離を行った。

具体的には、工具回転数[rev/s]に刃数: 4 を乗じて強制振動周波数を算出し、[強制振動周波数 + 10 Hz] よりも高い周波数成分のみを抜き出して逆FFT処理することで波形を求めた(図7)。得られた波形データから、1刃切込みごとに振幅(最大値-最小値)を求め、それらの最大値: A_{max} を算出した(図8)。

図6及び図7から、切削力変動を強制振動周波数以上で分離できることが分かる。加えて、図8においては、図5の切削力波形で変動が見られた条件(工具径 10 mm、8 mm における円弧比 0.25 及び 0.33) において値が高いため、 A_{max} により切削力の変動の大きさを比較できると考えられる。

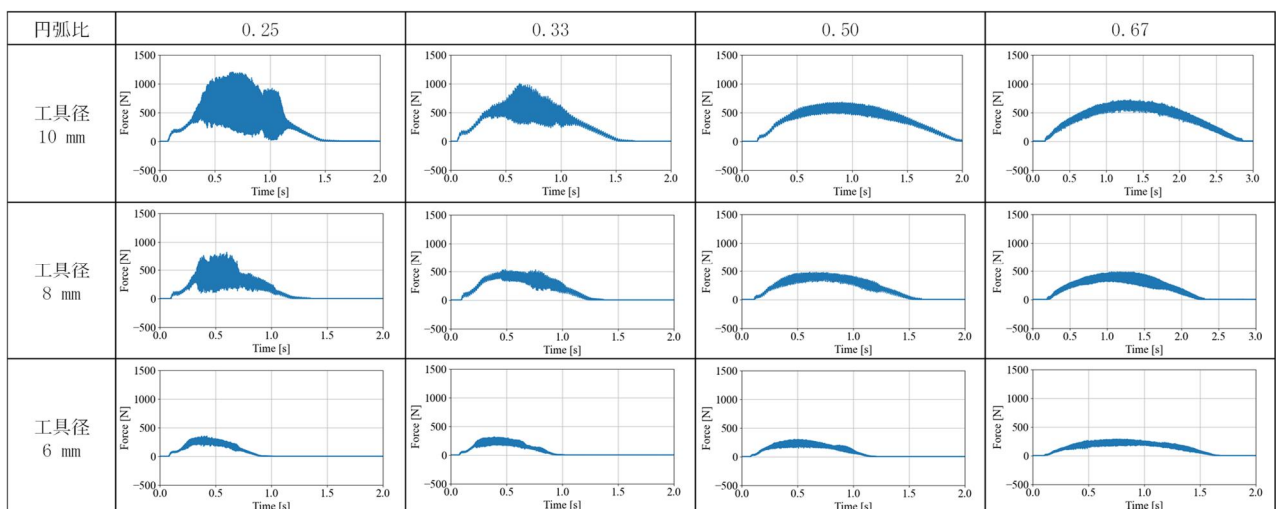
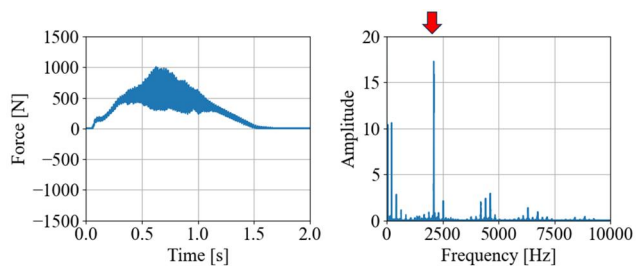
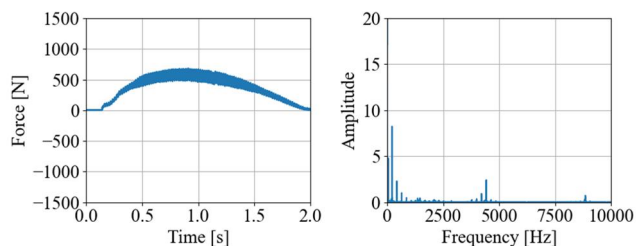


図5 切削力波形

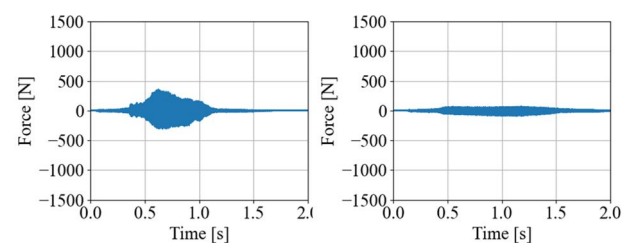


(a) 工具径10 mm、円弧比0.33



(b) 工具径10 mm、円弧比0.5

図6 生波形とFFT結果



(a) 工具径10 mm、
円弧比0.33

(b) 工具径10 mm、
円弧比0.5

図7 強制振動周波数以上の周波数を逆FFTした波形

切削力の変動は工具に負荷を与え、工具寿命に影響を及ぼすことが危惧されることから、この値が高くない範囲で条件設定を行うことが望ましい。本実験においては、工具径が8 mm よりも大きい場合、円弧比が0.5以上となるように工具径を選定することにより、加工時の切削力変動が少なく加工できると考えられる。

3. 1. 2 切削条件の検討

評価パラメータとして、切削力変動を評価する $A_{\max}$ に加え、変動を除いた円弧上の切削力の最大値を評価するため、強制振動周波数以下の周波数を逆FFTした波形における1刃切込みごとの平均値の最大値： $M_{\max}$ を算出した。

解析した結果を図9に示す。 $M_{\max}$ は f_z 、 V_c 、 a_e の各パラメータの増減に伴って増減したが、変化量は a_e 、 f_z 、 V_c の順に大きく、 V_c はほぼ一定であった。このことから、切削力をできるだけ増加させずに効率を上げるには、 V_c の増加が最も有効であることが分かる。

次に、 $A_{\max}$ は、 a_e の増加に伴い大きく値が増加した。また、 f_z を増減すると値は微小に増減するもののほぼ一定であり、 V_c を増減すると値はどちらもやや減

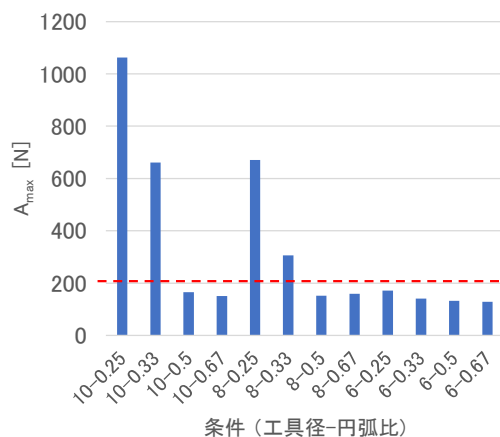
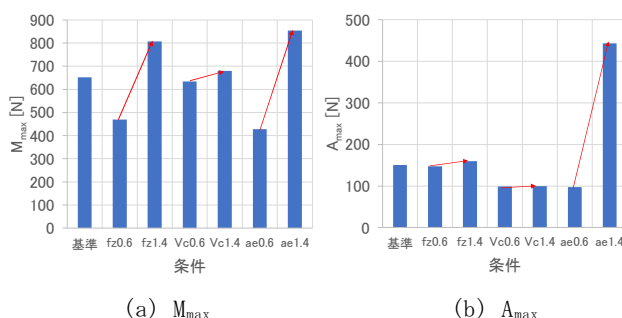


図8 1刃切込みごとの波形の振幅の最大値($A_{\max}$)



(a) $M_{\max}$

(b) $A_{\max}$

図9 パラメータ算出結果

少しした。このことから、 a_e を増加すると切削力の変動が生じやすく、 f_z や V_c は a_e と比較して変化が少ないことが分かる。

以上のことから、切削力が低くその変動が小さい条件で効率を上げるには、① V_c 、② f_z 、③ a_e の優先度で増加を検討することが有効であると考えられる。

3. 2 工具摩耗試験

3. 2. 1 通常加工との比較

溝加工数の増加に伴う切削力の推移を図10、4溝加工終了後の工具刃先画像を図11に示す。トロコイド加工の切削力は、2加工目までは微増でその後横ばいなのに対し、通常加工は加工数が増えるにつれて大きく増加しており、工具が摩耗していることが推察される。加えて、工具刃先写真では通常加工は大きく摩耗する一方、トロコイド加工は殆ど摩耗が進行していないことが分かる。

なお、加工に要する時間は、通常加工の19分に対して、トロコイド加工は6分40秒とトロコイド加工の方が高効率であった。

3. 2. 2 切削条件間の比較

溝加工数の増加に伴う切削力の推移を図12、4溝加工終了後の工具刃先画像を図13に示す。本実験での加工量においては、切削力の顕著な差は見られなかった。こ

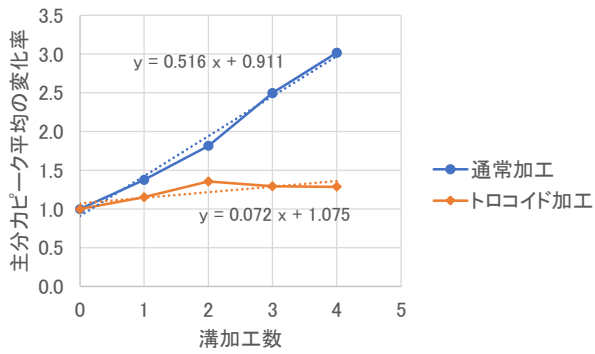


図 10 切削力の推移（通常加工との比較）

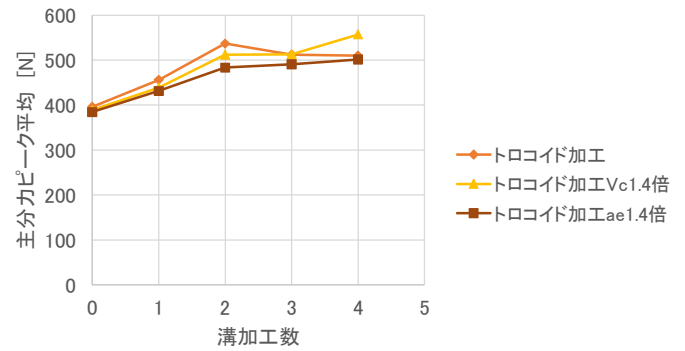


図 12 切削力の推移（トロコイド加工間の比較）

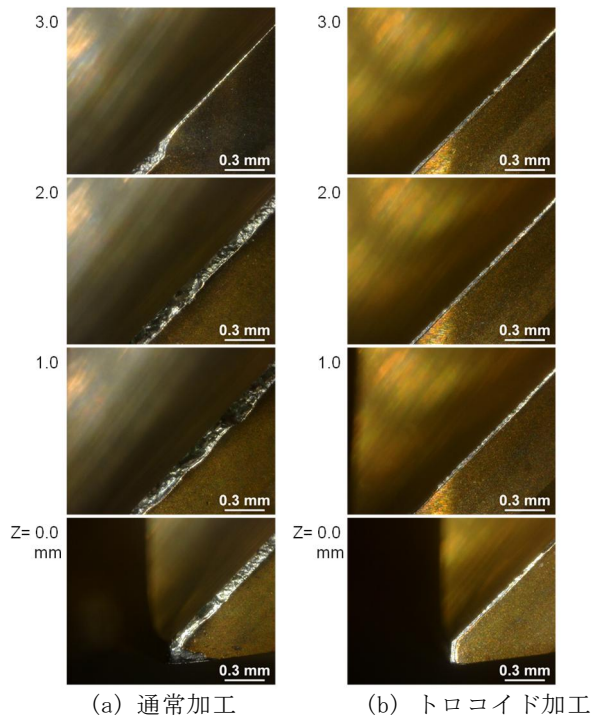


図11 工具刃先画像（通常加工との比較）

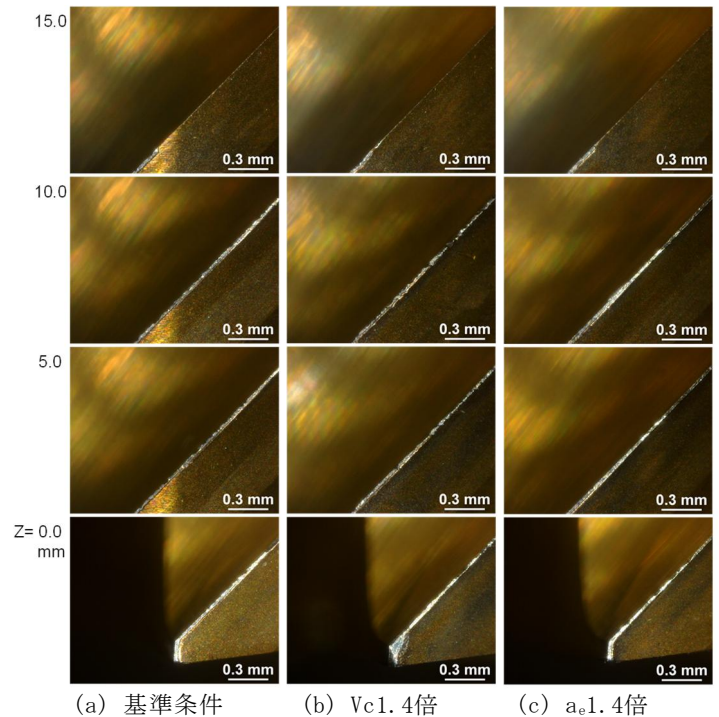


図13 工具刃先画像（トロコイド加工間の比較）

れは、工具の推奨条件を基準条件としていたが、推奨条件は工具が耐えられる負荷から余裕を持って設定され、単位時間当たりの切削除去量を 1.4 倍にしても工具損傷を受ける負荷に達しなかったためと推察される。工具刃先画像における摩耗の様子も基準条件と同程度であることから、切削速度や径方向切込みが更に大きい条件でも高効率な加工を実現できる可能性がある。

4 おわりに

本研究では、トロコイド加工の条件設定の知見蓄積を目的に、トロコイド加工時の切削力測定や工具摩耗試験を実施し、以下の知見を得た。

- (1) 溝幅に対して工具径が大きいと、切削力変動が生じて工具寿命の低下に繋がるおそれがあるため、工具径が 8 mm よりも大きい場合、円弧比 0.5 以上を目安として工具径を選定することが望ましい。

- (2) 加工効率を上げる際は、1 刃送り量 f_z 、切削速度 V_c 、半径方向切込み a_e のうち f_z や V_c を優先的に増加させることで、切削力変動の増加を抑制することが期待できる。
- (3) トロコイド加工は通常加工より工具寿命が長く、単位時間当たりの加工効率が良いことから、生産性の高い加工が可能となる。

参考文献

- 1) 田中 洋光：“電気製鋼”，74 巻 2 号，121-124，(2003)
- 2) 國枝 泰博ほか：“精密工学会学術講演会講演論文集”，46-47，(2019)
- 3) 大塚 裕俊ほか：“精密工学会学術講演会講演論文集”，365-366，(2004)

経常研究

サステナブルな素材を用いたトーションレースの編成性評価と 試作品の開発

島田 千花子* 堀江 昭次*

Assessment of the Manufacturability of Torchon Lace Using Sustainable Materials and the Development of Prototype Products

SHIMADA Chikako and HORIE Shouji

環境に配慮したトーションレース製品の開発に向け、サステナブルな素材を用いたトーションレースの編成条件を検討した。各素材に応じ、必要な合撚糸等の前処理を行い、編成条件とレースの編成性評価の関係について検討した。その結果、ポリ乳酸等の天然由来素材と綿を主体としたリサイクル素材は、編成条件を適切に組み合わせることで良好な編成性を得ることができたが、紙糸やポリエステルを主体としたリサイクル素材は編成が困難であった。また、編成したレースを使用して見本帳及び服飾小物への応用に向けた試作品の作製を行った。

Key words: トーションレース、サステナブル、試作、見本帳

1 はじめに

主に服飾付属レースとして用いられているトーションレースは、足利市の地場産業の一つであるが、海外生産による受注減、製品の低価格化、原材料の高騰など厳しい状況にあり、付加価値の高い製品が求められる。

こうした中、繊維業界では、サステナビリティに対する関心が高まっており、トーションレース業界においても、環境へ配慮した製品の展開が必要不可欠となっている。各社の製品ラインナップを見ると、オーガニックコットン等のサステナブルな素材を使用し、製品展開を行う企業も見受けられる。そのため、今後は服飾付属レースとしてだけでなく、環境に配慮した素材による製品開発が重要となる。

そこで本研究では、環境に配慮したトーションレース製品の開発に向け、現在、トーションレースの素材としてあまり用いられていないポリ乳酸繊維糸やリサイクル糸等のサステナブルな素材を使用し、トーションレースの試作と編成性評価を行った。具体的には、典型的なトーションレース組織を編成し、各素材の編成性の比較及び編成条件の検討を行った。さらに、服飾小物等への応用について検討するため、当該素材で編成した生地を用いた試作を行った。

2 研究の方法

2. 1 素材の選定

サステナブルな素材として、生分解性を有していること、再生可能な資源であること等を基準に選定した。

2. 2 組織及び編成条件の検討

初めに、各糸の基礎的な特性を確認するため、2. 1 で選定した糸素材について、次の物性試験を行った。

- ・単糸引張強さ及び伸び率 JIS L 1095 : JIS 法
(試験回数を 30 回に変更)
- ・より数 JIS L 1095 : JIS 法
(試験回数を 20 回に変更)
- ・織度 見かけテックス及び番手 JIS L 1095
(糸長 2 m あたりの質量に変更)

次に、編成性評価のための編成試験を行った。ただし、物性試験によりそのままでは編成が難しい糸については、合糸機（株式会社山田鉄工所製、YMD 型 4 本取り）を用いた合糸、イタリー式撚糸機（津田駒工業株式会社製、TF）を用いた撚糸、常圧スチーマー（株式会社島精機製作所製、SSB0708）を用いた撚り止めの前処理を行った。組織については、基本的な組織であるトーショングラウンド（バイアス糸のみで構成される、編み下がりしやすい組織）とリールグラウンド（芯糸とバイアス糸で構成される、編み下がりしにくく、一般に編成性に優れるとされる組織）の 2 種類とした。その他の編成条件については、通常、使われることが多い綿素材の編成条件で編成

* 栃木県産業技術センター繊維技術支援センター

したレースと比較するため、張力用スプリングはバイアス糸、芯糸ともに 80 g とした。また、編み下がりに大きく影響を及ぼすことが想定される巻取速度は、編み下がりしやすいトーショングラウンドでは、1.0、0.8、0.6 (mm/rev) の順に 3 パターン、編み下がりしにくいリールグラウンドでは、1.0、0.5 (mm/rev) の順に 2 パターンで編成を行った。編成には、トーションレース機（日本マイヤー株式会社製、SMK96/45NC）を使用した。

2. 3 生地見本帳と試作品の作製

2. 2 で編成したレース生地を用いて、編成条件によるレースの仕上がりの違いを確認できる見本帳を作製した。併せて、服飾小物等への応用に向けた試作品の作製を行った。

3 結果及び考察

3. 1 素材の選定

サステナブルな素材として、市場で入手しやすい天然由来素材 3 種・リサイクル素材 3 種の合計 6 種類の糸を選定した。

〔天然由来素材〕

- ・ポリ乳酸 (PLA) 紡績糸 (PLA100%、単糸) (ハイケム株式会社製) …糸①
- ・PLA 混紡糸 (PLA30%・綿 70%、単糸) (ハイケム株式会社製) …糸②
- ・紙糸 (紙 100%、三子糸) (株式会社長谷川商店製) …糸③

〔リサイクル素材〕

- ・廃棄衣料由来の色分別再生糸 (廃棄衣料 30%・綿 70%、双糸) (兵庫県立工業技術センター繊維工業技術支援センター提供) …糸④
- ・廃棄衣料由来の色分別再生糸 (廃棄衣料 50%・綿 50%、双糸) (兵庫県立工業技術センター繊維工業技術支援センター提供) …糸⑤
- ・廃棄衣料由来の再生糸 (廃棄衣料 50%・ポリエステル 50%、単糸) (兵庫県立工業技術センター繊維工業技術支援センター提供) …糸⑥

3. 2 組織・編成条件と編成性の評価

3. 1 で選定した 6 種類の糸素材について、物性試験 (単糸引張強さ及び伸び率、より数、織度) を行った。測定結果を表 1 に示す。

次に、編成条件の検討について、糸①と②については、表 1 から、他の糸と比べて引張強度の値が低く、編成時の糸切れが予見された。そのため、比較用の綿糸 (20 番三子糸) と同一の太さにするために前処理を行った。具体的には、20 番単糸の状態である糸①、②それ

表 1 物性値

糸	見かけ織度 (tex)	撚り数 (T/m)		引張強度 (N)	伸度 (%)
		下	上		
①	29.5	626.0		3	22.4
②	29.0	544.0		6	7.5
③	257.5	-	37.9	14	3.6
④	45.0	-	317.7	14	7.4
⑤	49.5	-	316.6	11	6.5
⑥	83.0	374.0		11	23.3

-: 未測定

ぞれについて合糸機を用いて 3 本合糸した後、イタリア式撚糸機で①、②共にギヤ比 313 T/m の設定で撚糸を行った (実測 ①305.6 T/m、②327.7 T/m)。また、撚り止めは、通常 100℃30 分程度とするところ、PLA の特性を勘案し、80℃20 分の条件とした。

次に、編成については、素材による編み下がり の状況を分かりやすくするために、各素材間に抜き糸を入れ、区切りをつけながら 1 枚のレースとして同時に行った。その結果、糸①、②ともトーショングラウンドでは、巻取り速度 1.0 mm/rev では編成が可能であったが、0.8 mm/rev ではやや編み下がりが発生し、0.6 mm/rev では完全に編み下がりが発生した。リールグラウンドでは、巻取り速度 1.0 mm/rev、0.5 mm/rev 共に問題無く編成することが出来た (図 1)。

なお、編み下がりが発生し、編成性が△または×の場合であってもレースの編成は多少可能であったが、編成を続けていくと編み下がりによる糸同士の絡まりが発生し、編成困難となった。

3 本合糸した糸①、②に関しては、本試験条件下では差が見られず、通常製品として使用されることの多い 20 番三子の綿糸と同一の編成性であることが示された。

次に、糸③については、引張強度の値が高かったため、前処理 (合撚糸) は行わずに準備を進めたが、編成準備工程 (スピンドルへの糸通しやボビンから糸を引き出す際等) で多数の糸切れが起こった。糸切れの原因は糸③の紙糸独自の形状によるものと考え、糸を円状にするため、追撚又はカバーリング (芯となる糸に別の糸を巻き付け、芯糸をカバーする) の処理を行った。追撚は、上よりに対してギヤ比 110 T/m の設定で行った (実測 176.9 T/m)。また、カバーリングは、ダブルカバーリングマシン (片岡機械工業株式会社製、PF-D230) を用いて、糸③を芯糸に、カバー糸を水溶性ビニロン糸とし、606 T/m でシングルカバーを行った。

その結果、追撚した糸③は、編成準備工程での糸の引っかけや糸切れが解消した。しかし、実際に編成を

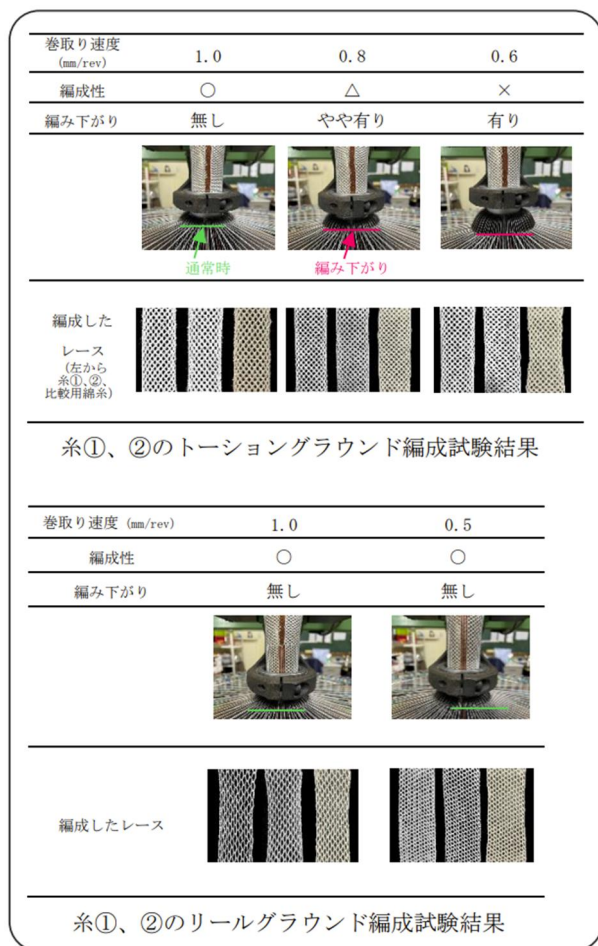


図1 糸①、②の編成試験結果

始めると、糸同士の絡まりが発生し編成が出来なかった(図2)。一方、カバーリングした糸については、編成準備工程での糸切れや、編成時にスピンドルから引き出された糸が元に戻らない状態(図3)が発生したことから、本実験条件では編成することが出来なかった。実験中の糸の状況から考察すると、糸③は通常の糸に比べ糸の形状が平面的であり、硬さがあることから、柔軟性の欠如によるものと考えられる。

糸④及び⑤についても、糸③と同様の理由により前処理は実施せず編成を行った。編成時は、糸①、②で試験を行った時と同様、素材による編み下がり状況を分かりやすくするため、抜き糸を入れて2種類の素材を区切り、同時に編成を行った。

その結果、トーショングラウンドでは、巻取り速度 1.0 mm/rev では編成が可能であったが、0.8 mm/rev では糸④、⑤共に編み下がりが発生した。また、レース巻取り時に糸⑤の耳部の糸切れが発生した。物性値の測定結果から、糸⑤は糸④より廃棄衣料の割合が多く引張強度が弱かったため、多数の糸切れが発生したと考えられる(図4)。リールグラウンドでは、糸④、⑤共に巻取り速度 1.0 mm/rev、0.5 mm/rev の両条件で編成することが

可能であった。

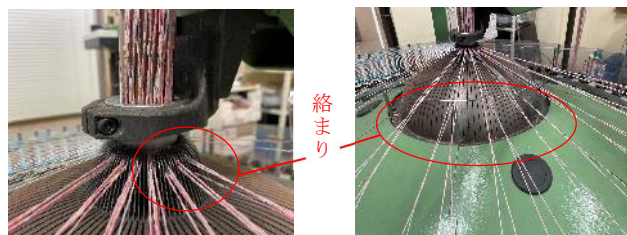


図2 追撚した紙糸の編成試験の様子

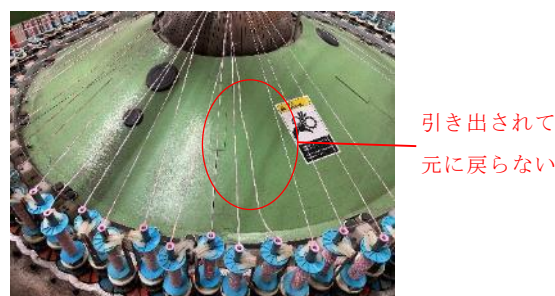


図3 カバーリングした紙糸の編成試験の様子

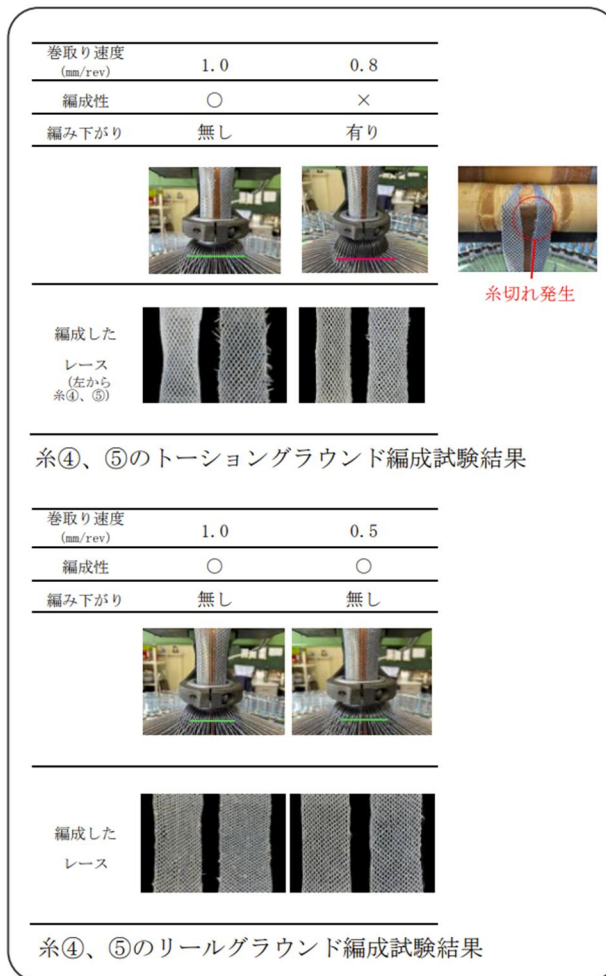


図4 糸④、⑤の編成試験結果

糸⑥についても、糸③と同様に前処理は実施せず編成を行ったところ、編成準備工程でスピンドルに糸通しを

行う際、数本糸切れが発生した。糸切れの様子から、全体的な糸の強度の問題では無く、ランダムな切れ方であったため続けて編成を行ったところ、トーショングラウンド、リールグラウンド共に多数の糸切れが発生した。さらに、糸④、⑤と比べて編み下がりしやすいことが明らかになった。また、糸の毛羽立ちが発生し、交差する糸同士の絡まりも頻発した(図5)。そこで、糸⑥について、前処理として合糸、撚糸、撚り止めを行った。具体的には、糸の強度を高めるために糸⑥を3本に合糸した後、ギヤ比 313 T/m の設定で撚りをかけ(実測 277.2 T/m)、100℃30 分の条件で撚り止めを行った。その結果、糸切れの発生が抑えられた。しかし、糸の絡まりは処理前同様に発生し、編成することは困難であった(図6)。

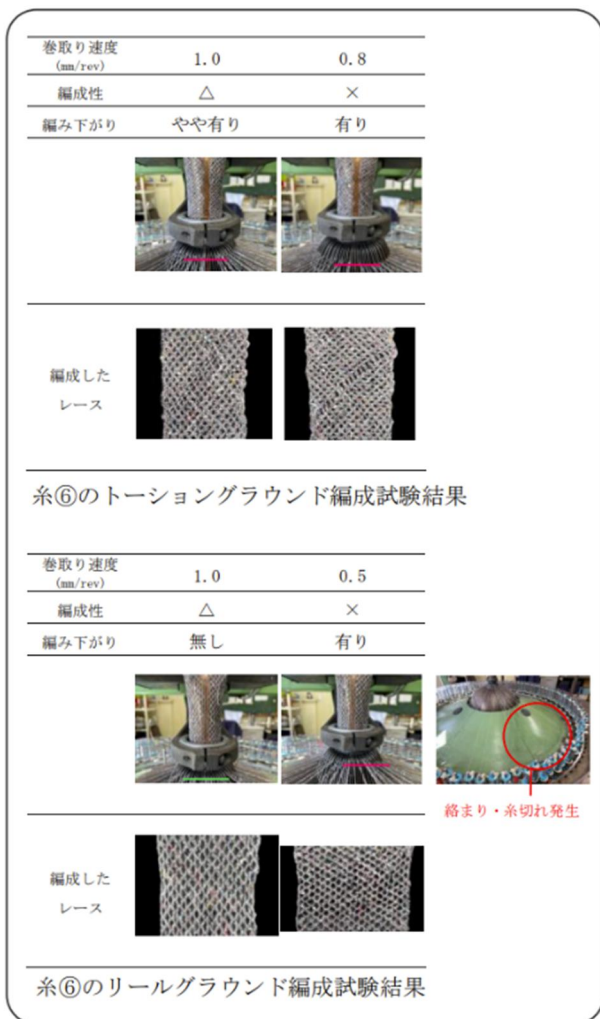
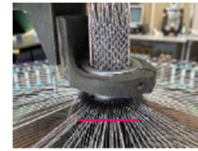


図5 糸⑥の編成試験結果

糸⑥に関しては、糸の太さムラが大きく、平均的な綿糸よりも強度が低いことが、²⁾ランダムに糸切れが発生した要因と考えられる。また、糸同士の絡まりについても、毛羽が長いこと²⁾が一因として考えられる。今回は、糸⑥を3本で合糸し、撚りを加えても糸同士の絡まりを

抑えることは出来なかった。ボビンから巻取り部にかけの糸絡まりの抑制に向けては、糸をストロー等のチューブ状のものに通す等の工夫が必要と考えられる。

巻取り速度 (mm/rev)	1.0
編成性	×
編み下がり	有り



絡まり発生

 編成した
レース

 図6 合撚糸した糸⑥の編成試験結果
(組織：リールグラウンド)

廃棄衣料由来の糸に関して、糸④、⑤については、各糸の廃棄衣料の割合による糸の強度差が、編成時の糸切れ等に影響を及ぼしたと考えられる。また、糸⑥については、ポリエステル等との混紡による糸の太さムラや毛羽の長さが、編成時の糸同士の絡まりを発生させることが考えられるため、毛羽立ちを抑える工夫が必要であることが明らかになった。

3. 3 生地見本帳と試作品の作製

3. 2で編成したレース生地を用い、編成条件によるレースの仕上がりの違いを確認するための見本帳を作製した(図7)。併せて、編成性が良好であった糸①及び②を用いて、試作品を2点作製した(図8)。柄は、当センターが保有しているデザイン資料から図案の調整を行ったものを使用した。なお、トーショНРレースを生地として使用する際に、裁断した生地端のほつれやバイアス方向の伸びを抑制し、製品の強度を高めるため、裁断前に伸び止めテープを用いてからパイピング仕上げを行った。試作した2点は次の通り。

①ネクタイ風首飾り(糸①を使用)

素朴でありながらもクラシカルな魅力を持つトーショНРレースと、シルク調サテンの光沢により、顔周りを明るく華やかに演出するアイテムとして、大柄を活かしたネクタイ風首飾りを作製した。首後ろのチェーンでサイズ調節が可能であるため、幅広いコーディネートが可能である。

②レースネクタイ(後染めした糸②を使用)

手持ちのネクタイに重ねて装着することが出来るレースネクタイを作製した。レースの透け感を活かし、手持ちのネクタイの雰囲気を変えることが可能である。

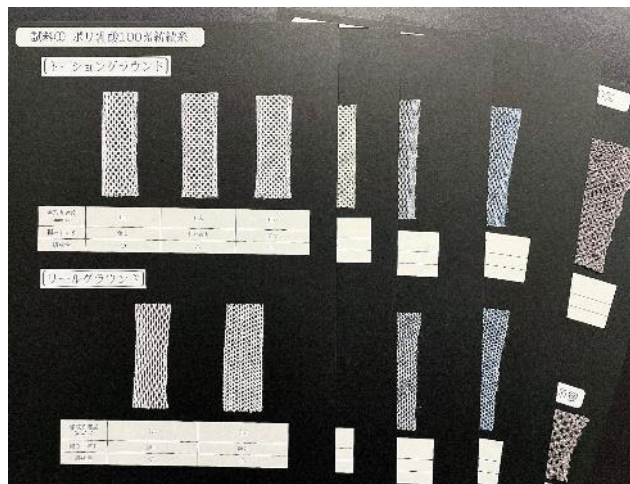


図7 生地見本帳



①ネクタイ風首飾り

②レースネクタイ

図8 試作品(2点)

4 おわりに

本研究では、環境に配慮したトーションレース製品の開発に向け、6種類のサステナブルな素材を用いたトーションレースの編成性評価と試作品の作製を行った。

その結果、ポリ乳酸等の天然由来素材と綿を主体としたリサイクル素材は、編成条件を適切に組み合わせることで良好な編成性を得ることができたが、紙糸やポリエステルを主体としたリサイクル素材は編成が困難であった。また、当該素材を用いて、服飾小物への応用に向けた試作を行った。

謝 辞

本研究を実施するにあたり、PLA 紡績糸の提供及び当該繊維の取扱いについてのご指導をいただきましたハイケム株式会社貿易本部営業支援室 橋本隆司氏、廃棄衣料由来の再生糸の提供及び取扱いのご指導をいただきました兵庫県立工業技術センター繊維工業技術支援センター 東山幸央氏に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 松島四郎：『トーションレース工業Ⅱ』，トーションレース工業技術図書刊行会版，(1959)
- 2) 東山幸央ら：『兵庫県立工業技術センター繊維工業技術支援センター 研究報告』，第56号，1-4，(2024)

経常研究

縫製条件による縫い目滑脱の抑制効果の検証

石田 莉菜* 飯沼 友英*

Verification of the suppression effect of sewing conditions in seam slippage
ISHIDA Rina and IINUMA Tomohide

本研究では、各縫製条件の衣類の縫い目滑脱抑制効果を明らかにすることを目的とし、4種類の生地と3種類の縫糸、柔軟剤処理の有無を組み合わせ、JIS L1096 滑脱抵抗力試験を実施した。生地の組織の違いによってたて方向、よこ方向のどちらに滑脱しやすいかに差が生じ、目の粗い生地、滑りやすい素材や薄い生地ではより滑脱しやすい傾向があった。縫糸では、ポリエステルフィラメント糸が最も滑脱しやすく、ポリエステルスパン糸や綿糸の方が滑脱しにくい傾向を示した。一方、柔軟剤の使用は、メーカー指定濃度においては滑脱しやすさへの影響はほとんど確認されなかった。以上より、生地と縫糸の摩擦力を高める組み合わせが縫い目滑脱の抑制に有効であることが示唆された。

Key words: 滑脱抵抗力、生地、縫糸、摩擦力、柔軟剤

1 はじめに

衣類に発生するクレームのうち、縫い目滑脱は縫い目部分に力が加わった際に縫い目付近の糸がスリップする現象である。特に薄地や密度の粗い生地は滑脱しやすい傾向にあり、縫製の現場では問題となる。

一般的な縫い目滑脱の低減方法としては、生地端部分のロックミシン処理、滑脱防止テープの使用、縫い代の長さを増やすなどの対策が行われている。一方、これらの対策をとれない生地や仕様の製品の他、近年では販売後に消費者が使用する芳香を付与した柔軟剤による縫い目滑脱の影響への懸念があり、縫い目滑脱への対策は重要となっている。

そこで、本研究では縫製の部分に着目し、縫い目滑脱の抑制を目的として、生地の種類や使用する糸、柔軟剤使用の有無といった各要素をパラメーターとして、JIS L1096 滑脱抵抗力―縫い目滑脱法等により試験を実施、評価検討を行い、縫製条件による縫い目滑脱の抑制効果について検証する。

2 研究の方法

2.1 対象とする生地や縫糸等の検討

生地は、素材および織り方（組織）の異なる、麻平織（麻 100%、平織）、E/C ツイル（ポリエステル 65%/綿 35%、ツイル/綾織）、ナイロンタフタ（ナイロン 100%、タフタ/平織）、エステルサテン（ポリエステル 100%、

サテン/朱子織）の4種を選択した。（図1）

縫糸は、素材が異なる綿糸とポリエステル糸、そのうち、ポリエステル糸についてはフィラメント（長繊維）糸とスパン（短繊維）糸の計3種を選択した。番手はすべて JIS L1096 の条件と同じく 50 番手の糸とした。



図1 選択した4種の生地（拡大）

2.2 試料作製

2.2.1 試験片作製

JIS L1096 滑脱抵抗力 B法に基づき、試料は、約 100 mm×約 170 mm の試験片を、各生地のたて方向、よこ方向それぞれ3点ずつ採取した。採取した試験片を生地の表を内側にして半分に折って折り目で切断し、切断端から 10 mm のところを職業用ミシン（Brother、Nouvelle 270）、各縫糸で縫い合わせて試験片とした。（図2）なお、ミシン針は今回使用した生地に合わせて 10 番（オルガン針製）を用いた。

2.2.2 柔軟剤処理

柔軟剤は、近年市場でのニーズが高まっている強い香り成分の付与を謳った市販製品を用いた。処理液は、試験片に対して浴比 1:20 となるよう蒸留水を秤量し、メ

* 栃木県産業技術センター 繊維技術支援センター

メーカー指定の濃度である試験片 1 g に対して $6.7 \mu\text{L}$ の割合で秤量した柔軟剤をこれに添加し、よくかき混ぜて十分に溶解した。そして、試験片を処理液に浸し、ガラス棒でときどき突きながら 3 分間浸漬した後、試験片を取り出し家庭用洗濯機で 1 分間脱水処理を行った。脱水した試験片は 45°C の恒温槽で完全に乾燥するまで静置した。また、対照群として、柔軟剤を添加せず、蒸留水で同様の処理を行った。

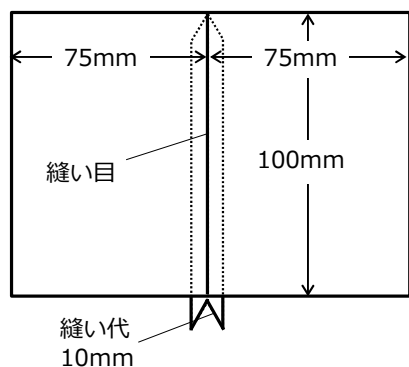


図2 作製した試験片

2. 3 滑脱抵抗力の測定

乾燥した試験片を万能引張試験機（インストロン、5569 Standard）を用いて、図3のとおり、グラブ法によりつかみ間隔 76.2 mm、引張速度 300 mm/min で、100 N の荷重を与えた後、試験片をつかみから取り外し、1 時間静置した。

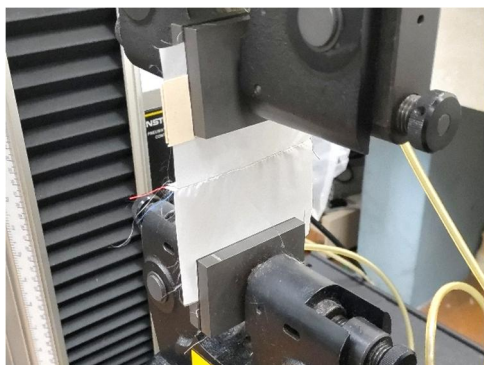


図3 引張試験の様子

その後、図4のとおり、縫い目付近のたるみが消える程度の約 1 kg の荷重を縫い目に直角方向に加え、縫い目の滑りの最大孔の大きさをものさしで測定し（図5）、3 点の試料の平均値を滑脱抵抗とした。

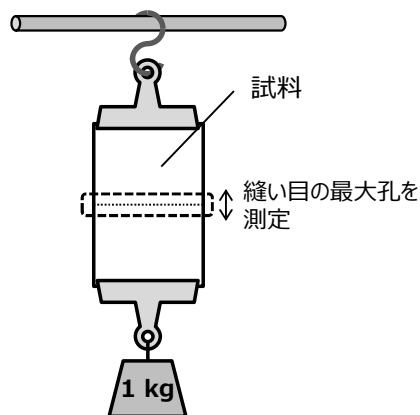


図4 縫い目の滑りの最大孔測定

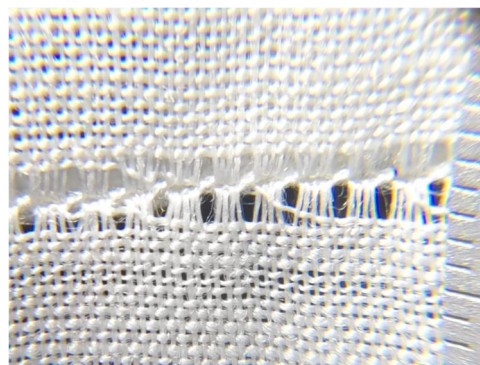


図5 滑脱した試料（拡大）

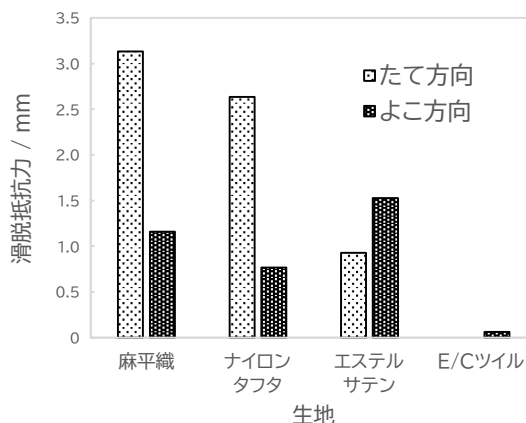


図6 生地ごとの滑脱抵抗

表 1 滑脱抵抗力試験結果

(mm)	縫糸	生地 柔軟剤	麻平織		ナイロンタフタ		エステルサテン		E/C ツイル	
			有	無	有	無	有	無	有	無
スパン	たて		2.9	3.0	2.7	2.3	1.2	1.2	-*	-
	よこ		1.2	1.1	0.7	0.8	2.0	2.1	-	-
フィラメント	たて		3.8	3.2	2.9	2.4	1.4	1.7	-	-
	よこ		1.4	1.2	0.8	0.7	2.0	2.1	-	-
綿	たて		2.8	3.0	2.9	2.7	-	-	-	-
	よこ		0.9	1.1	0.7	0.9	0.6	0.3	0.4	-
平均			2.2	2.1	1.8	1.6	1.2	1.2	0.1	0

※「-」は滑脱が確認されなかった試料。

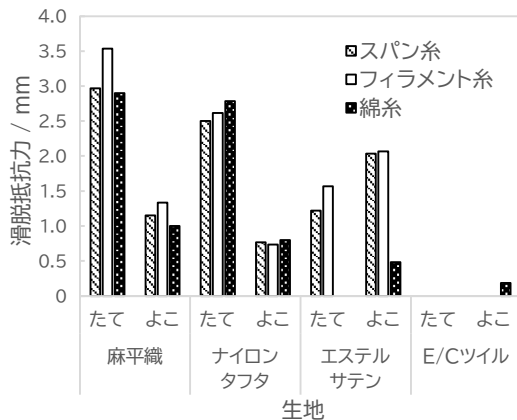


図 7 縫糸ごとの滑脱抵抗力

生地による違いについて、厚くしっかりと織られた生地の方が大きな滑脱が起きにくく、E/C ツイルでは滑脱がほぼ起きなかった。

縫糸別の滑脱抵抗力を図 7 に示す。図 7 のとおり、縫糸による違いを比較すると、フィラメント糸で縫った試料で滑りが大きい傾向が見られた。同じポリエステル素材の縫糸だが、スパン糸とは滑脱の大きさに差が見られた。エステルサテンは綿糸で滑脱が発生しにくい傾向が見られ、生地と縫糸の組み合わせによっても大きな違いが見られた。

一方で、表 1 によると、柔軟剤処理の有無による大きな差は見られなかった。

本研究で縫い目滑脱が起きやすかったのは、粗く織られた（糸の間に隙間の多い）麻平織と、密に織られているが、織糸そのものが非常に細く滑りやすいフィラメント糸であるナイロンタフタであった。また、これらの平織の生地は、よこ方向に比べてたて方向への荷重でより大きい滑脱が発生した。

一方、朱子織のエステルサテンは、たて方向よりもよこ方向への滑脱が起きやすい傾向にあり、経糸の浮きが多いといった織組織の違いによっても、滑脱の傾向が変わると考えられる。

縫糸の種類で比較すると、天然繊維の綿糸よりも化学

繊維のポリエステル糸の方が大きく滑脱を起こしやすい傾向にあり、さらに、スパン糸よりもフィラメント糸の方が大きく滑脱する傾向があった。素材表面に凹凸が多く毛羽がある綿糸よりも、毛羽を有するが素材表面は滑らかなスパン糸、さらに毛羽もないフィラメント糸は生地との間の摩擦力が低いために滑脱が起きやすいと考えられる。

一方で、柔軟剤の有無による滑脱の発生しやすさは、メーカー指定の濃度での使用においては顕著な差は見られなかった。

以上のことから、生地は厚い生地や滑りにくい綿・ポリエステル混紡の生地、縫糸は綿、あるいはポリエステルであってもフィラメント糸ではなくスパン糸を選択するなど、摩擦力が高い組み合わせにすると、滑脱を抑制できると考えられる。

今回は限られた試料数での試験により、生地の用途別に複数の要素が組み合わされた 4 種の試料を選択した。そのため、今後、織り糸の素材や織度、また織密度や組織など、各要素に分けたさらなる検証が必要だと考えられる。

4 おわりに

JIS L1096 に定められた滑脱抵抗力試験により、生地の種類や縫糸、柔軟剤加工の有無による滑脱抵抗力の検証を行い、縫製条件による縫い目滑脱の抑制効果について次の知見を得た。

- (1) 粗い生地や滑りやすい素材でできた薄い生地は滑脱しやすく、組織によりたて・よこ方向のどちらに滑脱が起きやすいかが異なる。
- (2) 縫い糸は、ポリエステル糸よりも綿糸、フィラメント糸よりもスパン糸といった、生地との間の摩擦力が高い縫糸は滑脱が起きにくい。
- (3) 厚い生地や滑りにくい綿・ポリエステル混紡の生地、縫糸は綿や、ポリエステルであってもフィラメント糸ではなくスパン糸を選択するなど、摩擦力が高い組み合わせで滑脱を抑制できると考えられる。

経常研究

結城紬の糊付け材料及び条件の検討

吉葉 光雄* 太田 仁美* 赤羽 輝夫*

Study of Starching Materials and Application Conditions of Yuki Tsumugi Thread
YOSHIBA Mitsuo, OTA Hitomi, and AKABA Teruo

結城紬の生産工程である下拵え（準備工程）の中でも、糊付けはその後の下拵え工程や製織の作業性に大きく影響する重要な工程である。産地では糊付けに特定的小麦粉を使用してきたが、近年では近隣商店の閉鎖等により入手が困難になっているため、代替小麦粉を見出す必要性がある。

そこで本研究では、容易に入手できる市販小麦粉について、糊付け作業性や引張強さ等の特性を調べ、代替となる小麦粉の選定及び使用条件の検討を行った。その結果、おおむね従来品に遜色なく、代替可能な小麦粉とその最適な糊付け条件を明らかにすることができた。

Key words: 結城紬、糊付け、小麦粉、引張強さ、製織性

1 はじめに

結城紬は栃木県、茨城県で生産される絹織物であり、現在でも県内の結城紬生産者（織元）は、手つむぎ糸を素材に地機を使用して、全工程を手作業で生産している。手つむぎ糸は強度が弱く、また毛羽立ちやすいことから、準備工程から糊付けにより糸の補強・毛羽伏せを行うことで作業性を向上させることが必須となっている。県内の多くの織元は、㈱ニッポン製の「たけ」を使用している。しかし近年では、産地での販売店の減少により入手が困難な傾向にあり、代替可能な糊付け材料が求められている。

このため本研究では、糊付け材料として市場での入手が容易な市販小麦粉を選定し、糊付け作業性と最適な糊付け条件について検討した。

2 研究の方法

2. 1 代替可能な小麦粉銘柄の選定

本研究では、小山市周辺の小売店で入手可能であり、これまで糊付けに使用されていない小麦粉（中力粉）を3種類（表1）選定し検討を行った。

各小麦粉のふるいの平均通過率は直径16 cm、約27メッシュのふるいを用い、小麦粉約10 gを小麦粉が落ちなくなるまで振とうした後、「5回木片でふるいを軽く叩く～振とう」の作業を4回実施し、ふるいを通過した量の重量比率の3回平均値をもって求めた。

手つむぎ糸への糊付けは、太さ約150D^{※1}の手つむぎ

糸をかせ^{※2}に巻き、表2に示した条件で行った。この方法は現在紬織物技術支援センター後継者育成事業で適用している方法（以下「センターメソッド」という。）である。

糊付け作業時に小麦粉の状態や糸のさばきやすさ等の作業性を比較した。糊付け後の糸は、万能引張試験機（インストロン 5569型）を使用し、表3の条件で引張強さ試験を行った。これらの結果により、作業性や糸の強度に優れた小麦粉を1種類選択し、二次試験で本糊付けの条件を検討することとした。

※1 D（デニール）：繊維の太さの単位で、9,000 mあたりの糸の質量(g)で表示する

※2 糊付けや染色などの工程を行うため、総揚げ機を使用して一周約129 cmの輪状にした糸束のこと

表1 検討対象の小麦粉とその栄養成分

試料名表記	イワイノダイチ	ウエルナ	ニッポン	たけ
メーカー	笠原産業㈱	㈱日清製粉ウエルナ	㈱ニッポン	㈱ニッポン
商品名	イワイノダイチ	手打うどんの小麦粉	CGC小麦粉	たけ
栄養成分表示(%) ^{※3}				
エネルギー	351	351	347	352
たんぱく質	7	8.9	9.7	10
脂質	1.6	1.3	1.8	1.8
炭水化物	77	76	74.0	74
※3 メーカーによる推定値をそのまま記載				

* 栃木県産業技術センター紬織物技術支援センター

表2 糊付け条件

種別	下糊付け	本糊付け
回数	2 回	1 回
小麦粉量	糸重量の 30%	糸重量の 40%
浴比※ ⁴	1:20	1:12.5
作業手順	①小麦粉を秤取り、ふるいを通す	
	②浴比の約半分量の水を沸騰させる	
	③水で溶いた小麦粉※ ⁵ を入れ、攪拌しながら 100℃まで加熱、弱火で 5 分間維持	③水で溶いた小麦粉※ ⁵ を入れ、攪拌しながら 80℃まで加熱後、火を止める
	④ふるいを通した後残りの水を加え、40℃付近まで冷却	④ふるいを通した後残りの水を加え、常温付近まで冷却
	⑤かせ糸を糊液へ浸漬・軽い絞りを繰り返し、糸に糊液を浸透させ 10 分放置する。 この作業を 2 回行い、糊液をなじませる。 ⑥最初の糸重量の 2.3～2.5 倍を目安にかせ糸を絞る ⑦かせ糸を広げて乾燥させる	

※ 4 糸の重量に対する水の重量

※ 5 浴比から求めた水量から一部を取り使用

表3 引張強さ測定条件

つかみ間隔	200 mm
引張速度	200 mm/min
測定回数	60 回
※JIS L1095 に準拠	

2.2 選定した小麦粉の糊付け条件検討

2.1で選定した小麦粉を対象として、糊付け後の糸の状態に大きく影響する本糊付けの条件（小麦粉量）を変更し、どの条件が有効かを比較した。

糸は2.1と同等の約150Dの手つむぎ糸を使用し、小麦粉量（糸の重量（%）に対する小麦の重量（%））は、センターメソッドから上下に10%増減させたパターンを加えての30%、40%、50%で比較検討した。

糸の引張強さを表3の条件により実施し、表面状態をデジタルマイクロスコブ（HiLOX RH-2000）により観察した。

2.3 既存小麦粉と代替小麦粉の製織性比較

2.1で選定した代替小麦粉と既存の「たけ」をセンターメソッド（小麦粉量40%）で手つむぎ糸に糊付けし、実際に製織して製織性と生地表面状態を比較した。

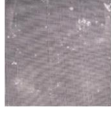
3 結果及び考察

3.1 代替可能な小麦粉銘柄の選定

3.1.1 各小麦粉のふるい平均通過率

糊付けで使用する小麦粉は、糊液を作る際にふるいにかけてから使用する。そこで、作業性評価のため、小麦粉のふるい平均通過率を測定した結果を表4に示す。平均通過率は銘柄により若干差異が見られ、「ウェルナ」、「ニップン」、「たけ」は98%以上となった。一方、「イワイノダイチ」では93.5%となり、ふるい上に若干のだまが発生したが、指で軽く押すことで粉砕でき、作業性を大きく損ねることはなかった。

表4 各小麦粉のふるい平均通過率

試料名	イワイノダイチ	ウェルナ	ニップン	たけ
平均通過率(%)※ ⁶	93.5	98.2	99.5	98.3
処理後のふるい上の状態	 若干だまができる	 叩いた振動でだま解消	 だまは速やかに消失	 だまは速やかに消失

3.1.2 糊付け後の手つむぎ糸の評価

表2の条件で本糊付けまで終了した手つむぎ糸（かせ糸）の外観を図1に、糸重量に対する付着した糊の重量比を表5に示す。



図1 本糊付け後の手つむぎ糸

同メーカー製品の「ニップン」と「たけ」は、糊付け作業時の触感が極めて類似していた。また、糊付着量については、「ウェルナ」、「ニップン」、「たけ」ではほぼ同等となった。「イワイノダイチ」、「ウェルナ」も糊付け用途としては十分使用可能であるが、「たけ」の代替としては、「ニップン」が比較的良好と考えられる。

表5 糸の重量に対する付着した糊の重量比

イワイダイチ	ウェルナ	ニッペン	たけ
11%	14%	16%	15%

本糊付けまで完了した糸について、表3の条件で引張強さを測定した結果を図2に示す。手つむぎ糸は太さが一様でない上、手つむぎ糸の絡めつなぎ部分、機結びの部分など引張強さが弱い部分がある。このため、試験回数(n数60)の内、総数60本及び引張強さ上位の50本、40本の平均値でも比較したが、いずれも「ニッペン」で糊付けを実施した手つむぎ糸の強度が最も高かった。作業性が「たけ」に類似し、引張強度が最も高かったこと等から総合的に判断し、二次試験の対象として「ニッペン」を選定した。

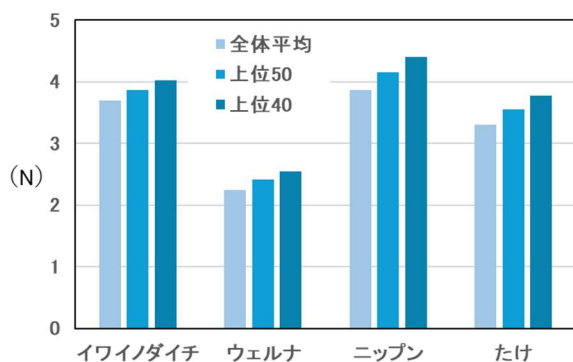


図2 本糊付け後の手つむぎ糸（小麦粉量40%）の引張強さ

3. 2 選定した小麦粉の本糊付け条件検討

3. 1で選定した「ニッペン」を対象として、本糊濃度を増減させて糊付けした手つむぎ糸の外観を図3に示す。本糊50%では、糊の乾燥後に接した糸が粘着し、糸の分離（さばき性）にむらが生じた。

また、表3の条件による引張試験の結果を図4、デジタルマイクロスコープによる乾燥後の手つむぎ糸の表面状態を図5に示す。

引張強さは、小麦粉量40%が最も良好となった。本糊濃度30%は糸のまとまりが劣り、十分な強度が得られなかった。本糊濃度50%は糸のさばき性が悪化し、かせ糸からボビンに巻き返す際に糸の破断が多く発生した。図5から糸の分離等の荒れた状態は本糊濃度50%が最も多かった。これらの結果から、本糊濃度50%では糊付けによる引張強さの上昇よりも、強く固着した糸が分離することによる糸の脆化が影響し、強度低下につながったと推察される。

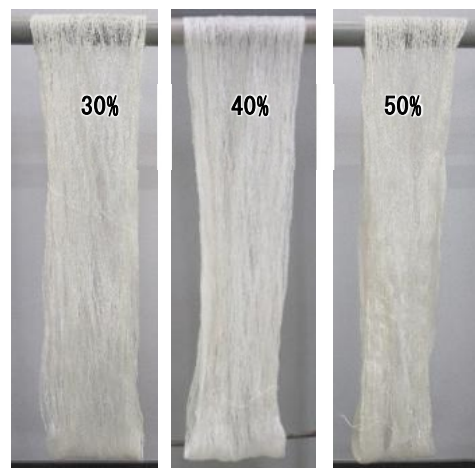


図3 本糊付け後の手つむぎ糸（ニッペン）

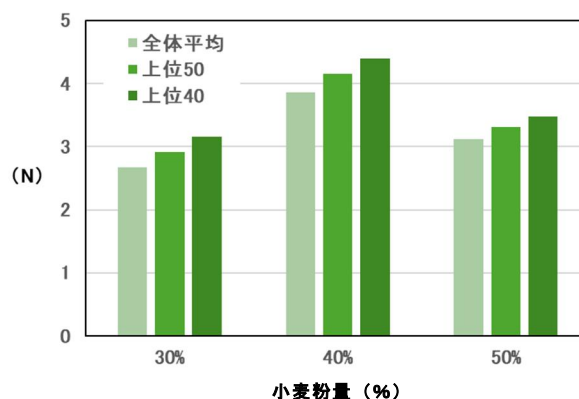


図4 小麦粉量を変えた本糊付け後の手つむぎ糸の引張強さ

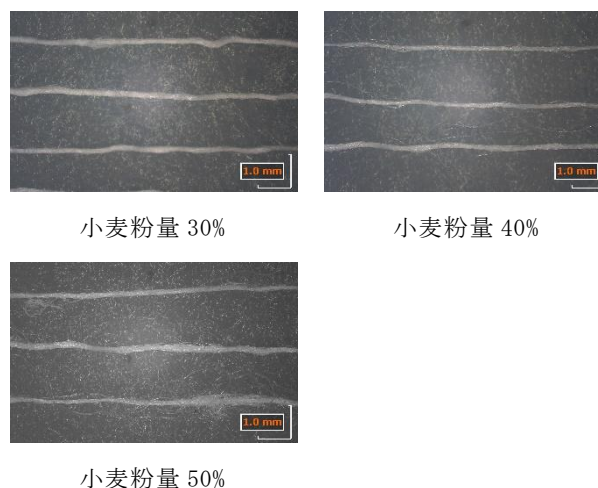


図5 乾燥後の手つむぎ糸の表面状態

3. 3 既存小麦粉と代替小麦粉の製織性比較

製織性評価用手つむぎ糸の糊付けと糸干しの様子を図6に、地機による製織の様子を図7に、図8に製織した生地各サンプルを示す。



本糊付け



糸干し

図6 製織性評価用手つむぎ糸の糊付け



図7 地機による製織



たけ



ニップン

図8 製織した生地

製織試験の結果、「たけ」に比べ「ニップン」には毛羽立ちがやや多く見られたが、部分的に引き糊^{※7}を行った

結果、問題なく製織できたことから、代替小麦粉として利用可能と考えられる。

※7 引き糊：たて糸の毛羽立ちや強度不足がある場合、濃度を調整した合成糊（PVA）を部分的に付けて製織性を改善する。

4 おわりに

産地で手つむぎ糸の糊付けに一般的に用いられている小麦粉「たけ」に代わる糊付け材料を選定するため、小山市周辺の小売店で入手可能な3種類の小麦粉について、糊付けの作業性や糊付けした手つむぎ糸の物性及び製織性を評価し、以下の知見を得た。

- (1) 糊付けの作業性、糊付けした手つむぎ糸の物性等の試験結果から、市販3種の小麦粉の中では「ニップン」が総合的に最も優れていた。
- (2) 「ニップン」の本糊付けについて、糊濃度を変えて作業性や糸の強度を評価した結果、小麦粉量40%の引張強さが最も高く、表面状態も良好であった。
- (3) 「ニップン」を用いて糊付けした手つむぎ糸の製織試験では、「たけ」より若干毛羽立ちが発生したが、引き糊等で対応できる範囲であり、代替小麦粉として利用可能と考えられる。

参考文献

- 1) 堀江昭次，太田仁美，石井優利奈：『栃木県産業技術センター研究報告』，No.15，86-89，(2017)
- 2) 堀江昭次，太田仁美，石井優利奈，渡辺智文：『栃木県産業技術センター研究報告』，No.16，45-48，(2018)

経常研究

低温焼成可能な坯土及び釉薬に関する研究（第2報）

星 佳宏* 松本 健一* 早川 嘉* 小林 渡*

Study on Low-temperature Firing Clay and Glaze (2nd Report)
HOSHI Yoshihiro, MATSUMOTO Kenichi, HAYAKAWA Yoshi and KOBAYASHI Wataru

低温焼成が可能な坯土及び釉薬の開発を目的として、1200℃で焼成可能な坯土とそれに適合する釉薬を検討した。その結果、坯土はロクロ成形が可能であり、かつ吸水率が5%未満となる益子水ひ土に対して釜戸長石6%、ドロマイト8%を配合した組成を選定した。この坯土に適合する釉薬として、まず並白釉を検討したところ、伝統釉（大谷津砂60%、鼠石灰20%、天草陶石20%）を基に炭酸ストロンチウム及び焼タルクを添加する配合により、貫入が少なく色調も良好となる可能性が示唆された。飴釉は、本研究で検討した並白釉に二酸化マンガン6%を添加した配合が釉薬の色調が良好であった。

Key words: 坯土、釉薬、低温焼成、ロクロ成形、ドロマイト

1 はじめに

陶磁器製造の焼成工程はガスや電気など多量のエネルギーを必要とし、本焼成時には最も二酸化炭素を排出する。また、近年はガス・電気料金の高騰により県内窯業事業者から焼成コスト低減のニーズがある。

国内の他産地では、焼成温度の低温化による脱炭素化の取り組みや、低温焼成に対応した釉薬・坯土を用いた商品の開発^{1)~4)}が進み、製陶業界全体でカーボンニュートラルへの動きが活発化している。しかし、県内産地においては低温焼成に対応した坯土や釉薬が未だ実用化されておらず、具体的な取り組みは十分に進んでいないのが現状である。

県内製陶事業者の大半を占める益子焼産地では、成形方法はロクロ成形が主流であり、伝統的な坯土や釉薬を使用した場合の本焼成温度は1250～1280℃が一般的である。一方、土鍋などの耐熱陶器は1200℃程度で焼成されるため、ロクロ成形が可能で、かつ1200℃で焼成できる坯土と釉薬が開発できれば、従来の陶器と耐熱陶器を同一条件で焼成できる可能性がある。これにより、県内産地における商品の多様化と焼成コストの低減が期待される。

そこで、本研究では、前年度の結果⁵⁾を踏まえ、安価に入手可能なカリ・ソーダ長石である釜戸長石と前年度の研究で最も吸水率低下に寄与したドロマイトの2種を混合し、ロクロ成形性を有し、1200℃焼成に対応した坯土の開発を試みた。さらに、この坯土に適合する釉薬の配合についても検討を行った。

2 研究の方法

2.1 原料

原料には、益子焼協同組合で販売されている益子水ひ土を乾燥後、乳鉢で粉碎した益子水ひ土粉末を用いた。融剤には、市販の釜戸長石及びドロマイト($\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$)を前処理せず使用した。

釉薬原料には、ネフェリンサイアナイト、鼠石灰、天草陶石、炭酸ストロンチウム(SrCO_3)、焼タルク、二酸化マンガン(MnO_2)は市販の粉末原料を前処理せず用いた。大谷津砂は、市販の原料をポットミルで4時間摺り、80目のふるいで濾し、乾燥して用いた。

2.2 坯土の配合検討

ロクロ成形性を有し、1200℃で焼成可能な坯土の配合を検討するため、釜戸長石及びドロマイトを表1、表2に示す配合条件で混合し、1200℃で焼成した坯土成形体の吸水率を測定した。吸水率は焼き縮まりの指標とし、1250～1280℃焼成時の益子水ひ土と同程度である5%を基準とした^{6),7)}。さらに坯土の物性評価（全収縮率、曲げ強度）及び成形性評価も行った。

表1 配合条件(益子水ひ土+釜戸長石)

釜戸長石 (%)	0	3	4	5	6	7
益子水ひ土 (%)	100	97	96	95	94	93

表2 配合条件(益子水ひ土+釜戸長石6%+ドロマイト)

ドロマイト (%)	0	5	6	7	8	9
釜戸長石 (%)	6	6	6	6	6	6
益子水ひ土 (%)	94	89	88	87	86	85

* 栃木県産業技術センター 窯業技術支援センター

2. 3 低温焼成用釉薬の検討

L字型テストピース（高さ 40 mm×幅 25 mm×奥行き 20 mm、厚み 5 mm）に下絵の発色を見るために表面に弁柄で 2 本線を入れて、釉薬原料を乳鉢で 5 分摺り施釉し、直立させて 1200℃で焼成した。

2. 4 測定・評価方法

吸水率、坯土の成形性評価、全収縮率、曲げ強度、焼成条件は前報⁵⁾と同様の方法で行った。

釉薬の評価は、焼成した釉薬テストピースの割れ、貫入、剥離等について目視により行った。

3 結果及び考察

3. 1 坯土の配合検討

益子水ひ土に各融剤を配合した坯土の吸水率測定結果を図 1、2 に示す。釜戸長石のみを配合した場合、無添加の益子水ひ土と比較して吸水率は低下したものの、最も低い吸水率は配合率 6% の 7.1% であった。次に釜戸長石の添加率を吸水率低下が確認された 6% で固定し、ドロマイトの配合率を変化させて検討した。その結果、ドロマイトを 8% 及び 9% 添加した配合において、目標値である吸水率 5% 以下となった。

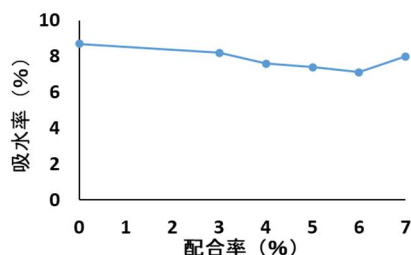


図1 吸水率測定結果(益子水ひ土+釜戸長石)

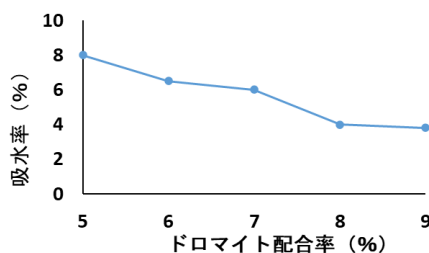


図2 吸水率測定結果(益子水ひ土+釜戸長石 6% +ドロマイト)

次に吸水率 5% 以下を満たし、かつ融剤添加量が最も少ない釜戸長石 6%、ドロマイト 8% を配合した坯土について、物性試験を実施した結果を表 3 に示す。

表 3 物性試験結果

試料	全収縮率 (%)	吸水率 (%)	曲げ強度 (MPa)
試作坯土(1200℃)	10.4	4.0	21.8
益子水ひ土(1250℃)	11.7	6.5	22.1
益子水ひ土(1280℃)	12.2	5.5	22.8

この坯土は従来の益子水ひ土（焼成温度 1250℃、1280℃）と比較して全収縮率が低く、曲げ強度はほぼ同等であった。また、成形性評価では湯呑の成形が可能であり、ロクロ成形性を有することが確認された。

以上の結果から、釜戸長石 6%、ドロマイト 8% 添加の坯土（以下、試作坯土）を今回の低温焼成用坯土として選定し、その後の試験に供することとした。

3. 2 低温焼成用釉薬の検討

釉薬が素地と適合しない場合、剥離や貫入が発生するため、試作坯土に現行の益子焼伝統釉をそのまま適用することは困難である。そこで、試作坯土に対し、益子焼伝統釉 6 種（並白釉、飴釉、糠白釉、糠青磁釉、柿釉、黒釉）を施釉し、1200℃で焼成試験を行った。伝統釉の配合・原料を表 4 に、テストピースの外観を図 3 に示す。

その結果、糠白釉、糠青磁釉、柿釉、黒釉は十分に熔融せず、原料の残存が確認され、1200℃での低温焼成には適さないことが明らかとなった。一方、並白釉及び飴釉の 2 種は 1200℃で熔融が確認されたものの、いずれも貫入が発生した。

以上の結果を踏まえ、熔融が確認された並白釉及び飴釉について、低火度原料を添加し、既存の伝統釉の外観・色調に近づけるための調合検討を行うこととした。

表 4 益子焼伝統釉の原料

釉薬名	原料
並白釉	大谷津砂、石灰、天草陶石
飴釉	並白釉に二酸化マンガンを添加
糠白釉	長石、天草陶石、モミ灰
糠青磁釉	糠白釉に酸化銅を添加
柿釉	芦沼石
黒釉	柿釉、並白釉、糠白釉の混合



図3 益子焼伝統釉の焼成テストピース
(左から：並白釉、飴釉、糠白釉、糠青磁釉、柿釉、黒釉)

3. 2. 1 試作坯土に適合する並白釉配合の検討

下記に示す配合で、主原料として低温で熔融する長石であるネフェリンサイアナイト、並白釉の原料である大谷津砂の 2 種を用い、副原料として低火度化に寄与が期待できる亜鉛華、炭酸ストロンチウムを添加し、試作坯土に適合する釉薬の検討を行った。

①～③：主原料をネフェリンサイアナイトとし、副原料に炭酸ストロンチウム（①）、亜鉛華（②、③）

を添加

④～⑦：主原料を大谷津砂とし、副原料に亜鉛華(④)、炭酸ストロンチウム添加量を増加(⑤～⑦)

⑧～⑩：主原料を大谷津砂とし、一定量の炭酸ストロンチウムを添加し、鼠石灰添加量を増加

試作並白釉の1200℃焼成試験結果を表5に、焼成テストピースの外観を図4に示す。亜鉛華添加(②～④)ではネフェリンサイアナイト及び大谷津砂の両方で結晶の発生が認められた。炭酸ストロンチウム添加(①、⑤～⑩)では結晶の発生は確認されなかったが、貫入が生じた。

貫入改善を目的として、炭酸ストロンチウム(⑤～⑦)及び鼠石灰(⑧～⑩)の添加量を増加させた配合を検討したが、いずれの配合においても貫入の解消には至らなかった。特に、鼠石灰の添加量を増加させた場合には、釉薬表面にざらつきが生じた。



図4 焼成テストピース(試作並白釉)

(左から：①、③、⑥)

表5 試作釉の焼成試験結果(並白釉、主原料：ネフェリンサイアナイトまたは大谷津砂)

※総合評価：○(良い), △(やや良い), ▲(やや悪い), ×(悪い)

No.	ネフェリンサイアナイト	大谷津砂	鼠石灰	炭酸ストロンチウム	亜鉛華	ゼーゲル式			外観評価 (比較：並白釉(伝統釉))	総合評価
						アルカリ	Al ₂ O ₃	SiO ₂		
①	61.5	-	18.3	20.2	-	0.30KNaO 0.40CaO 0.01MgO 0.30SrO	0.31	1.36	貫入あり 並白釉(伝統釉)より白い	▲
②	67.6	-	20.1	-	12.3	0.30KNaO 0.40CaO 0.01MgO 0.30ZnO	0.31	1.36	焼成テストピース表面に結晶析出	×
③	65.1	-	21.7	-	13.2	0.30KNaO 0.40CaO 0.01MgO 0.30ZnO	0.31	1.36	焼成テストピース表面に結晶析出	×
④	-	64.2	19.1	14.6	2.2	0.24KNaO 0.46CaO 0.06ZnO 0.24SrO	0.27	1.76	焼成テストピース表面に結晶析出	×
⑤	-	68.1	20.2	11.6	-	0.27KNaO 0.52CaO 0.01MgO 0.2SrO	0.30	2.01	貫入あり 並白釉(伝統釉)に似た黄色味	△
⑥	-	65.6	19.5	14.9	-	0.25KNaO 0.49CaO 0.01MgO 0.25SrO	0.28	1.88	貫入あり 並白釉(伝統釉)に似た黄色味	△
⑦	-	59.9	20.4	19.7	-	0.12KNaO 0.41CaO 0.01MgO 0.46SrO	0.17	1.52	貫入あり 並白釉(伝統釉)に似た黄色味	△
⑧	-	66.9	19.9	13.2	-	0.11KNaO 0.52CaO 0.35SrO 0.02BaO	0.20	1.94	貫入あり 並白釉(伝統釉)に似た黄色味	△
⑨	-	65.9	21.0	13.1	-	0.11KNaO 0.54CaO 0.34SrO 0.01BaO	0.21	1.88	貫入、ざらつきあり 並白釉(伝統釉)に似た黄色味	▲
⑩	-	65.0	22.2	12.9	-	0.10KNaO 0.55CaO 0.33SrO 0.02BaO	0.20	1.81	貫入、ざらつきあり 並白釉(伝統釉)に似た黄色味	▲

主原料をネフェリンサイアナイト、大谷津砂とする両方の配合で貫入の発生が見られたため、基本配合を変更し、伝統釉の配合（大谷津砂 60%、鼠石灰 20%、天草陶石 20%）に炭酸ストロンチウムを添加した（⑪～⑬）。試作並白釉の 1200℃焼成試験結果を表 6 に、焼成テストピースの外観を図 5 に示す。



図 5 焼成テストピース（試作並白釉）

（左から：⑪、⑫、⑬）

炭酸ストロンチウム 10%（⑪）及び 15%（⑫）では貫入は残るものの、並白釉（伝統釉）に近い外観・色調となった。一方、20%添加（⑬）では貫入が増大した。

貫入は、素地と釉薬の熱膨張差が大きい場合に生じやすい。マグネシウムを添加した釉薬は熱膨張が小さくなることが知られているため⁸⁾、マグネシウムを含有する焼タルクを添加して貫入が抑制できるかを検討した（⑭～⑱）。

大谷津砂、天草陶石、焼タルクの比率を固定し、鼠石灰の配合を変えた配合を検討したところ、⑮、⑯の配合でこれまでの配合と比べて貫入が減り、良好な色調となった。

表 6 試作釉の焼成試験結果（並白釉、主原料：大谷津砂、鼠石灰、天草陶石）

※総合評価：○（良い）、△（やや良い）、▲（やや悪い）、×（悪い）

No.	大谷津砂	鼠石灰	天草陶石	炭酸ストロンチウム (外割)	焼タルク (外割)	ゼーゲル式			外観評価 (比較：並白釉（伝統釉）)	総合評価
						アルカリ	Al ₂ O ₃	SiO ₂		
⑪	60	20	20	10	—	0.13KNaO 0.57CaO 0.30SrO	0.30	2.65	貫入あり 並白釉（伝統釉）に似た黄色味	△
⑫	60	20	20	15	—	0.10KNaO 0.50CaO 0.39SrO	0.26	2.27	貫入あり 並白釉（伝統釉）に似た黄色味	△
⑬	60	20	20	20	—	0.10KNaO 0.43CaO 0.46SrO	0.22	1.99	貫入が増えている 並白釉（伝統釉）に似た黄色味	▲
⑭	60	20	20	5	5	0.15KNaO 0.57CaO 0.13MgO 0.15SrO	0.29	2.72	細かい貫入あり 並白釉（伝統釉）に似た黄色味 溶けすぎ	△
⑮	60	20	20	6	5	0.15KNaO 0.55CaO 0.13MgO 0.17SrO	0.28	2.64	細かい貫入あり 並白釉（伝統釉）に似た黄色味 溶け具合良好	○
⑯	60	15	20	5	5	0.18KNaO 0.50CaO 0.15MgO 0.17SrO	0.34	3.13	細かい貫入あり 並白釉（伝統釉）に似た黄色味 溶け具合良好	○
⑰	60	10	20	5	5	0.21KNaO 0.42CaO 0.17MgO 0.20SrO	0.40	3.68	貫入あり 並白釉（伝統釉）に似た黄色味 やや溶けている	△
⑱	60	5	20	5	5	0.25KNaO 0.29CaO 0.21MgO 0.24SrO	0.48	4.47	貫入あり 並白釉（伝統釉）に似た黄色味 溶けが悪い	△
伝統釉	60	20	20	—	—	0.21KNaO 0.77CaO 0.02MgO	0.40	3.52	薄黄透明	×

焼タルク添加で貫入の減少が確認されたため、大谷津砂、天草陶石、焼タルクの比率を固定し、⑮と⑯の配合を参考にアルカリ源である鼠石灰を 15～20%添加、炭酸ストロンチウムを 4～6%添加と変化させて、さらに貫入の少ない配合を検討した。

この検討の中で並白釉に近い色調で溶け具合が良好だった配合 (⑲) の焼成結果を表 7、焼成テストピースの外観を図 6 に示す。



図 6 焼成テストピース (試作並白釉薬: ⑲)

細かい貫入が残っているが、釉薬はよく溶け、色調は黄色透明と並白釉 (伝統釉) とほぼ同じ色調で下絵の弁柄の 2 本線も良好に発色していた。

これらの結果から 1200℃焼成に適した並白釉の配合について、鼠石灰の配合が 18～19%、ゼーゲル式では Al_2O_3 が 0.3 付近、 SiO_2 が 2.8 付近で最も良好となった。焼タルクの添加が貫入を減らす効果があることが確認できたが、貫入のない釉薬の調合にはさらなる検討が必要である。

3. 2. 2 試作坯土に対応した飴釉配合の検討

飴釉は並白釉に二酸化マンガンを加えて調合する釉薬である。本研究で改良した並白釉の配合 (⑲) を基にし、二酸化マンガン を 3%、6%、9% 添加し、飴釉の配合を検討した (⑳～㉒)。

試作飴釉の 1200℃焼成試験結果を表 8、焼成テストピースの外観を図 7 に示す。



図 7 焼成テストピース (試作飴釉)

(左から: 二酸化マンガン 3%、6%、9% 添加)

いずれの試験体も細かい貫入が入っていたものの、二酸化マンガン 6% 添加が最も飴釉 (伝統釉) に近い色調であり、1200℃焼成の飴釉は本研究で改良した並白釉の配合 (⑲) に二酸化マンガン 6% 添加したものが適していると考えられた。

以上の結果から、試作坯土に適合した 1200℃における低温焼成用釉薬について、試作並白釉では伝統釉の基本配合 (大谷津砂 60%、鼠石灰 20%、天草陶石 20%) に炭酸ストロンチウム及び焼タルクを添加することで、貫入が少なく、並白釉 (伝統釉) に似た色調となり、最も優れていた。

表 7 試作釉の焼成試験結果 (並白釉、最終配合検討)

※総合評価: ○ (良い), △ (やや良い), ▲ (やや悪い), × (悪い)

No.	大谷津砂	鼠石灰	天草陶石	炭酸ストロンチウム (外割)	焼タルク (外割)	ゼーゲル式			外観評価 (比較: 並白釉 (伝統釉))	総合評価
						アルカリ	Al_2O_3	SiO_2		
⑲	60	18	20	5	5	0.16KNaO 0.54CaO 0.14MgO 0.16SrO	0.31	2.87	細かい貫入あり よく溶けている 並白釉 (伝統釉) に似た黄色味 弁柄の 2 本線が良好に発色	○

表 8 試作釉の焼成試験結果 (飴釉)

※総合評価: ○ (良い), △ (やや良い), ▲ (やや悪い), × (悪い)

No.	大谷津砂	鼠石灰	天草陶石	炭酸ストロンチウム (外割)	焼タルク (外割)	二酸化マンガン (外割)	ゼーゲル式			外観評価 (比較: 飴釉 (伝統釉))	総合評価
							アルカリ	Al_2O_3	SiO_2		
⑳	60	18	20	5	5	3	0.16KNaO 0.54CaO 0.14MgO 0.16SrO	0.31	2.87	細かい貫入あり 色が薄い	△
㉑	60	18	20	5	5	6	0.16KNaO 0.54CaO 0.14MgO 0.16SrO	0.31	2.87	細かい貫入あり 色は飴釉 (伝統釉) に最も近い	○
㉒	60	18	20	5	5	9	0.16KNaO 0.54CaO 0.14MgO 0.16SrO	0.31	2.87	細かい貫入あり 色が濃い	△

また、試作飴釉では本研究で改良した 1200℃焼成に適合する並白釉に二酸化マンガンを 6%添加することで飴釉（伝統釉）に似た色調となり、最も優れていた。

1200℃焼成での貫入のない実用的な並白釉及び飴釉の実現には、今回の結果を基に更なる天草陶石、炭酸ストロンチウム、焼タルクの配合割合の更なる検討が必要である。

4 おわりに

低温焼成可能な坯土及び釉薬の開発のため、1200℃焼成可能な坯土及び適合する釉薬について検討した。その結果、以下のことが明らかになった。

- (1) 益子水ひ土にドロマイト 8%、釜戸長石 6%を配合した坯土は、焼成温度 1200℃で吸水率 5%を下回り、従来温度（1250～1280℃）で焼成した益子水ひ土より焼き締まった。この坯土はロクロ成形が可能であり、益子水ひ土と比較して全収縮率が低く、曲げ強度はほぼ同等であった。
- (2) 試作坯土に適合する低温焼成用釉薬については、並白釉は伝統釉の配合（大谷津砂 60%、鼠石灰 20%、天草陶石 20%）を基に炭酸ストロンチウム及び焼タルクの添加により、貫入が少なく色調も良好となる可能性が示唆された。また、飴釉は当該並白釉の配合に二酸化マンガンを 6%添加した配合が釉薬の色調が良好であった。両方の釉薬とも細かな貫入が見られ、実用化には更なる検討が必要であった。

参考文献

- 1) 河野ら：“長崎県窯業技術センター研究報告”，55, 18-22, (2007)
- 2) 新島ら：“三重県科学技術振興センター工業研究部 研究報告”，32, 36-41, (2008)
- 3) 吉田ら：“茨城県工業技術センター研究報告”，40, 33-36, (2012)
- 4) 吉田ら：“茨城県工業技術センター研究報告”，41, 37-40 (2013)
- 5) 星ら：“栃木県産業技術センター研究報告”，22, 105-108, (2025)
- 6) 仁平ら：“栃木県産業技術センター研究報告”，6, 121-126, (2009)
- 7) 仁平ら：“栃木県産業技術センター研究報告”，7, 99-102, (2010)
- 8) 磯部ら：“栃木県産業技術センター研究報告”，21, 107-112, (2024)



令和 7（2025）年度

栃木県産業技術センター研究報告

第 2 3 号

Reports of Industrial Technology Center of Tochigi Prefecture

No. 23（2026）

発 行 令和 8（2026）年 8 月

発行所 栃木県産業技術センター

〒321-3226 栃木県宇都宮市ゆいの杜 1-5-20

T E L（028）670-3391

F A X（028）667-9430