

1) 低温焼成磁器の製品化技術の研究

寺崎 信、堤 靖幸

本研究は低温焼成磁器の普及促進と天草未利用陶石の活用のための技術開発を目的としたもので、本年度は未利用低火度陶石の配合割合を増やした素地とそれに適合する釉薬を開発した。また、陶石精製の洗鉱残渣と粉碎粉を有効利用することにより土もの風磁器を1200°Cの本焼きで得ることができた。

1. はじめに

地球温暖化防止への社会的関心は高まっており、陶磁器産業でも地球温暖化ガスの排出抑制は取り組むべき必須課題となっている。またガス燃料が高騰しており、省エネルギー技術が求められている。一方、陶磁器の製造工程における二酸化炭素排出およびエネルギー消費の割合は焼成工程が大半を占める。そのため、二酸化炭素排出量削減と省エネルギー化には低温焼成技術の推進が重要である。

肥前地区の磁器の主原料となっている天草陶石は熊本県天草で採石されている。陶石資源の枯渇が心配されたことがあるが、埋蔵量自体は豊富である。しかし鉱脈は細長く、採石には多大な表土の除去が必要である。陶石出荷量は最盛期の1/4以下にまで減少して採石コストに占める廃土石処理の割合は増大し、陶石業の経営を圧迫していて20年ほど前には10社あった天草の陶石業者が現在では3社に減っている。この状況が続ければ現在稼働中の切羽を掘りつくした時に新しい切羽の採掘が困難となり良質な陶石の安定供給に支障が出る。陶石の鉱脈には随伴鉱物として低火度陶石と呼ばれる耐火度の低い石が含まれており、ほとんど未利用で廃土石として処理されているが、切羽によっては低火度陶石が良質の陶石よりも多いこともあり、このことが採石コストを上げる要因のひとつとなっている。低温焼成用陶土はこの低火度陶石を活用しており、低温焼成磁器の普及拡大は良質の天草陶石の安定供給の意味からも重要である。当初は地球温暖化ガス排出抑制と省エネルギーという社会的状況を背景として立ち上げた研究であったが、陶石供給の危機的状況が認識されたことにより、産地の課題としての低火度陶石の活用に重点が移っている。

現在、県内陶磁器産業で用いられている陶土や釉薬

には多くの種類があり、これらを用いて多種多様な製品が作られているが、これまで取り組んできた低温焼成磁器¹⁻⁴⁾は素材の種類が少なく、更なる広がりや事業展開には限界がある。他方、食器には付加価値を高めるために、多様な形状の器や伝統的な釉調、土ものの風合いなど製品の差別化を求めるニーズがある。また、素地の焼腰を向上できれば焼成による軟化変形が少なくなり、形状の自由度が増す。

これらのことから低温焼成磁器の普及推進を目的として低温焼成磁器において素地の焼腰の向上、土もの風磁器の開発および、それに適合した釉薬のバリエーションを拡げる研究開発を行う。昨年度までに焼腰を向上した素地の開発と土もの風合いを有する磁器の調合試験を行っている。本年度は低火度陶石の配合割合を増やした素地の開発と土もの風合いを有する磁器の開発およびそれに適合する釉薬の開発を行った。

2. 実験方法

2.1 低火度陶石を用いた素地及び釉薬試験

これまでに開発した低温焼成用陶土は低火度陶石を30~40%程度配合していた。本年度はさらに低火度陶石の利用を高めるため配合割合を増やした陶土の開発を行った。原料は低火度陶石として天草低火度酸処理陶石(浜平、皿山、木山、共立)を用い、他に天草陶石三等小粒(浜平、皿山、木山、共立)、蛙目粘土(特級)を使用した。陶石はそれぞれスタンパー粉碎、水簸、脱水を行い陶土としたものを乾燥させた粉末を用いた。小ロット(1kg程度)で試験調合を行い作成したテストピースを1200°Cで還元焼成して、曲げ強度、吸水率、および焼下り量を評価した。良好な物性を示した調合については中ロット(50kg)の泥漿を調製し、鋳込み成形による成形性および焼成温度に

より物性変化を確認した後、陶土業者に生産ロットで1トンの試験土の作製を委託した。また、この試験土に適合する釉薬の試験も併せて行った。原料は益田長石、インドソーダ長石、中国カオリン、か焼カオリン、マレーシアカオリン、珪石、石灰石、炭酸バリウム、亜鉛華、タルク、ペタライトの粉末を用い、 R_2O および RO の種類と割合、シリカ/アルミナ比などを変えて1ロット100gで調合し、試験土で作成したテストピースに施釉して1200°Cで焼成した。十分な光沢を有し、素地の熱膨張に適合する調合の中から落ち着いた色調の石灰亜鉛をベースとする釉薬を選択し、ボールミル粉碎で白釉、 Fe_2O_3 を1%添加した釉薬、 CoO を1%添加した釉薬をそれぞれ10kgずつ調製した。試験土を含水率25.5%、水ガラス0.25%で泥漿調製し、圧力鉄込みにより試作品を成形した。この試作品に今回調製した釉薬を施釉し、1200°C還元雰囲気で焼成した。

2.2 プレス土及び碎粉を用いた試作試験

原料は陶石の精製工程から排出される洗鉱残渣(通称プレス土)と3mmアンダーの粉碎微粒粉(通称碎粉)を有効利用した。これまでに調合試験を実施しており、鉄込み成形による試作試験を実施した。鉄込み泥漿は含水率33%、水ガラス0.25%に調整した。成形体は乾燥後、水拭きをした後、素焼き、呉須による下絵付けを実施した。施釉後、ガス炉による還元焼成を実施した。低温焼成が目的であるため、1170°C～1250°Cの範囲で焼成を行い、ゼーゲルコーンによる熔倒を火止めのタイミングとした。焼成体の物性評価は2.1と同様な方法で行った。

3. 結果と考察

3.1 低火度陶石を用いた試作品の製作

小ロット試験において使用した原料とその調合割合を表1に、1200°C焼成体の物性を表2に示す。曲げ強度86.51MPa、焼下り量4.6mm、吸水率0.10%と良好な物性が得られたHについて中ロット試験を行った。排泥および圧力鉄込みによる成形性は良好であった。中ロット試験での焼成温度と吸水率・嵩比重の関係を図1に示す。1148°Cでは吸水率は1%を超える焼締まつていがないことがわかる。1200°C以上の焼成温度では吸水率がほぼ無くなり、嵩比重も上がって緻密化していることが確認できる。焼成

温度と焼下り量の関係を図2に示す。1148～1290°Cの範囲において焼成温度の上昇と相関して焼下り量も大きくなっていく。1200°C付近で5mmと優秀な値を示した(天草撰中陶土の1300°C焼成体の焼下り量は7mm程度)。図3に焼成温度と曲げ強度の関係を示す。1200°C以上で80MPa弱と一般磁器並みの強度を持つ。小ロットから中ロットへのスケールアップ試験において1200°C焼成体の物性を比較したところ、ほとんど変わっていないことが確認できた。

表1 原料とその調合割合(単位:mass%)。

原 料	A	B	C	D	E	F	G	H
浜平低火度酸処理陶土	19.05	14.29	9.52	9.35	9.09	4.76	4.67	4.55
皿山低火度酸処理陶土	9.52	14.29	9.52	9.35	9.09	—	—	—
木山低火度酸処理陶土	19.05	14.29	23.81	23.36	22.73	33.33	32.71	31.82
共立低火度酸処理陶土	19.05	14.29	23.81	23.36	22.73	33.33	32.71	31.82
浜平三等小粒陶土	—	9.52	—	—	—	—	—	—
皿山三等小粒陶土	9.52	9.52	9.52	9.35	9.09	14.29	14.02	13.64
木山三等小粒陶土	9.52	9.52	9.52	9.35	9.09	4.76	4.67	4.55
共立三等小粒陶土	9.52	9.52	9.52	9.35	9.09	4.76	4.67	4.55
蛙目粘土特級	4.76	4.76	4.76	6.54	9.09	4.76	6.54	9.09

表2 1200°C焼成体の物性

物 性	A	B	C	D	E	F	G	H
曲げ強度(MPa)	78.79	73.85	78	81.77	77.03	85.29	87.62	86.51
焼下り量(mm/10cm)	6.3	6.4	6.1	5.5	4.8	5.7	5.4	4.6
吸水率(mass%)	0.08	0.10	0.16	0.12	0.18	0.11	0.10	0.10

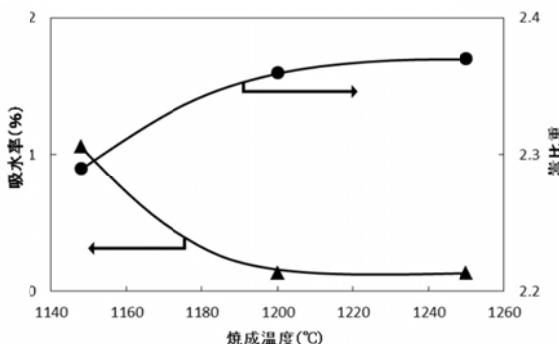


図1 焼成温度が吸水率・嵩比重に与える影響。

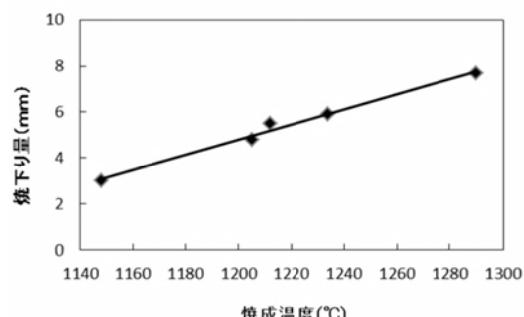


図2 試験陶土の軟化変形。

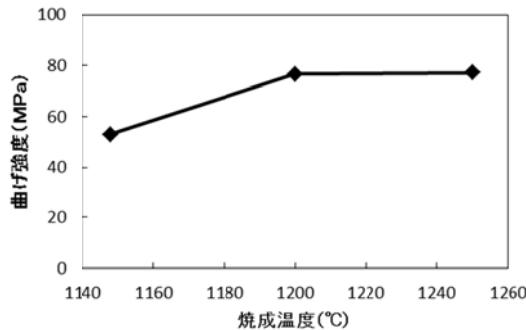


図3 焼成温度が曲げ強度に与える影響。

これらの結果から、この試験土は 1200~1250°C 程度の焼成温度に適合することがわかる。1 トンロット試験土での圧力鉄込み成形では着肉、離型などの成形性に問題は見られなかった。釉薬試験については 1200°C 焼成で十分な光沢を有した釉薬はアルカリ供給源として益田長石とペタライトを用い、RO として CaO、BaO、ZnO のうち 2 成分以上を含み、 $RO/R_2O = 3 \sim 4$ 、シリカ/アルミニナ = 8~10 の範囲の調合であった。素地の 1200°C 焼成体の熱膨張係数(30~700°C)が $8.19 \times 10^{-6}/K$ であり、それに適合する $7.05 \times 10^{-6}/K$ の熱膨張係数を持つゼーゲル式(1)の釉薬を調製し、試作品に施釉した。使用した原料と調合割合を表3 に示す。また製作した試作品を図4 に示す。

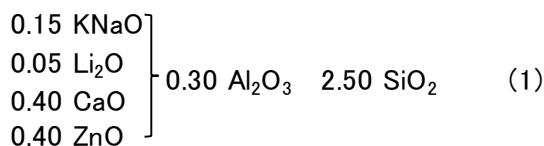


表3 釉薬原料と調合割合。

原 料	mass%
益田長石	32.7
か焼カオリン	5.2
マレーシアカオリン	3.0
石灰石	14.7
亜鉛華	12.1
ペタライト	12.0
珪石	20.3



図4 1トンロット試験土による鉄込み成形試作品。

3.2 土もの風磁器の試作

昨年度の素地試験⁵⁾では、素地 D5(プレス土 50:碎粉 30:蛙目粘土 10:益田長石 10)が有効な調合素地としていたが、製品を試作し、焼成時間も長い本焼きをすると軟化変形も大きくなつた。このため、軟化変形の改善を目的に、素地 D2 について試作試験をした。素地 D2 はプレス土 60:碎粉 30:蛙目粘土 10 の調合であるが、その軟化変形を図5に示す。軟化変形を表す焼下りは、素地 D5 の場合、SK6 の還元焼成(1200°C)で 8.4mm であるのに対し、素地 D2 では 7.2mm に向上している。また、D2 の焼成性状を図6に示す。SK6 の還元焼成で吸水率が下り、ほぼ磁器化している。嵩比重も 2.37 と緻密化していることがうかがえる。鉄込み成形で製作した素地の3点曲げ強度は 62MPa で、土ものとしては強いほうだと考えられる。

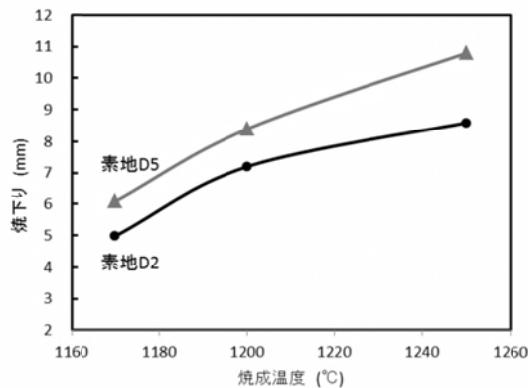


図5 本焼きによる試験素地の軟化変形。

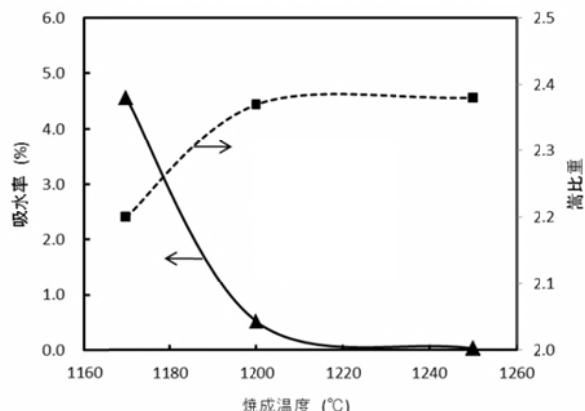


図6 本焼きによる素地D2の焼成性状

釉薬は過去に報告した⁴⁾ No276 や No281 などのバリウム系の低温釉薬も利用できると考えられるが、素地との適合性を検討する中で、ドロマイド系の No17 を使用することとした。ゼーゲル式(2)は以下のとおりである。

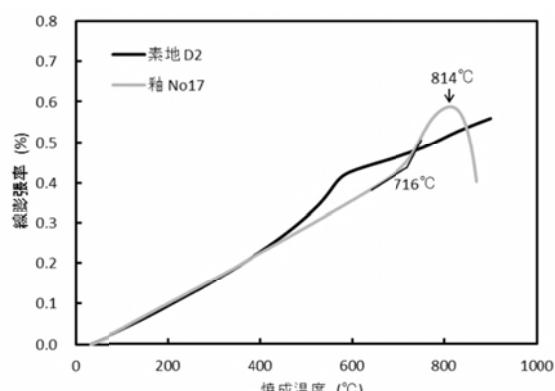
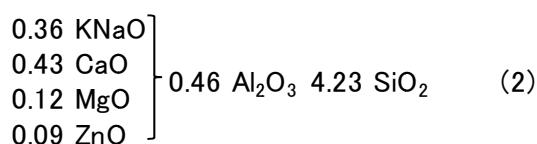


図7 素地と釉の熱膨張曲線

図7に素地D2と釉No.17の熱膨張曲線を示す。素地D2の線膨張係数(30~700°C)は $\alpha = 6.9 \times 10^{-6}/\text{K}$ であるのに対し、釉No17は $\alpha = 6.4 \times 10^{-6}/\text{K}$ である。

陶土は粘土質であるため、細工向いと思われる。やや困難と思われる鋳込み成形法により袋状の瓶を試作した。泥漿は粘調な傾向を示したが、含水率を33%と多めにすることで成形体を得ることができた。透明釉No17を施釉した試作品を図8に示すが、土ものの風合いが出ている。



図8 土もの風磁器の試作

4.まとめ

未利用低火度陶石の配合割合を増やした陶土とそれに適合する釉薬を開発した。この陶土は1200~1250°Cの焼成範囲で良好な物性を示した。また、陶石精製の洗鉱残渣と粉碎粉を有効利用することにより土もの風磁器を1200°Cの本焼きで得ることができた。

低火度陶石については肥前陶土工業協同組合と連携して低温焼成だけでなく従来の焼成温度用陶土としても活用に取り組んでいく。

参考文献

- 寺崎 信, 佐賀県窯業技術センター平成9年度業務報告書, 67-71, (1997).
- 堤 靖幸, 寺崎 信, 佐賀県窯業技術センター平成18年度研究報告書, 4-7, (2007).
- 堤 靖幸, 寺崎 信, 佐賀県窯業技術センター平成19年度研究報告書, 6-9, (2008).
- 堤 靖幸, 寺崎 信, 佐賀県窯業技術センター平成20年度研究報告書, 1-4, (2009).
- 寺崎 信, 堤 靖幸, 佐賀県窯業技術センター平成22年度研究報告書, 42-46, (2010).