

機関番号：17102

研究種目：基盤研究 (B)

研究期間：2008～2010

課題番号：20360306

研究課題名 (和文) 放電灯用金属 (W) - 酸化物 (SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 傾斜機能材料の開発研究課題名 (英文) Development of W-SiO<sub>2</sub>, -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Functionally Graded Materials for High-Intensity Discharge Lamps

研究代表者

中島 邦彦 (なかしま くにひこ)

九州大学・工学研究院・教授

研究者番号：10207764

研究成果の概要 (和文)：

金属Wの表面性状 (表面酸化膜)、金属WとSiO<sub>2</sub>およびAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末の混合比、水の添加量 (混合スラリーの組成) を系統的に変化させた金属-酸化物の混合スラリーを、加圧スリップキャスト法で成形することにより、任意の傾斜組成有する成形体の作製が可能となった。成形体を還元焼成と真空焼成を組み合わせた二段階で焼成することにより、W-SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>傾斜機能材料の作製に成功した。

研究成果の概要 (英文)：

W-SiO<sub>2</sub> and W-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> functionally graded materials for high-intensity quartz and alumina envelope discharge lamps were successfully achieved using a combined sedimentation and pressurized slip-casting method with uniform grading from the conductive part (W-rich phase) to the sealing part (fused silica and alumina)

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	11500000	3450000	14950000
2009年度	1400000	420000	1820000
2010年度	1400000	420000	1820000
年度			
年度			
総計	14300000	4290000	18590000

研究分野：材料物理化学

科研費の分科・細目：複合材料・物性

キーワード：放電灯、傾斜機能材料、タングステン、アルミナ、シリカ

## 1. 研究開始当初の背景

現在、高圧放電灯の発光管には、石英ガラス (水銀ランプ及びメタルハイドランプ) および透光性アルミナ (高圧ナトリウムランプ及びHCI) が用いられており、W電極から金属薄膜 (Mo, Ti, Nb など) を介して外部から通電する構造をとっており、「放電管の密閉構造」に問題を抱えている。そこで、石英ガラス発光管にはSiO<sub>2</sub>-W傾斜機能材料を、透光性アルミナ発光管にはAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-W傾斜機能材料を用いることにより、「放電管の完全な密閉構造」が

実現でき、更なる高出力化 (300W級の超高圧放電灯)、高寿命化が可能となる。

## 2. 研究の目的

本研究では、高出力の超高圧放電灯のシール構造に用いるSiO<sub>2</sub>-WおよびAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-W傾斜機能材料を、加圧スリップキャスト法により作製することを試みた。具体的には、以下の点について検討した。

(1)安定した傾斜組成を得るためのスラリー設計と加圧スリップキャスト法条件の確立に関する研究

(2)傾斜機能材料の最適焼結条件の確立に関する研究

(3)傾斜機能材料の構造欠陥・構造変化の発生要因とその抑制に関する研究

### 3. 研究の方法

#### (1) W粉末の前処理とスラリーの作製

平均粒径 $1.0\mu\text{m}$ の原料W粉末 (as-received W) を、大気雰囲気中の $200^\circ\text{C}$ で加熱して酸化させた。得られたW粉末は表面酸化W粉末 (oxidized W) とし、原料W粉末とともに実験に用いた。表面性状が異なる二種類のW粉末に超純水を加え、ハイブリッドミキサーにて1分間混合してWスラリーを作製した。

#### (2) 成形体の作製と焼成

$\text{Al}_2\text{O}_3$ 粉末および $\text{SiO}_2$ 粉末に超純水を加え、超音波分散した後、真空脱泡を行い、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ および $\text{SiO}_2$ スラリーを作製した。先に作製しておいたWスラリーの上澄み液を排水後、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ および $\text{SiO}_2$ スラリーと混合し、 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{W}$ および $\text{SiO}_2/\text{W}$ 混合スラリーを作製した。

次に、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 多孔質体を底としたアクリル製の鋳型にそれぞれの混合スラリーを充填後、所定の温度と圧力条件にて、スリップキャストを行うことで成形体を作製した。成形体を離型し、乾燥させた後、高温雰囲気調整炉で所定の条件で焼成を行った。

### 4. 研究成果

#### (1) W粉末の表面性状

図1に原料W粒子および表面酸化W粒子表面のTEM写真を示す、原料W粒子では $2\text{nm}$ 程度、表面酸化W粒子では $4\text{nm}$ 程度の酸化膜層が確認できる。これらのW粒子のXPS分析の結果から、W粒子の表面はいずれも6価の $\text{WO}_3$ で覆われていることが明らかとなった。

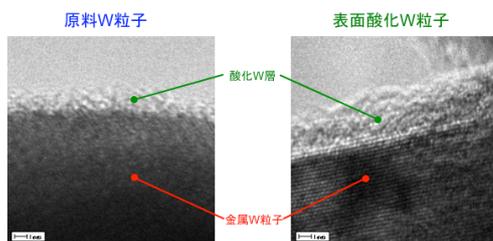


図1 原料W粒子および表面酸化W粒子表面のTEM写真

#### (2) $\text{SiO}_2$ -W傾斜機能材料

図2にスリップキャスト法により作製した $\text{SiO}_2$ -W傾斜機能材料の成形体の外観を示す。原料W粉末を用いて作製した成

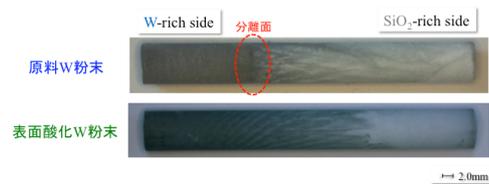


図2  $\text{SiO}_2$ -W傾斜機能材料の成形体の外観

形体は $\text{SiO}_2$ とWが分離している様子がわかる。一方、酸化W粉末を用いた成形体はW-rich側から徐々に組成が傾斜している様子がわかる。

図3に焼成体の各位置のSEM画像より求めたWの体積分率を示す。横軸は、試料のW側からの距離(L)を試料の長さ( $L_0$ )で割って試料全体を1.0に規格化した値で示している。原料W粉末を用いた焼成体では、 $L/L_0$ が $0.3$ から $0.4$ の範囲でWの体積分率が急激に変化しており、W-rich層と $\text{SiO}_2$ 層に分離していることがわかる。一方、表面酸化W粉末を用いた焼成体では、Wの体積分率が徐々に変化しており、傾斜組成化していることがわかる。

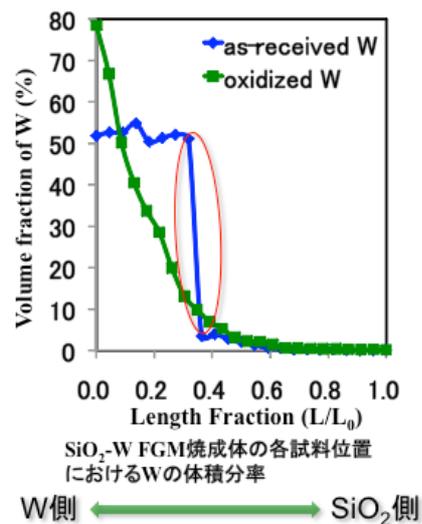


図3  $\text{SiO}_2$ -W焼成体の組成変化

#### (3) $\text{Al}_2\text{O}_3$ -W傾斜機能材料

図4に $\text{Al}_2\text{O}_3$ -W傾斜機能材料の成形体の外観を示す。 $\text{SiO}_2$ -W傾斜機能材料の成形体と同様に、原料W粉末を用いて作製した成形体は $\text{Al}_2\text{O}_3$ とWが分離しているが、酸化W粉末を用いた成形体はW-rich側から $\text{Al}_2\text{O}_3$ 側へと徐々に組成が傾斜している様子がわかる。

図5に焼成体の各位置のSEM画像より求めたWの体積分率を示す。横軸は、試料のW側からの距離(L)を試料の長さ( $L_0$ )で割って



図4 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-W傾斜機能材料の成形体の外観

試料全体を1.0に規格化した値で示している。原料W粉末を用いた焼成体では、L/L<sub>0</sub>が0.3から0.4の範囲でWの体積分率が急激に変化しており、W-rich層とAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>層に分離していることがわかる。一方、表面酸化W粉末を用いた焼成体では、Wの体積分率が徐々に変化し、傾斜組成化していることがわかる。

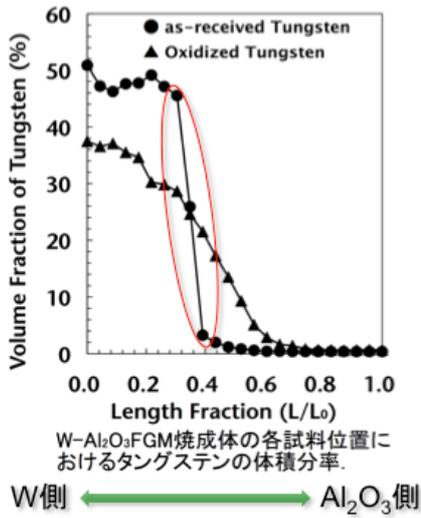


図5 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-W焼成体の組成変化

#### (4) 電気抵抗

図6に透光性アルミナ発光管を用いたFGMランプのコンセプトを、図7にAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-W傾斜機能材料の電気抵抗の測定結果を示す。

図6に示すように、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-W傾斜機能材料を放電灯のシール構造に用いることで、電気は通すが外部とは完全に隔離された放電空間を作り出すことが可能になる。すなわち、傾斜機能材料の一端はW電極と接合させるために、電気伝導体である金属Wで構成し、もう一端はAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>で構成してアルミナ発光管と溶着することにより、完全な密封系が実現できる。また、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>から金属Wへと傾斜組成が連続的に変化することにより、傾斜組成部での導電

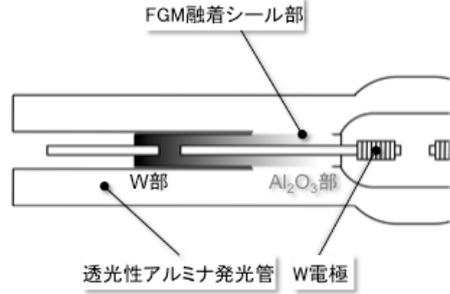


図6 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-W FGMランプのコンセプト

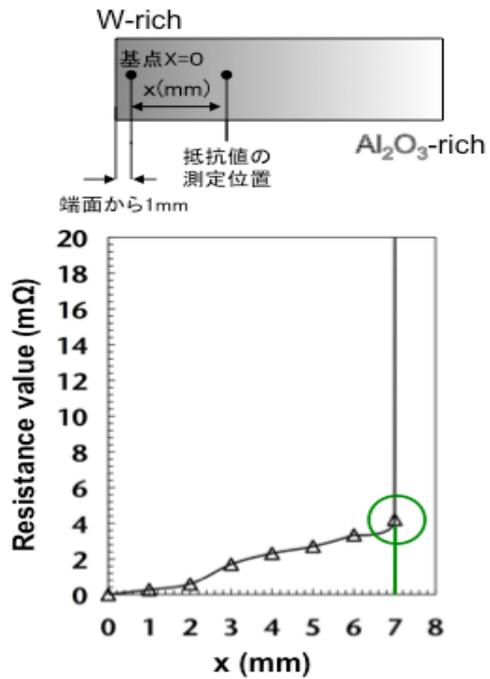


図7 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-W傾斜機能材料の電気抵抗

が可能となり、さらに熱による変形・膨張を最低限に抑えることが可能となる。

図7に示すように、本研究で作製したAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-W傾斜機能材料は、W-rich層側からAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>側に向かって7mmのところまで導電が取れており、図6に示したFGMランプの電極を兼ねた放電灯のシール材料として利用することが可能である。今後は、実際にFGMランプへの応用を検討したい。

#### (5) まとめ

SiO<sub>2</sub>-WおよびAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-W系のいずれにおいても、原料W粉末(酸化層厚さ2nm程度)を用いて作製した焼成体では、W-rich層と酸化物rich層に分離し、傾斜機能材料は作製できないことがわかった。一方、表面酸化W粉末

(酸化層厚さ4nm程度)を用いて作製した焼成体では、W-rich層側から酸化物層側へとWの体積分率が徐々に変化した傾斜機能材料を作製することができた。

W粒子はSiO<sub>2</sub>粒子およびAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子に比べて密度が高いため、酸化物粒子よりも沈降しやすいことは自明である。しかし、W粒子の表面性状(今回の場合は酸化物層の厚さ)がその沈降速度に大きな影響を与えることが明らかとなった。

今後の展開としては、スラリー中での各粒子の分散、凝集および沈降速度に影響を及ぼすと推定される粉末の粒子径やスラリーのゼータ電位等の影響を系統的に調査する必要があると思われる。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計3件)

- ① Tomoyuki KATAYAMA, Sohei SUKENAGA, Noritaka SAITO, Hajime KAGATA and Kunihiko NAKASHIMA  
“Fabrication of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-W Functionally Graded Materials by Slipcasting Method”  
Proceedings of 3rd International Congress on Ceramics, Osaka, Japan, 2010, pp.14-18.
- ② Hadi RAZAVI, Kazuhiro YAMADA, Tomoyuki TAKAYAMA, Noritaka SAITO, Kunihiko NAKASHIMA and Kenji KANEKO,  
“Fabrication and Characterization of Mo-SiO<sub>2</sub> Composite”  
International Journal of Advanced Microscopy and Theoretical Calculations, 2, 査読有, 2010, pp.248-249.

[学会発表] (計7件)

- ① Tomoyuki KATAYAMA, Sohei SUKENAGA, Noritaka SAITO, Hajime KAGATA and Kunihiko NAKASHIMA  
“Fabrication of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-W Functionally Graded Materials by Slipcasting Method”  
3rd International Congress on Ceramics, Osaka, Japan, 2010.11.14-18.
- ② Hadi RAZAVI, Kazuhiro YAMADA, Tomoyuki KATAYAMA, Noritaka SAITO, Kunihiko NAKASHIMA and Kenji KANEKO  
“Fabrication and Characterization of Mo-SiO<sub>2</sub> Composite”  
17th International Microscopy Congress, Rio de Janeiro, Brazil, 2010.9.19-24.
- ③ 片山智之, 助永壮平, 齊藤敬高,

中島邦彦

“Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-W系傾斜機能材料の作製および評価”

資源・素材2010春季大会, 東京大学, 2010.3.30

- ④ Razavi Hadi, 山田和広, 片山智之, 齊藤敬高, 中島邦彦, 金子賢治  
“Mo-SiO<sub>2</sub>複合材料の作製及び微構造解析”  
日本金属学会九州支部、日本鉄鋼協会九州支部 平成22年度共催合同学術講演会, 熊本大学, 2010.6.5.

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

ホームページ等

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

中島 邦彦 (NAKASHIMA KUNIHICO)  
九州大学・工学研究院・教授  
研究者番号: 10207764

##### (2) 研究分担者

金子 賢治 (KANEKO KENJI)  
九州大学・工学研究院・教授  
研究者番号: 30336002

##### (3) 研究分担者

齊藤 敬高 (SAITO NORITAKA)  
九州大学・工学研究院・准教授  
研究者番号: 80432855

##### (4) 研究分担者

助永 壮平 (SUKENAGA SOHEI)  
九州大学・工学研究院・助教  
研究者番号: 20432859