

# トポロジー最適化設計と金属積層造形を応用した高比強度構造体の作製に関する検討

宮内 創

トポロジー最適化設計と金属積層造形を応用した高比強度な構造体の作製技術構築を目的に、片持ち梁形状の構造体をモデルケースとして、形状生成および試作と評価を行った。トポロジー最適化の初期形状に応力解析結果を反映して最適形状を探索することで、応力分布が均一に近く、設計上の比強度が、単純な片持ち梁の約1.8倍となる形状が導出された。オーバーハング形状や板厚に関する製造制約を設定することで、生成された形状をサポートレスで造形できた。試作した構造体に外力を負荷した際の応力と変位は、解析値と概ね整合したが、非設計領域との境界部には応力集中箇所が存在し、試作した構造体での破壊起点となった。

## 1 緒言

近年、製造業における環境負荷低減の取り組みは必須の課題となっており、これを製品の省資源化や軽量化の観点から推進するためのツールとして、トポロジー最適化を用いた形状設計が極めて有効であると考えられている。トポロジー最適化とは、製品の形状設計において、要求する性能を満たす最適な形状を、初期形状をもとに数理的計算により生成する手法である<sup>1)</sup>。例えば、想定する負荷の大きさや方向および必要な強度を制約条件として、質量を目的関数とすれば、設定条件下で最も軽量となるような形状が導出される。トポロジー最適化により生成される形状は一般に、製造が困難な複雑形状となりがちであるが、形状の許容範囲の広い積層造形を製造方法として有効に活用すれば、具現化が容易になる。とりわけ、積層造形を前提としてトポロジー最適化のような先進的手法を活用する設計の方法論はDfAM (Design for Additive Manufacturing)と呼ばれ<sup>1)</sup>、既成概念を打破する革新的な形状や性能が期待されることから、製品の高付加価値化・競争力強化のための手法としても注目されている。

一方で、積層造形にも特有の製造制約が存在し、これを含む種々の制約条件を適切に考慮して形状生成を行わなければ、製造に支障を生じたり、理論的な最適形状からの性能低下が大きくなるなどのおそれがある<sup>2)</sup>。そこで本報告では、トポロジー最適化設計による製品の軽量化(高比強度化)の効果を発揮させるための基礎的な知見を得ることを目的に、単純な片持ち梁形状の構造体をモデルケースとして、形状生成の試行および金属積層造形による試作と評価を行い、初期形状や制約条件の与え方が試作品の性能に及ぼす影響を検討した。

## 2 トポロジー最適化による形状設計

### 2. 1 解析対象モデル

図1に示す片持ち梁を、解析対象モデルとした。本報告では、金属積層造形を応用した効率的な製造を意図して、造形用基板を構造体の一部(梁の土台)として利用し、基板上の直方体領域に、トポロジー

最適化設計した梁部分を積層造形する方案とした。基板から高さ25mmの位置に、M3ボルトを介して外力を負荷する想定とし、当該位置に座ぐり穴を設けた。

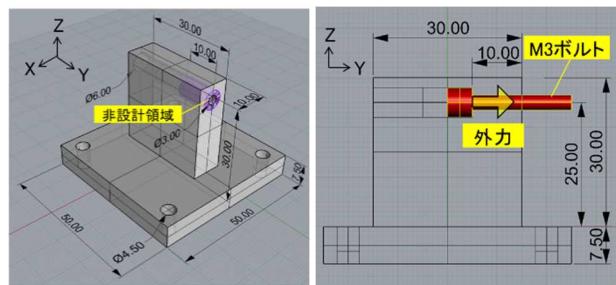


図1 解析対象モデルの形状

### 2. 2 トポロジー最適化による形状生成の方法

トポロジー最適化設計には、市販ソフトウェアであるMSC Apex Generative Design 2024.2 (HEXAGON社製)を用いた。最適化の目的関数は質量であり、設定条件を満たす範囲にて質量が最小となるように、初期形状から不要部分を削除した形状が生成される。解析に使用した材料物性値を表1に示す。最適化の条件として、基板の四隅の穴を変位拘束し、座ぐり穴の表面に1000 Nの荷重を与えた際に、構造体に生じる主応力が46 MPa (AlSi10Mgの耐力の20%)を超えないこととした。基板および、座ぐり穴の表面から奥の領域は、非設計領域(形状が保持される)とした。製造制約(製造可能な形状を出力するための拘束条件)に関しては、一般にL-PBF(レーザ粉末床溶融結合法)方式の金属積層造形で製造する場合、基板に対して45度以下のオーバーハング面にはサポートを附加するなどの必要がある。本報告で

表1 解析に用いた材料物性値

領域	材質	ヤング率 GPa	ポアソン比	密度 g/cm <sup>3</sup>	耐力 MPa	引張強さ MPa
梁	AlSi10Mg	72	0.34	2.70	230	450
基板	A5052	72	0.34	2.70	100	200

は、ソフトウェアに実装されている、45度以下のオーバーハング形状の生成を抑制する機能を利用した。加えて、造形中の破損や造形条件のミスマッチを回避するため<sup>3)</sup>、最小板厚を1.5 mmに制限した。

### 2.3 トポロジー最適化結果および設計案の検討

初期形状に対するトポロジー最適化結果を図2に示す。初期形状のモデルは、計算負荷低減のため、対称面で1/2に分割した。生成された形状には、最適化条件である1000 Nの負荷時に発生する主応力の分布（解析値）を併せて示した。また、基板部分を除いた梁部分の解析質量を、表2に示す。図1のモデルをそのまま初期形状として最適化計算した場合（Case 1），梁の背側の領域の負荷応力が小さく、明らかに無意味な枝形状も生成されていることがわかる。トポロジー最適化計算では、アルゴリズムにも依存するものの、初期形状によっては、解析結果が、真に最適な形状から乖離した局所解へと収束してしまう場合がある<sup>4)</sup>。そこで、Case 1の結果をもとに、構造的に必要性が小さい（負荷応力が小さい）領域を予め初期形状から削除して再計算した（Case 2）。生成された梁部分の形状は、ほぼ全域が均等に、設定上限値（46 MPa）に近い応力を負担する結果となっており、合理的であると考えられた。材料力学的な計算（片持ち梁の曲げ応力。応力集中は考慮しない）では、図1のモデルにおける、1000 N負荷時に生じる最大応力は約17 MPaである。Case 2の出力形状では、1000 N負荷時の最大応力を約2.8倍（46 MPa）に設定したのに対し、質量は約0.20倍となったことから、比強度（質量あたりの耐荷重）では、図1のモデルの約1.8倍に向上すると見積もられた。

さらにCase 2の改良案として、梁の根元（隅角部）が応力集中を生じる形状であるため、当該箇所の初期形状にフィレット（曲率半径1 mm）を追加して形状生成し、これをCase 3とした。他方で、Case 2の応力解析結果からは、座ぐり穴の座面周辺にも、強い応力集中が示唆される。この箇所は非設計領域との境界部であるため、負荷応力が均等となる形状の生成が制限されたものと考えられる。当該箇所に関しては、ボルトとの干渉を考慮し、Case 2からの初期形状の修正は加えなかつたが、Case 2とCase 3の形状を比較すると、Case 3の方が厚肉となっていた。

また、製造制約が形状生成に及ぼす影響を検討するため、Case 3の条件をもとに製造制約を与えて出力した形状を、Case 4として示す。Case 3に比べ、梁部分の質量が約18%軽量となった。一方で、基板からの立ち上がり部が、根元が細く張り出し長さの大きいオーバーハング形状となっており、経験則であるが、造形には倒れ防止のためのサポートが必要となる。

### 3 設計形状の試作および評価

#### 3.1 金属積層造形による試作

2節で検討した設計案のうち、Case 2とCase

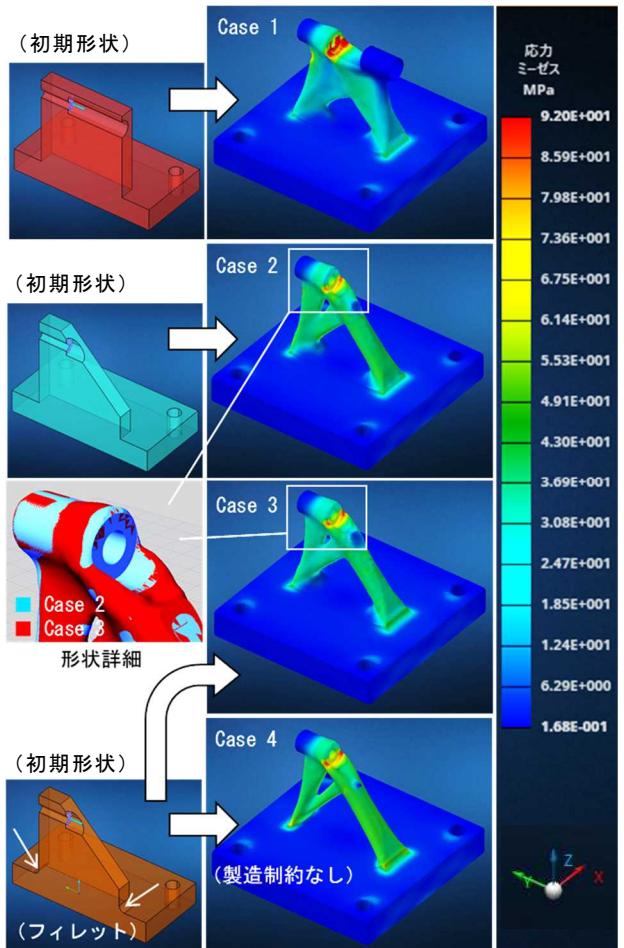


図2 最適化形状および応力解析結果

表2 最適化された形状の質量解析結果

設計案	梁部分の質量 g	
	初期形状	出力形状
Case 1	22.58	6.16
Case 2	17.35	4.50
Case 3	17.39	4.68
Case 4	17.39	3.86

3の機械的性質を実体にて検証するため、L-PBF方式の金属積層造形装置（赤澤機械株式会社製）にて試作した。材料粉末は、AlSi10Mg（Al-10 mass % Si-0.35 mass % Mg 合金、Carpenter Additive 社製）であり、A5052アルミニウム合金圧延材の基板上に積層造形した。造形条件を表3に示す。造形後、基板（梁の土台部分）および、M3ボルトを通す穴を設計形状のとおりに機械加工し、梁の表面全体をブラスト加工した。仕上げ加工後の試作品外観を図3に示す。造形工程にて問題は発生せず、仕上げ加工後の重量は、設計質量に対し1.6%大きい程度であった。

#### 3.2 試作品の強度試験方法

試作した構造体に対し、2節の設計条件を再現した外力を負荷した際の挙動を評価した。図4に示すとおり、座ぐり穴にM3ボルトを取り付け、ボルト頭部に万能材料試験機を用いて100 N/secの速度で外力を負荷し、M3ボルト端部の、外力の負荷方向への変位をダイヤルゲージで測定した。

表 3 造形条件

レーザ出力 P	400 W
XY 走査速度 v	711 mm/sec
XY 走査ピッチ s	0.15 mm
積層ピッチ t	0.03 mm
投入エネルギー密度 $E_d$	125 J/mm <sup>3</sup>
$E_d = P / (v \cdot s \cdot t)$	

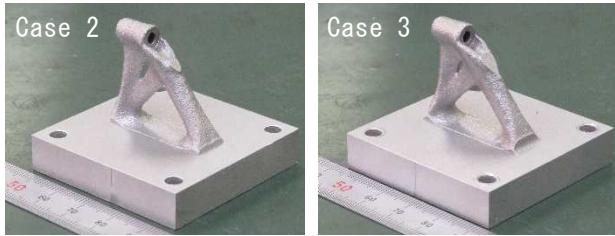


図 3 試作品外観

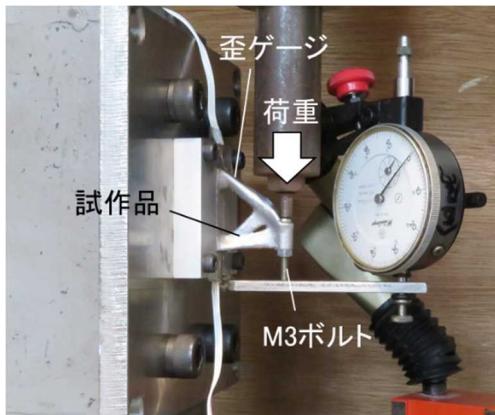


図 4 試作品の強度試験方法

同時に、梁の背側の平坦部に貼り付けた歪ゲージで、当該部分の歪値を測定した。外力の初期値は 200 N とし、負荷と除荷を繰り返す毎に外力の大きさを増加させながら、破壊するまで試験した。

### 3. 3 試作品の機械的性質

変位および歪の測定結果を図 5 に示す。一定の荷重を負荷した際の変位の大きさ（構造体の剛性）は、Case 2 と Case 3 を比較して、差異はほとんどみられなかった。1000 N 負荷時の負荷方向変位は、Case 2 と Case 3 とともに約 0.07 mm であったのに対し、解析値では約 0.06 mm であったことから、試作品は設計の剛性を概ね実現できていた。歪の測定値（図 5 (a)）は荷重の増加に対して直線的に立ち上がっていることから、フックの法則が適用できるとみなし、表 1 のヤング率を用いて歪測定箇所での応力を計算すると、1000 N 負荷時の応力は約 40 MPa と見積もられ、これも図 2 の解析値と概ね整合していた。

図 5 (b) から、Case 2 と Case 3 では、塑性変形（残留変位）が大きく増加し始める荷重値もほぼ同程度（2500～3000N）であったが、破壊荷重（最大荷重）は Case 3 の方が約 15% 大きかった。強度試験後の破損状況を図 6 に示すが、破壊は Case 2, Case 3 ともに、2. 2 での解析にて応力集中が示唆された箇所である、座ぐり穴の座面近傍にて生じた。破面および近傍を観察した結果、

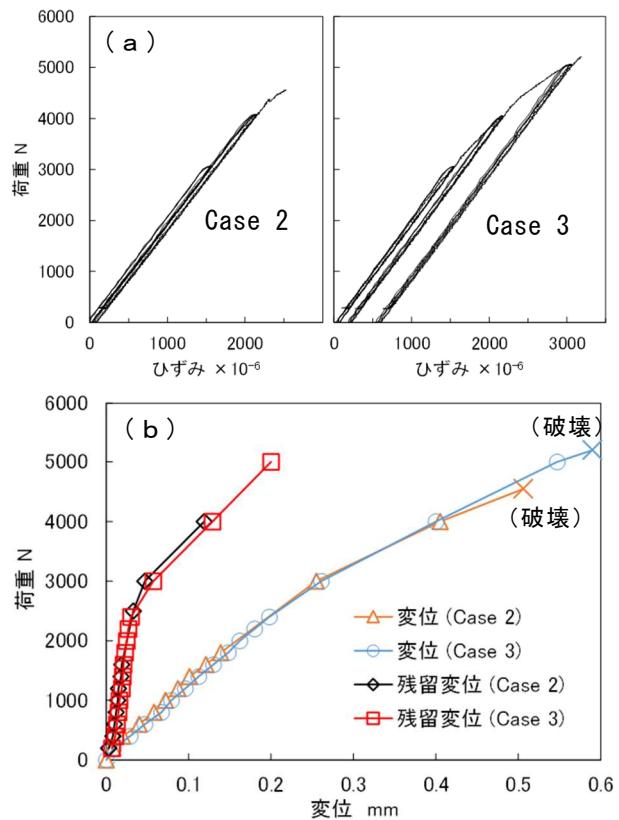


図 5 試作品に外力を負荷した際の、梁の背側の歪 (a) および、梁の先端の変位 (b)

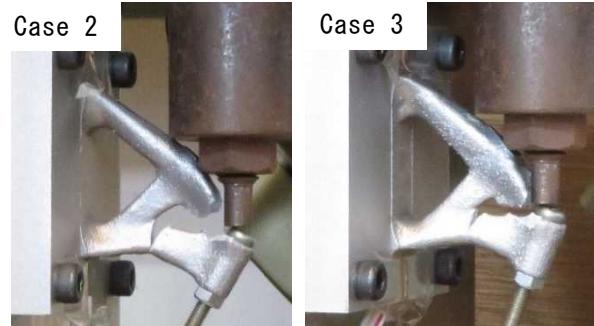


図 6 試作品の破損状況

造形欠陥はみられなかったことから、2. 2 での検討のとおり、形状の差異に由来して、Case 3 の方が実際の応力集中が比較的小さく、高い荷重負荷に耐えたものと推測される。一方で、Case 3 での破壊荷重にて歪測定位置に生じていた応力値は、図 5 (a) の歪測定値から、概ね 200 MPa であったと見積もられる。図 2 の応力解析結果では、荷重負荷時に梁のほとんどの部分には、歪測定箇所での値と同程度の大きさの応力が発生すると推定される。実体の強度試験では、この値が材料の引張強さ（表 2）の 50% に達しない程度の段階、すなわち設計上期待した耐荷重の 50% 未満で、構造体の特異部分（応力集中箇所）にて破壊が生じたことになる。従って、実製品へのトポロジー最適化設計の適用にあたっては、実用に十分な強度を付与するため、応力集中の発生を回避あるいは緩和する設計方法について、今後さらに検討を加える必要がある。

#### 4 結言

トポロジー最適化設計と金属積層造形を応用した高比強度な構造体の作製技術構築を目的に、片持ち梁形状の構造体をモデルケースとして、形状生成および試作と評価を行った。得られた結果を以下に記す。

- 1) トポロジー最適化設計において、形状生成の結果を初期形状に反映し、応力を負担しない領域を予め削除することで、応力分布が均一に近く、設計上の比強度が初期形状の約1.8倍となる形状を得ることができた。
- 2) オーバーハング形状および最小板厚に制約を付与して形状生成することで、粉末床溶融結合法によるサポートレスでの積層造形が可能であった。
- 3) 試作した構造体に外力を負荷した際の応力と変位は、解析値と概ね整合した。
- 4) 非設計領域との境界部には応力集中箇所が存在し、試作した構造体での破壊起点となった。

#### 参考文献

- 1) 日本溶接協会 AM部会 技術委員会 編：入門3Dプリンター技術，産報出版，152-167（2024）。
- 2) 三木隆生、古田歩、佐藤勇気、山田崇恭、泉井一浩、西脇眞二：積層造形における幾何学的制約を考慮したトポロジー最適化、日本機械学会論文集，Vol. 85, No. 874, 18-00508 (2019)。
- 3) 宮内創、高原茂幸、横田耕三：レーザ積層造形法によるSUS316造形体の作製（第3報），香川県産業技術センター研究報告，No. 18, 20-23 (2017)。
- 4) 申鉉眞、平野義鎮、轟章：トポロジー最適解のSelf-Organizing Mapを用いた探索：第1報：SOM分類結果の検証、日本航空宇宙学会論文集，Vol. 60, No. 5, 189-196 (2012)。

# フラッシュ法によるセラミックスの熱伝導率測定における表面処理の影響

片岡 良孝, 横田 耕三

フラッシュ法によるセラミックスの熱伝導率測定において、光の透過・吸収を制御する表面処理が必要であるが、測定精度を高めるため、適切な表面処理条件の構築が不可欠である。本研究では、セラミックス緻密体であるアルミナおよび窒化アルミニウムをモデルに、金蒸着および黒化膜形成の表面処理が測定結果に及ぼす影響を評価した。金蒸着膜の厚さおよび黒化剤の塗布量を増やすと光の透過を抑制可能であったが、窒化アルミニウムの厚さの薄い試料では金蒸着膜が薄いと黒化剤を過剰に塗布しなければならず熱拡散率が減少する傾向が見られた。金蒸着膜を厚くするほど少量の黒化処理で光の透過を抑制可能であり、試料の材質や厚さによって表面処理を適切に行うことで精度の良い測定が可能であることを明らかにした。

## 1 緒言

脱炭素社会の実現に向けたエネルギー効率の向上のため、高熱伝導材料や断熱材料など熱物性に優れる素材や製品の開発が活発に行われておらず、熱伝導率の評価の重要性が高まっている。セラミックスは、高硬度、耐食性、耐熱性等に優れる高機能材料であり、素材によって熱伝導率が大きく異なるため、用途に応じて断熱材や放熱基板など幅広く活用されている。熱伝導率の測定方法には、フラッシュ法、熱線法、熱流計法等があるが、高熱伝導セラミックスの測定においてはフラッシュ法が適すると考えられる。フラッシュ法は測定が比較的簡便かつ測定範囲が 0.1~2000 W/(m·K) と広く、セラミックス以外にも樹脂、金属等種々の材料の測定が可能であるなどの特長を有する。しかし、高熱伝導セラミックスは緻密で透光性を有することが多いことから、金属蒸着および黒化剤の塗布による表面処理が必要となる<sup>1)</sup>。そのため、表面処理の条件によって測定結果が大きく影響されることが課題となっている。

本研究では緻密なアルミナ基板および窒化アルミニウム基板をモデルに、金蒸着および黒化膜形成による熱拡散率の変化を詳細に評価し、フラッシュ法によるセラミックスの熱伝導率測定における適切な表面処理について検討した。

## 2 実験方法

セラミックス基板には、アルミナ（セラテックイトウ製、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 99.9mass%，厚さ 1.06 mm）および窒化アルミニウム（西村陶業製、AlN 92.9mass%，厚さ 1.00 mm, 0.65 mm, 0.38 mm）を用いた。これらの基板を 10 mm 角程度に加工し、イオンスパッタリング装置（日本電子製、JFC-1100E）によりターゲットに金を用いて蒸着を行い、基板の表裏面に金属膜を形成した。金の膜厚は、イオンミリング加工した試料を電界放出型走査電子顕微鏡（日本電子製、JSM-7001F）により観察し SEM 写真から測定した。

熱拡散率および比熱は、熱伝導率測定装置（NETZSCH 製、LFA467）により、JIS R 1611 に準じて測定した (n=3)。測定温度は 25°C、雰囲気は大気とし、他の測定条件は表 1 の通りとした。透光性の影響は、試料の温度上昇曲線

の最大値と定常温度との差 ( $\Delta T_m$ ) と試料表面で吸収されずに透過および散乱されたパルス光によって生じる温度上昇曲線の変動 ( $\Delta T_f$ ) の比  $\Delta T_f / \Delta T_m$  により評価した。熱拡散率測定の黒化処理にはグラフェンスプレー（ネット・ジャパン製、黒化剤（グラフェンナノプレートレット））を用い、その塗布量は電子天秤による重量測定で評価した。比熱は、参照試料にパリオセラム（NETZSCH 製、厚さ 1 mm）を用い、グラファイトスプレー（CRAMOLIN 製、GRAPHIT）で黒化処理し、試料交換方式で測定した。熱伝導率は、熱拡散率、比熱およびかさ密度の積より算出した。かさ密度は真空法（JIS R 1634）に準じて測定した。

表 1 各試料の測定条件

材料	厚さ mm	電圧 V	パルス幅 μs
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.06		300
AlN	1.00	230	100
AlN	0.65		50
AlN	0.38		30 (20~60)

## 3 実験結果

### 3. 1 金属膜形成による $\Delta T_f / \Delta T_m$ の変化

図 1 に厚さ 1 mm のアルミナおよび窒化アルミニウムの温度上昇曲線を示す。金蒸着を行わず表裏面に薄く黒化処理したアルミナ（グラフェン重量約 0.2 mg）は、パルス光の照射後、温度変化のシグナルに光の透過による突出したノイズ（初期ノイズ）が観測されたのち負の値となっており正確な熱拡散率の算出はできない。黒化膜を薄く均一に成膜する表面処理後も透光性が無視できない試料については、 $\Delta T_f / \Delta T_m$  が 0.05 (5%) 以下になるように金などの金属膜を蒸着してから黒化膜の成膜処理を行なう必要があり<sup>1)</sup>、本研究の試料も金属膜の蒸着を行う必要があると考えられる。金蒸着を行ったアルミナはシグナルが負の値にならず、最小二乗法の理論式とある程度フィッティングして解析が可能となっている。図 2 に各試料の金の膜厚と  $\Delta T_f / \Delta T_m$  の関係を示す。ここで示した膜厚は表裏面の合計であり、 $\Delta T_f / \Delta T_m$  は黒化処理を行なう評価したものである。金の膜厚の増加とともに  $\Delta T_f / \Delta T_m$  は減少している。金属膜が形成されたことで光が

反射し、透過するパルス光が減少するためと考えられる。厚さ 1 mm のアルミナと窒化アルミニウムを比較すると、窒化アルミニウムの方が  $\Delta T_f / \Delta T_m$  は大きくなっている。これは窒化アルミニウムの方が高熱伝導であり、図 1 に示したように試料の温度上昇速度が速く、温度上昇曲線への初期ノイズの重なりが大きくなるためと考えられる。図には示さないが、窒化アルミニウムが薄くなると温度上昇速度は更に速くなるため、同様の理由で  $\Delta T_f / \Delta T_m$  が大きくなっていると考えられる。また、試料が薄くなると試料に吸収される光が減少し、初期ノイズが大きくなると推察される。

### 3. 2 黒化処理による $\Delta T_f / \Delta T_m$ と熱拡散率の変化

図 3 (a) に金蒸着後のアルミナ厚さ 1 mm の表裏面に黒化剤（グラフェン）を塗布し測定した重量増加と  $\Delta T_f / \Delta T_m$  の関係を示す。 $\Delta T_f / \Delta T_m$  は黒化剤の重量増加に伴い小さくなっている。パルス光が吸収され透過光が減少していると考えられる。金蒸着膜の厚い方が少ない黒化剤の塗布量で  $\Delta T_f / \Delta T_m$  が小さくなっている。図 3

(b) は  $\Delta T_f / \Delta T_m$  と熱拡散率の関係であり、いずれも  $\Delta T_f / \Delta T_m$  が減少すると熱拡散率は減少している。漏れ光が現れると熱拡散率の信頼性が低下するため、漏れ光ができるだけ小さくする必要がある<sup>1)</sup> ことから、 $\Delta T_f / \Delta T_m$  をゼロに近づけるのが望ましいと考えられる。透過光が減少し温度上昇曲線の初期ノイズが小さくなることで、最小二乗法で熱拡散率を算出する際の温度上昇曲線と理

論式との 2 乗偏差が小さくなり熱拡散率の測定精度が向上していると推察される。 $\Delta T_f / \Delta T_m$  の減少に対する熱拡散率の減少傾向の差は、金の膜厚の差によらずほとんど認められないが、金の膜厚 0.06 μm の試料は  $\Delta T_f / \Delta T_m$  を本研究の範囲よりも小さくするには更に黒化剤を塗布する必要がある。後述する過剰な黒化処理の影響を考えると、ある程度の金の膜厚が必要であり、厚さ 1 mm のアルミナにおいては金の膜厚は 0.12 μm 必要と考えられる。

次に、窒化アルミニウム厚さ 1 mm の  $\Delta T_f / \Delta T_m$  と熱拡散率の関係を図 4 に示す。アルミナと同様に、 $\Delta T_f / \Delta T_m$  が小さくなると熱拡散率は小さくなっている。黒化処理を少なくしつつ  $\Delta T_f / \Delta T_m$  が最も小さくなったのは金の膜厚 0.21 μm の試料であった。図 5 の窒化アルミニ

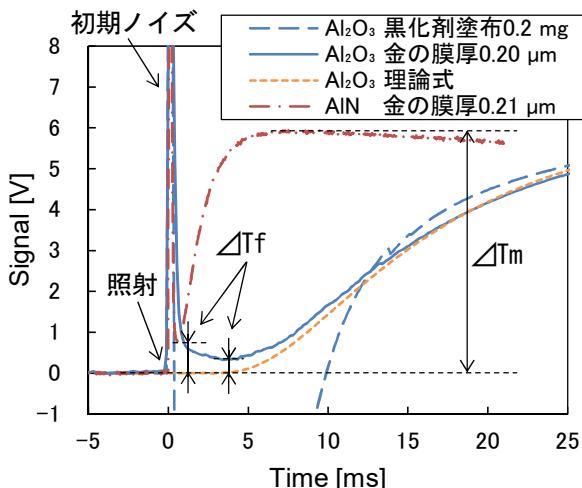


図 1 厚さ 1 mm の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  および  $\text{AlN}$  の温度上昇曲線

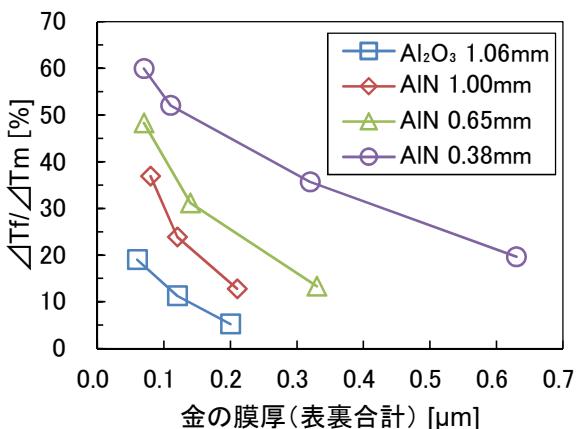


図 2 各試料の金の膜厚および  $\Delta T_f / \Delta T_m$  の関係

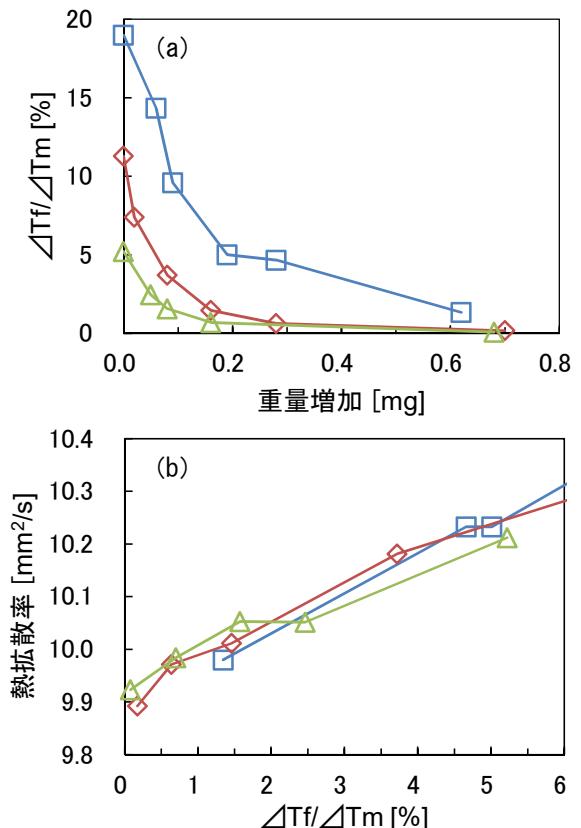


図 3  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の (a) 黒化剤塗布による重量増加と  $\Delta T_f / \Delta T_m$  の関係、(b)  $\Delta T_f / \Delta T_m$  と熱拡散率の関係 (金の膜厚 □ : 0.06 μm, ◇ : 0.12 μm, △ : 0.20 μm)

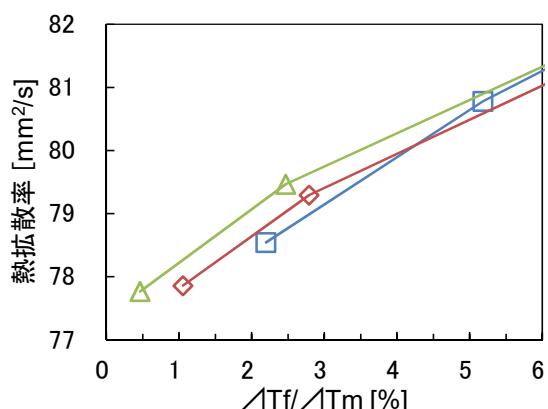


図 4  $\text{AlN}$  厚さ 1 mm の  $\Delta T_f / \Delta T_m$  と熱拡散率の関係 (金の膜厚 □ : 0.08 μm, ◇ : 0.12 μm, △ : 0.21 μm)

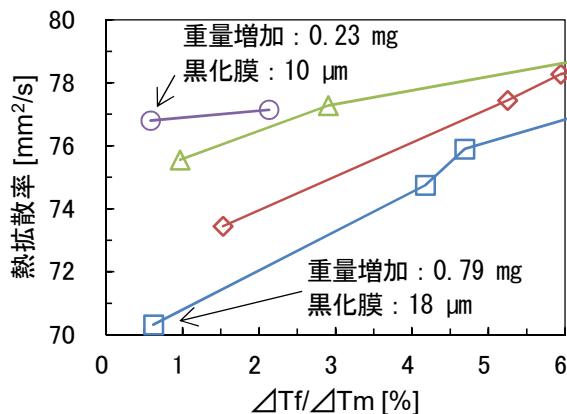


図5 AlN厚さ 0.38 mm の  $\Delta T_f / \Delta T_m$  と熱拡散率の関係(金の膜厚 □ : 0.07  $\mu\text{m}$ , ◇ : 0.11  $\mu\text{m}$ , △ : 0.32  $\mu\text{m}$ , ○ : 0.63  $\mu\text{m}$ )

ウム厚さ 0.38 mm では、金の膜厚によって熱拡散率に差が認められる。金の膜厚 0.07  $\mu\text{m}$  と 0.63  $\mu\text{m}$  の試料を比較すると、 $\Delta T_f / \Delta T_m$  を 0.6 にするために必要な黒化剤の塗布量が大きく異なり、マイクロメータで測定した試料の厚さの増加量はそれぞれ 18  $\mu\text{m}$  と 10  $\mu\text{m}$  (もとの試料の厚さの 4.8% と 2.7%) であった。金は膜厚 0.63  $\mu\text{m}$  でも試料の厚さの 0.17% と無視できるほど薄く、熱伝導率は 310  $\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})^2$  であり試料よりも大きいことから、黒化膜の厚さの差が熱拡散率低下の一因と推察される。過剰な黒化膜形成により熱の伝わり方がどのように変化しているか本研究では検討しないが、黒化剤の塗布量は少ない方が望ましく、特に厚さの薄い試料ほど相対的にこの影響を受けやすくなるため注意が必要と考えられる。窒化アルミニウム厚さ 0.65 mm については図示しないが、厚さ 0.38 mm と同様に金蒸着膜が薄いと熱拡散率の低下傾向が認められ、少量の黒化処理で  $\Delta T_f / \Delta T_m$  を小さくするには金の膜厚が 0.33  $\mu\text{m}$  程度必要と考えられた。以上のことから、 $\Delta T_f / \Delta T_m$  をゼロに近づけつつも、過剰な黒化処理による熱拡散率の低下を抑えられる最低限の黒化膜の厚さにすることが望ましく、高熱伝導かつ厚さの薄い試料ほど、金属膜を厚くする必要があると考えられる。

図6に窒化アルミニウム厚さ 0.38 mm、金の膜厚 0.63  $\mu\text{m}$ 、黒化剤塗布による重量増加 0.23 mg の試料を用い、パルス幅を 20~60  $\mu\text{s}$  に変化させたときの  $\Delta T_f / \Delta T_m$  と熱拡散率を示す。パルス幅が小さいほど  $\Delta T_f / \Delta T_m$  は小さく、熱拡散率は大きくなっている。パルス幅を小さくすることで、フラッシュランプの照射と温度上昇曲線の重なりの影響が小さくなつたと推察される。本研究で用い

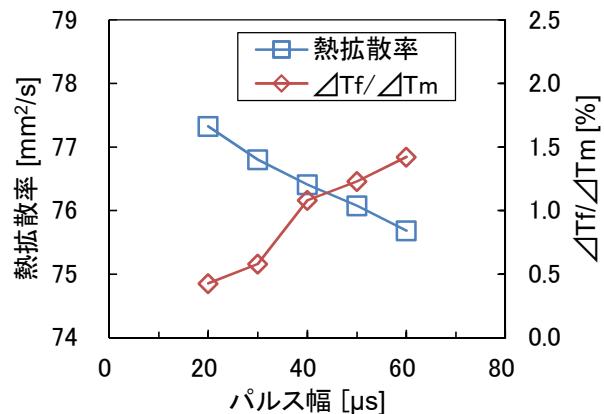


図6 パルス幅と熱拡散率および  $\Delta T_f / \Delta T_m$  の関係 (AlN 厚さ 0.38 mm, 金の膜厚 0.63  $\mu\text{m}$ , 黒化剤塗布による重量増加 0.23 mg)

た装置の設定可能なパルス幅は 20  $\mu\text{s}$  が下限のため更なる検討はできないが、高熱伝導材料を精度よく測定する際は、よりパルス幅を小さくするか、この影響が無視できるよう試料を厚くする必要があると考えられる。

### 3.3 热伝導率の算出結果について

比熱は、アルミナは 0.759  $\text{J}/(\text{g}\cdot\text{K})$ 、窒化アルミニウムは 0.724  $\text{J}/(\text{g}\cdot\text{K})$  であり、かさ密度は、アルミナは 3.933  $\text{g}/\text{cm}^3$ 、窒化アルミニウムは 3.323  $\text{g}/\text{cm}^3$  であった。なお、窒化アルミニウムの比熱およびかさ密度は、厚さ 1 mm の試料で測定したものであり、厚さ 0.65 mm および 0.38 mm の試料にはこの値を適用した。フラッシュ法による比熱測定では、測定試料と参照試料の厚さを揃えた方が精度は良いとされているためである<sup>3)</sup>。最低限必要と考えられた金蒸着膜の厚さを形成した試料について  $\Delta T_f / \Delta T_m$  が最も小さいときの熱拡散率を用いて算出された熱伝導率を表2に示す。セラミックスは不純物や微構造等の影響により同系統の材料でも熱伝導率は大きく異なる場合がある<sup>4~6)</sup>。本研究で使用した試料の真の熱伝導率は不明であるが、適切な表面処理によって窒化アルミニウムは厚さによらず同程度の測定結果が得られていることから、ある程度信頼のおける結果が得られたと考えている。一方で、金蒸着膜厚さ 0.63  $\mu\text{m}$  を形成するために本研究では合計 120 分の金蒸着時間を要しており、時間や蒸着用の金属のコストの観点から現実的ではないと考えられる。表2に窒化アルミニウム厚さ 0.38 mm、金の膜厚 0.07  $\mu\text{m}$ 、黒化剤塗布による重量増加 0.79 mg の試料の熱伝導率算出結果を示している。金の膜厚が不十分で過剰な黒化処理を行った場合、約 9% の差が生じる可能性があることを考慮し測定する必要がある。

表2 各試料の熱伝導率測定結果

材料	厚さ mm	金の膜厚 $\mu\text{m}$	$\Delta T_f / \Delta T_m$ %	熱拡散率 $\text{mm}^2/\text{s}$	比熱 $\text{J}/(\text{g}\cdot\text{K})$	かさ密度 $\text{g}/\text{cm}^3$	熱伝導率 $\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$
アルミナ	1.06	0.12	0.2	9.89	0.759	3.933	29.5
窒化アルミニウム	1.00	0.21	0.5	77.77	0.724	3.323	187.1
	0.65	0.33	0.2	77.71			187.0
	0.38	0.63	0.4*	77.32**			186.0
	0.38	0.07	0.6	70.32			169.2

\*パルス幅 20  $\mu\text{s}$  での測定結果.

#### 4 結言

フラッシュ法によるセラミックスの熱伝導率測定において、緻密なアルミナ基板および窒化アルミニウム基板をモデルに金蒸着および黒化膜形成による表面処理が測定結果に及ぼす影響を評価し、以下の知見を得た。

(1) 試料表面への金蒸着および黒化膜形成により光の透過を抑制可能であり、金蒸着膜の厚い試料の方が少ない黒化剤の塗布量で $\angle Tf/\angle Tm$  を小さくできる傾向にあった。

(2) 厚さの薄い試料では金蒸着膜が薄いと黒化剤の塗布量が多くなり、金の膜厚が十分な試料に比べ熱拡散率が小さくなる傾向にあった。これは黒化膜が厚くなつたことが一因と推察され、本研究では熱伝導率に約9%の差が生じた。過剰な黒化処理による熱拡散率の低下を抑えられる最低限の黒化膜の厚さにすることが望ましく、高熱伝導で厚さの薄い試料ほど金蒸着膜を厚くする必要があった。

(3) 高熱伝導で厚さの薄い試料では、パレス幅を小さくすると $\angle Tf/\angle Tm$  が小さくなり測定精度が向上すると推察された。

試料の材質や厚さによって表面処理を適切に行うこと

で精度良く熱伝導率測定が可能と考えられた。高機能セラミックスの熱伝導率を精度良く測定することで、今後の材料開発および技術支援に役立てたい。

#### 参考文献

- 1) 日本産業規格 JIS R 1611 (2010)
- 2) 日本化学会編: 化学便覧 基礎編 II, 丸善, P499, (1966)
- 3) 荒川 裕也, 稲田 博文, 高石 大吾: 热物性計測技術の高度化—フラッシュ法比熱測定の高精度化における試料性状に関する研究—, 京都市産業技術研究所 研究報告 No. 8, 58-59 (2018).
- 4) 篠崎 和夫, 水谷 惟恭, 澤田 豊: AlN 焼結体中の不純物酸素と熱伝導, セラミックス, 25, 1055-1059, (1990).
- 5) 岡本 正英, 荒川 英夫, 大橋 正文, 萩原 寛: AlN 焼結体の熱伝導率に及ぼす微構造の影響, J. Ceram. Soc. Jpn., 97, 1478-1485 (1989).
- 6) 山本 泰幸: 高放熱基材としての AlN 材料, 表面技術, 62, 443-447 (2011).

# 水稻栽培用被覆肥料の開発（第1報）

藤本 啓資, 白川 寛

現在市販されている被覆肥料は、使用後に被覆殻がマイクロプラスチック化する点や水中で肥料成分が早期に溶出するため用途が限定されるという課題がある。そこで本研究では、環境負荷が小さく水中で肥料成分の溶出を長期間抑制することができる水稻栽培用被覆肥料の作製について検討した。その結果、顆粒尿素を生分解性のあるパラフィンと環境中に豊富に存在する物質である二酸化ケイ素の2層で被膜することで、肥料成分の溶出抑制効果の高い被覆肥料が作製できた。また、有機物を生分解する微生物を混合した水中に作製した被覆肥料を浸漬させたところ、被覆肥料中の顆粒尿素が少なくとも2週間保持されることが分かった。

## 1 緒言

近年、日本の農業は就農人口の減少や就農者の高齢化という深刻な課題に直面しており、農作業の省力化が求められている<sup>1)</sup>。その一環として化成肥料を透水性の低い樹脂膜でコーティングした被覆肥料の利用が進められている。被覆肥料は肥料成分の溶出を抑制することで、1回の施肥で長期間肥効を維持できるため、施肥回数の削減による省力化が実現できる優れた製品である。しかし、現在市販されている被覆肥料の多くはポリエチレンやポリウレタンなどの合成樹脂が被覆膜として使用されているため、使用後マイクロプラスチック化し生物や環境へ悪影響を与えるという課題がある<sup>2)</sup>。特に日本の水稻栽培においては被覆肥料が盛んに利用されており、使用後の被覆膜が排水とともに環境中に流出することが問題視されている。現在は捕集ネット等の対策が取られているが、完全な流出防止にはつながっておらず、根本的な対策が必要とされている<sup>3)</sup>。

このような背景のもと本研究では、農作業の省力化と環境負荷低減の両立を目的として、水稻栽培に利用可能な低環境負荷型被覆肥料の開発について検討したので報告する。

## 2 実験

### 2. 1 油脂被膜した被覆肥料の作製

本研究では、尿素を被覆肥料に用いることとした。尿素は水に溶けやすいため肥効に即効性があり、また化学的に中性であるため時期や環境を選ばずに施用できることから、水稻栽培において良く使用される肥料である。一方で、水に溶けやすく圃場から流出しやすいため、肥料が必要な時期に合わせて何度も追肥を行う必要があり、作業者の負担となっている。そこで、一度の施肥で長期間肥効が持続するように、尿素の溶出を抑制した被覆肥料が作製できれば、施肥回数の削減による省力化が見込めると考えて検討を行った。

尿素を被覆する材料としてパラフィンを用いた。パラフィンは石油から得られる飽和炭化水素であるため撥水性が高く、比較的の融点が低いため加工しやすいメリットがある。尿素はわずかな水分と反応するため、撥水性の

高い材料で被覆することで水の浸透を防ぎ、溶出を抑制することが狙いである。また、パラフィンは自然環境中の生分解性を持っており、農薬の展着剤として使用されている実績があることから、作物や土壤に対して悪影響を及ぼす可能性は低いと考えられる。これらの理由から、尿素をパラフィンで被膜した被覆肥料の作製について検討を行うこととした。

以下の手順で被覆肥料を作製した。

- (1) シャーレにパラフィン(融点 68~70°C, 富士フィルム和光純薬(株))5 g を量り取り、ホットプレートで 100°C に加熱し溶解させた。
- (2) 溶解したパラフィンに顆粒尿素(Φ1~3 mm, 朝日アグリア(株))を浸漬させた後、取り出して放冷し被覆肥料を作製した。以下作製した被覆肥料を試作肥料 1 と記載する。

試作肥料 1 を水に浸して尿素の溶出を確認するために以下の実験を行った。試作肥料 1 を蒸留水に浸漬させ、22°C に設定した恒温槽で 2 週間静置した。試作肥料 1 を蒸留水から取り出して風乾させた後、重量を測定した結果、浸漬前の重量は 78.6 mg、浸漬後は 77.9 mg だった。比較のために、80 mg の顆粒尿素を蒸留水に浸漬させたところ、すべての尿素が即座に溶解したことから、尿素をパラフィンで被覆することで溶出を抑制できることがわかった。

次に、試作肥料 1 の実使用環境での尿素溶出を確認するための実験を行った。圃場には有機物を分解する微生物が存在するため、パラフィン被膜が分解されて尿素が溶出しやすくなると考えられる。そこで蒸留水に微生物を混合した溶液に試作肥料 1 を浸漬し、重量の変化を測定した。実験は以下の手順で行った。蒸留水 1 L に対して、微生物源として活性汚泥 10 ml を加えた水溶液を調製した。水溶液に試作肥料 1 を浸漬させ、22°C に設定した恒温槽で 2 週間静置した後取り出して重量を測定した。ここで活性汚泥とは、下水処理場や浄化槽などで汚水中の有機物を分解するために使用される微生物塊(汚泥)のことである。浸漬開始から 2 週間後に試作肥料 1 を取り出すと、被膜が小片状に崩壊し内部の尿素がすべて溶出していった。このことについて、微生物によるパラフィンの生分解性を確認するために以下の BOD 試験を行

った<sup>4)</sup>。活性汚泥の濃度が 30 mg/l になるように調製した水溶液 200 ml を試験用褐色瓶(510 ml)に量り取り、試料としてパラフィンを 20 mg 加えた。試験瓶の口に、二酸化炭素吸着材として顆粒の水酸化ナトリウム 3 粒を加えたゴムスリープを取り付け、その上から閉鎖呼吸計を取り付けて試験瓶を密栓した。試験瓶を 22°C に設定した恒温機の中で攪拌し、30 日間 BOD 値の測定を行った。ここで BOD 値とは、微生物が有機物（試料）を分解する際に消費した酸素量のことである<sup>4)</sup>。また、対照試料として生分解度既知の粉末セルロース 20 mg を用いて同様の試験を行った。

パラフィンの BOD 試験結果について図 1 に示す。グラフの横軸は試験日数であり、縦軸は測定した BOD 値と式(1)から算出した試料の生分解度である。

生分解度 (%) =

$$\frac{(\text{試料の BOD 値} - \text{空試料の BOD 値}) \times \text{試験溶液の容量(L)}}{3.45 \times \text{添加した試料の質量(mg)}} \quad (1)$$

図 1 のグラフより、パラフィンは試験開始から 3~4 日で生分解が始まり、30 日で約 20% 生分解されることが分かった。微生物を混合した水溶液中で試作肥料 1 から尿素が溶出したことは、パラフィンが分解されて被膜に亀裂が発生し、水が尿素に浸透したことによるものと考えられる。

以上の結果から、少なくとも肥効を維持したい期間中は、被覆膜材料が微生物による分解を受けないことが望ましいと考えられる。微生物による生分解は外部から制御することが難しいため、いったん分解が始まると、パラフィンのように尿素が短期間で溶出すると考えられるためである。一般的な水稻栽培においては、肥料成分の溶出が約 60 日から 100 日継続することが求められる。よって、水稻栽培に用いる被覆肥料を作製するためには、少なくとも約 60 日間微生物によって分解されない被覆膜材料を選択する必要があると考える。

## 2. 2 難分解性材料で被膜した被覆肥料の作製

前項の結果より、微生物によって生分解を受けやすい材料では尿素の溶出を抑制することが難しいと分かった。そこでパラフィン被膜の上に、二酸化ケイ素を被覆することで溶出を抑制できないか検討した。二酸化ケイ素は砂や石英の主成分であるため、微生物によって分解されにくいものと考えられ、また、自然界に豊富に存在する

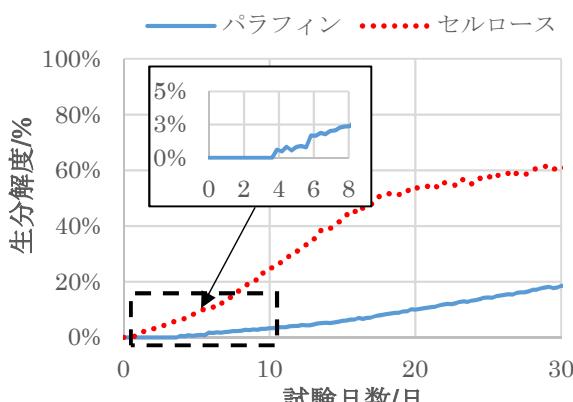


図 1 パラフィンの生分解度

物質であるため、環境を汚染する可能性が低いと考えられることが理由である。

以下の手順で被覆肥料を作製した。

- (1) 蒸留水を用いて調整した 2 wt% アルギン酸ナトリウム ((株)キミカ) 水溶液を、試作肥料 1 (パラフィン被覆した尿素肥料) に噴霧した。
- (2) 粉末ゼオライト (合成ゼオライト, A-3, 粉末, 0.15 mm(100 mesh) 通過, 和光純薬(株)) を (1) の試作肥料 1 全体にまぶした後、60°C で 1 時間加熱乾燥させた。ゼオライト粉末は、パラフィン膜と二酸化ケイ素膜の密着性を向上させる目的で用いた。
- (3) 蒸留水 5 ml に KBM403(信越化学工業(株)) 2 ml を混合させ、0.5 N 塩酸水溶液を数滴加えた。液全体が白濁した状態から無色透明になるまで攪拌した後、スノーテックス 30 (日産化学(株)) を 1 ml 添加し 10 分間攪拌した。
- (4) (3) で調整した水溶液に、(2) の乾燥させた試作肥料 1 を浸漬させた後取り出し、60°C で 8 時間加熱乾燥させ被覆肥料を作製した。以下作製した肥料を試作肥料 2 と記載する。

試作肥料 1 と 2 について、被膜の状態を確認するために、FT-IR (ALPHA, ブルカ一・オプティクス), 走査型電子顕微鏡 (SU3500, (株)日立製作所, 以下 SEM と記載する。) およびエネルギー混合型 X 線分光装置 (Octane Elect, AMETEK(株), 以下 EDX と記載する) を用いて分析を行った。

ATR 法により、試作肥料 2, パラフィン, (3) で調整した液をアルミ箔上で乾燥させたものについてそれぞれ測定した結果を図 2 に示す。図 2 の測定結果より、試作肥料 2 と (3) 液を乾燥させたもののスペクトルがほぼ一致した。また、図 2 の試作肥料 2 のスペクトルにおいて、2800–3000 cm<sup>-1</sup>, 1350–1500 cm<sup>-1</sup> 等のパラフィンに由来するピークは極めて小さい。次に、試作肥料 1, 試作肥料 2 について SEM および EDX 観察した結果を図 3 に示す。図 3 右上の SEM 観察結果より、いずれの肥料においても、被膜の表面にクラックやピンホールなどの欠陥は見られず、肥料全体が被膜されていることがわかった。次に図 3 の EDX の結果から、試作肥料 1 ではパラフィン被膜由来と考えられる炭素が主に検出された。微量の窒素と酸素は、被膜下の尿素を検出したものと考えられる。それに対して試作肥料 2 では主にシリコンと酸素が検出された。これはパラフィン膜表面の二酸化ケイ素膜に由来するものであると考えられる。以上の分析

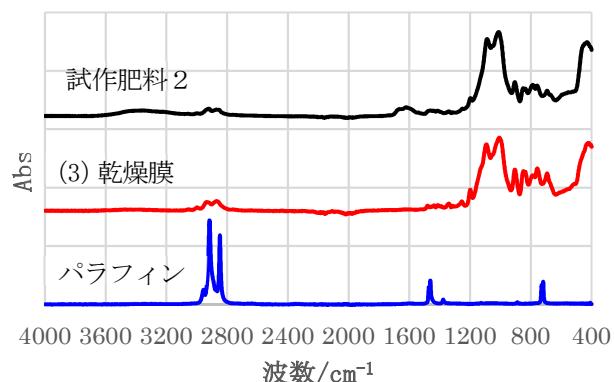


図 2 ATR 法による吸収スペクトル分布

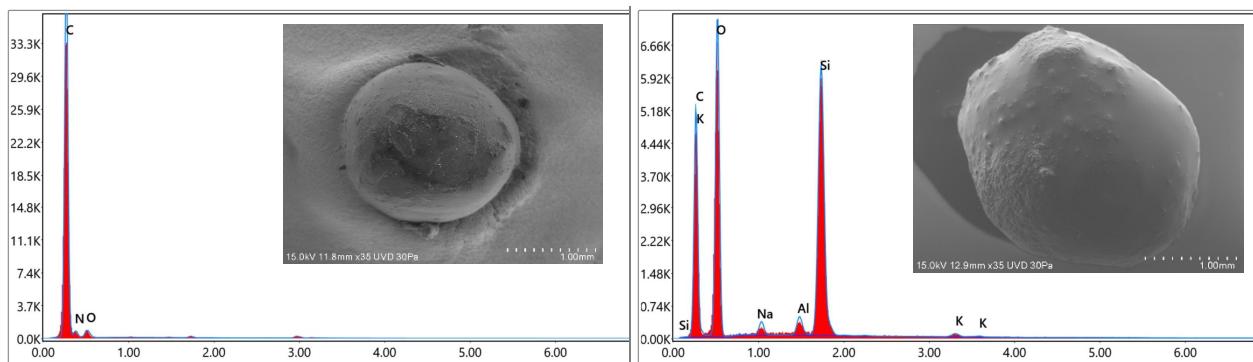


図3 SEM, EDXによる観察結果((左)試作肥料1、(右)試作肥料2)

結果より、肥料表面がパラフィンと二酸化ケイ素膜で被覆されていることが示唆される。

試作肥料2の尿素の溶出について確認するために、活性汚泥を混合した蒸留水に試作肥料2を浸漬させ、浸漬前後の重量を測定した。その結果、浸漬前の重量は118.3 mg、浸漬後の重量は115.4 mgであり、少なくとも2週間重量に大きな変化は無く、微生物が存在する水中における尿素の溶出が抑制できていることがわかった。

### 3 結言

既存の樹脂製被覆肥料の代替として、低環境負荷型被覆肥料の作製について検討した。被覆材料として、生分解性を持つパラフィンと環境中に豊富に存在する物質である二酸化ケイ素を用いた。顆粒尿素をパラフィン、次いで二酸化ケイ素の2層で被覆することで、少なくとも2週間肥料の溶出を抑制できる被覆肥料が作製できた。

今後の課題として、より長期間の溶出抑制効果の確認

と、肥料成分の溶出に関して焦点を当て、一定量ずつ肥料成分が安定して溶出する方法について検討を行っていきたいと考える。

### 参考文献

- 農林水産省, 変化する我が国の農業構造, [https://www.maff.go.jp/j/wpaper/w\\_maff/r3/r3\\_h/trend/part1/pdf/c0\\_2\\_01.pdf](https://www.maff.go.jp/j/wpaper/w_maff/r3/r3_h/trend/part1/pdf/c0_2_01.pdf) (検索日: 2025.3.13).
- 高田秀重, マイクロプラスチック汚染の現状, 國際動向および対策, 廃棄物資源循環学会誌, Vol. 29, No. 4, pp. 261-269 (2018) .
- 農林水産省, プラスチック被覆肥料の被膜殻の流出防止について, [https://www.maff.go.jp/j/seisan/sien/sizai/s\\_hiryo/hihuku\\_hiryo\\_taisaku.html](https://www.maff.go.jp/j/seisan/sien/sizai/s_hiryo/hihuku_hiryo_taisaku.html) (検索日: 2025.3.13).
- 日本工業規格 JIS K 7350 (2008) .