

佐賀県窯業技術センター

平成29年度

研究報告書・支援事業報告書

佐賀県窯業技術センター

平成 29 年度 研究報告書・支援事業報告書

目 次

経常研究

世界最高精度・世界最高強度磁器の開発	1
数値解析による鋳込み成形のプロセスイノベーション	4

支援事業

陶土開発支援事業	8
酸処理陶石を用いた天草陶土の特性および実用性評価	
泉山陶土用釉薬の開発	12

世界最高精度・世界最高強度磁器の開発

蒲地 伸明、堤 靖幸、藤 靖之、志波 雄三、桑田 和文、山崎 加奈、西山 勝章
佐賀県窯業技術センター

2016 年に有田焼は創業 400 年の節目を迎えた。当センターでは有田焼創業 400 年事業プロジェクトの一つとして新しい陶磁器素材の開発を実施した。本研究の目的はより強い強化磁器素材の開発と、焼成時の軟化変形を防止する磁器素材の開発の 2 つであった。結果、曲げ強さ 350MPa をこえる強化磁器の開発と、焼成時の収縮・軟化変形のほとんど無い陶磁器の開発に成功した。本稿では開発した 2 つの素材の特性を中心に報告を行う。

Development of high strengthened porcelain and high precision porcelain.

Nobuaki KAMOCHI, Yasuyuki FUJI, Yasuyuki TSUTSUMI, Yuuzo SHIWA, Kazufumi KUWATA,
Kana YAMASAKI, Katsuaki NISHIYAMA
Saga Ceramics Research Laboratory

In the year 2016, Arita-ware was celebrated its 400th anniversary. This work was one of the projects of "Saga Prefectural Project to Commemorate the 400th Anniversary of the Founding of Arita Ceramics". Two purposes of this project were to develop the high strengthened porcelain and high precision porcelain. As the result, the flexural strength of the newly developed strengthened porcelain reached 350 MPa, and we were success to develop the no-shrinkage no-firing deformation porous ceramics.

1. はじめに

肥前地区の磁器製造は、工程分業が発達しており今後も産地が継続して発展していくためには商社、窯元だけでなく産地を支える陶土製造業、生地製造業も維持成長する必要があり、高付加価値製品だけでなく量産品の市場での伸びが必要である。そこで、ロット数の多い商品製造へ向けた 2 種の磁器開発を行った。

一つは強化磁器である。強化磁器食器は学校や病院、介護施設等の給食食器としてまとまったロット数の商品となることが多い。当センターでは以前より強化磁器の研究開発および業界への技術支援を行っており、現在、曲げ強さ 220MPa～260MPa 程度の製品が量産されている。本研究では更なる強化磁器の品質向上を図り市場における競争力を高めるために、曲げ強さ 330MPa を目標に強化磁器の開発を行った。

2 つ目は高精度磁器である。磁器は焼成工程において軟化変形するために高精度製品の製造のためには焼成温

度の厳密な管理が必要である。特に高台径の広い洋皿等の製造においては、軟化変形は歩留まりに直結し、比較的炉内温度差の大きいベンチュリー式の焼成炉では安定した生産を行うことが困難である。炉内における焼成温度のムラを無くするためにはローラハースキルンや強制対流炉等の窯の導入が有効な解決策ではあるが、設備投資のハードルは高い。本研究では、従来のベンチュリー式の窯を用いて高精度磁器製品を製造できるようにするために、磁器化後の軟化変形を防止し、焼成温度が変化しても製品形状が一定となる新しい磁器素地の開発を目指した。

2. 成果

2.1 強化磁器開発

図 1 に平成 15 年度業務報告書で紹介した従来型強化磁器(凡例:SPH15)、平成 17 年度に発表した強化磁器(SPH17)と本研究により開発した新強化磁器(SPH28)に対

して JCRS 203 によって行った曲げ強さ試験結果のワイブルプロットを示す^{1,2)}。SPH15 及び SPH17 は施釉試料、SPH28 は無釉試料である。いずれの試料も焼成は 1300℃還元雰囲気で行った。

SPH15 及び SPH17 の平均曲げ強さがそれぞれ 238MPa、300MPa に対して新しく開発した SPH28 は平均曲げ強さ 347MPa と大幅に向上した。一般に強化磁器においては釉層に圧縮応力を発生させることにより無釉素地よりも 10～20% 曲げ強さを向上させることが可能である²⁾。SPH28 は無釉素地の試験結果であり、施釉素地においては従来型強化磁器の 1.5 倍以上の曲げ強さを発現した。

図 2 に従来型強化磁器及び新強化磁器焼成体の鏡面研磨試料を金属顕微鏡で観察した結果を示す。図 2 から明らかなように新強化磁器では従来型強化磁器に散見される 20 μm を超えるような粗大な気孔がほとんどないことが判る。強化磁器における主要な破壊源の一つである粗大気孔を、焼結プロセスにおいてほとんど残さないことが新強化磁器の曲げ強さが大幅に向上した要因のひとつである。なお、新強化磁器陶土の中心粒径は 3.3 μm であった。

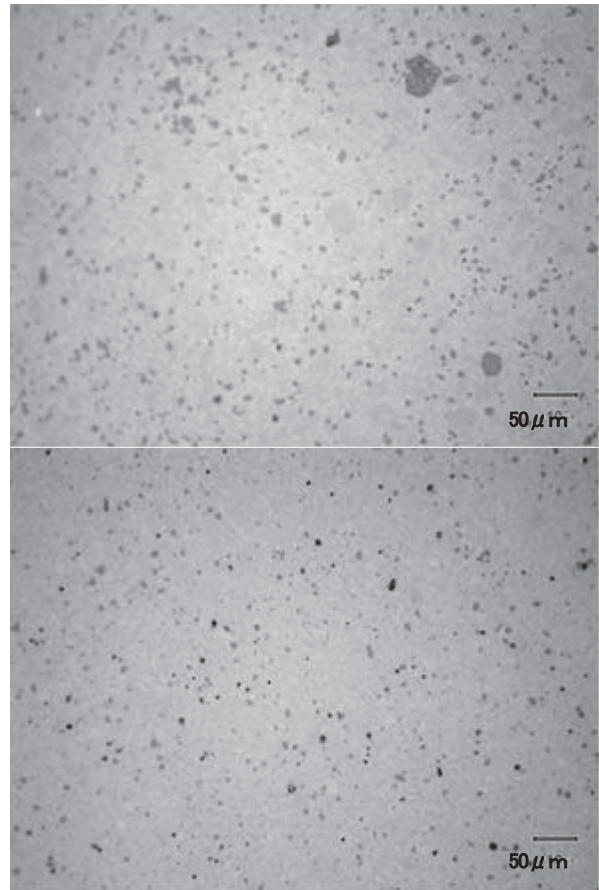


図 2 鏡面研磨試料の金属顕微鏡観察結果。
(上段: 従来型強化磁器、下段、新強化磁器)

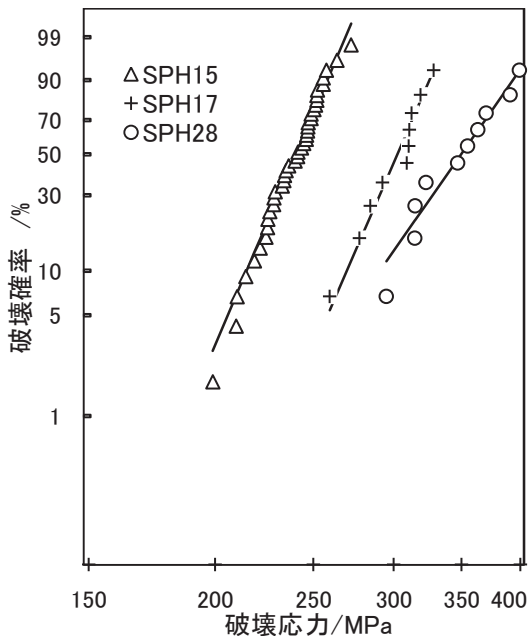


図 1 曲げ強さ試験結果のワイブルプロット。
SPH15: 従来型強化磁器 (施釉; 平均 238MPa)
SPH17: 平成 17 年開発強化磁器 (施釉; 平均 300MPa)
SPH28: 新強化磁器 (無釉; 平均 347MPa)

2.2 高精度磁器開発

高精度磁器の一例として平成 15 年度業務報告書で紹介し、平成 25 年度研究報告書でその焼結機構を報告した耐熱磁器がある^{3,4)}。この耐熱磁器は 1220℃で磁器化後 150℃を超える過焼成においても焼成変形量が変化しない、すなわち軟化変形量がこの温度帯で一定である。従って焼成温度や雰囲気が多少変化しても常に同じ形状の製品を得ることが出来る。本研究では、この耐熱磁器を高熱膨脹化することにより有田の多彩な加飾に対応出来る高精度磁器の開発を目指した。

本研究の中で、肥前地区の一般的な焼成温度帯である 1250～1320℃において焼成収縮が無く、焼成変形もほとんどない多孔質セラミックスの開発に成功した。図 3 に開発した多孔質セラミックスの 1300℃における焼成収縮の様子を、図 4 に 1300℃における焼成変形試験の結果を示す。本研究の目的である磁器ではないものの、従来の有田焼と同じ窯で混焼可能な多孔質セラミックスで無収縮、

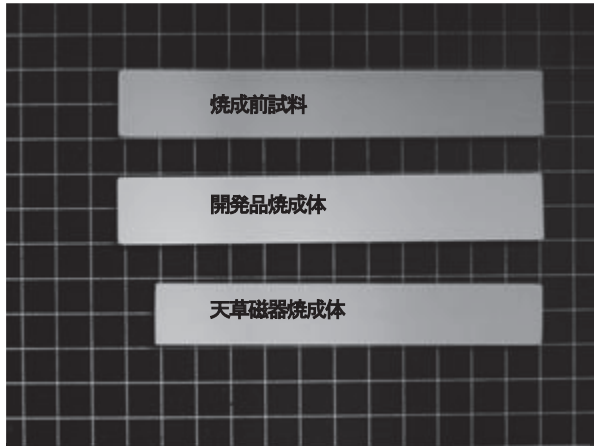


図3 焼成収縮の比較 (1300°C酸化焼成)

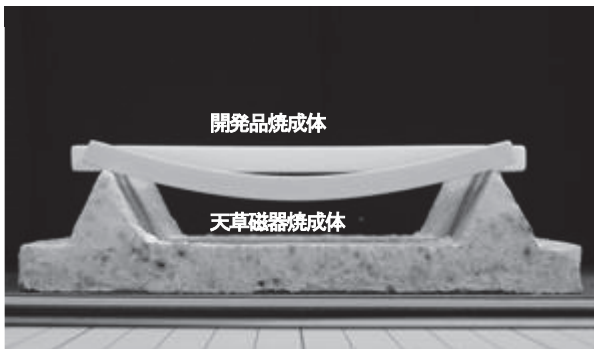


図4 焼成変形の比較 (1300°C酸化焼成;スパン 100mm)

極低変形という極めて特殊な焼成特性を持つことから、この素材も大きな市場性があると判断し製品化へ向けた開発を進めた。

図5に細孔分布測定結果の一例を示す。平均 $13\mu\text{m}$ に鋭いピークを示しており、開発した多孔質セラミックスにおける開気孔の大きさが非常に揃っていることが判る。この試料の気孔率は33%であった。また、その他の条件で作成した多孔質セラミックス(A及びB)の細孔分布特性を図6に示す。このように今回開発した多孔質セラミックスは

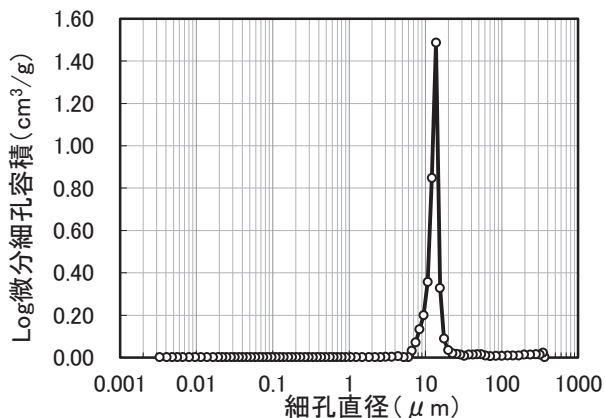


図5 開発した多孔質セラミックスの細孔分布測定結果例 (1300°C酸化焼成)

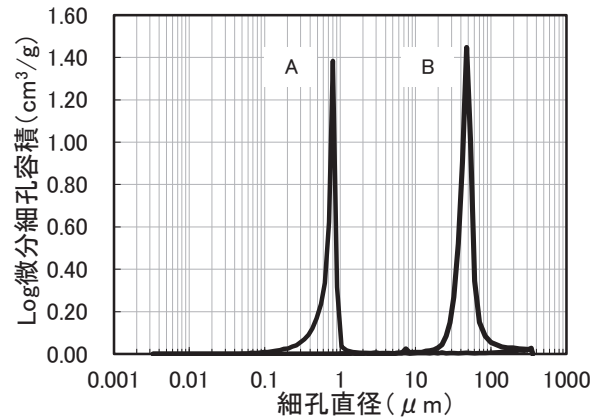


図6 多孔質セラミックスA、Bの細孔分布測定結果

A:平均細孔径 $0.6\mu\text{m}$;気孔率33%

B:平均細孔径 $40\mu\text{m}$;気孔率45%

原料の粒子径や配合比、焼成温度を変えることで気孔径や気孔率を広範囲に制御可能であることが判った。

4. おわりに

県産陶磁器の新しい市場開拓を目指し、新規陶磁器材料の開発を行った。結果、高い曲げ強さを持つ強化磁器と、極めてユニークな焼結特性を持つ多孔質セラミックスの開発に成功した。

これらの新素材に対する企業の関心は高く、発表直後から多くの問い合わせがあった。現在、強化磁器、多孔質セラミックス共に10社近くが商品化に取り組んでおり、その一部はすでに販売が開始されている。

従来の有田焼にはない特性を持ったこれらの素材は、今後の県内陶磁器産業の競争力向上に大きく寄与するものと期待される。

参考文献

- 1) 蒲地 伸明, 佐賀県窯業技術センター平成 15 年度業務報告書, 51-55 (2004).
- 2) 蒲地 伸明, 佐賀県窯業技術センター平成 17 年度研究報告書, 15-17 (2006).
- 3) 蒲地 伸明, 佐賀県窯業技術センター平成 15 年度業務報告書, 33-36 (2004).
- 4) 蒲地 伸明, 佐賀県窯業技術センター平成 25 年度研究報告書, 1-8 (2014).

数値解析による鑄込み成形のプロセスイノベーション

蒲地 伸明、山崎 加奈
佐賀県窯業技術センター

圧力鑄込み成形は肥前地区の主要な成形方法の一つであるが、製品形状によっては、高台などの成形体の肉厚部において陶土充填が不十分になり、最終製品にヒケと呼ばれる凹みが発生したり、薄肉品が脱型前に割れてしまう等の問題がある。本研究では、天草陶土を用い泥漿調泥条件が成形体の精度に与える影響について評価を行った。結果、凝集剤の添加により 20mm の肉厚製品においてもヒケがほとんど認められない焼成体を得ることでき、薄肉製品の割れの防止にも効果的であった。

Improvement in slip casting process for porcelain

Nobuaki KAMOCHI, Kana YAMASAKI
Saga Ceramics Research Laboratory

Slip casting is one of the main forming methods to make complex shaped porcelains in Hizen area. However, depending on the shapes, a sink mark is generated on a thick part and a crack is generated in a thin part. In this research, the influence of slip conditions to precision of products was evaluated. As a result, the sink mark was effectively prevented even 20mm over thickness products and the cracks were not occurred even in the thin products by effect of addition of a flocculant.

1. はじめに

鑄込み成形は肥前地区における磁器の量産において主要な成形方法の一つである。鑄込み成形には石膏型の製作と、石膏型への泥漿鑄込み作業の2つの工程があるが、石膏型製作に関しては CAD/CAM システムの利用が増加し精度が飛躍的に向上している。結果、型面への詳細なレリーフの実装や、製品肉厚が極端に薄い石膏型の製作が可能となっている。

最近では製品設計に外部デザイナーを利用することも増えてきており、極端な薄肉や、薄肉部と厚肉部の差の大きい形状等、従来の常識にとらわれない形状がデザインされることも多い。量産が困難な形状の場合デザインの修正を行うことになるが、鑄込み成形の現場では作業者の感覚に頼った泥漿調泥や石膏型管理が行われていることが多く、修正の度合いは試行錯誤で決められることがほとんどである。薄肉成形体における充填不足や型内での生地割れ、厚肉成形体における不均一な泥漿充填によるヒケの発生などが問題になることも多く効率的な製品開発の妨げとなっている。当センターでは過去にも圧力鑄込みの研究を行い、石膏型の改良により、これまで成形困難な形状の成形を可能にした¹⁻³⁾。しかしながら石

膏型の改良だけでは対応困難な形状の圧力鑄込み成形や、従来の排泥鑄込みでは型内で割れてしまうような複雑形状の成形の歩留を向上させたいという要望が多い。

そこで本研究では鑄込み成形について泥漿の調泥条件と成形体の性状について数値解析し、従来製造困難であった形状の製品を安定して生産できる技術の確立を目指した。

2. 実験方法

試験用陶土として天草陶土を用いた。解膠剤としてケイ酸ナトリウム(193-08185;富士フィルム和光純薬株式会社製)、ディーフ(太平化学産業株式会社製)、又凝集剤として炭酸水素ナトリウム(191-01305;富士フィルム和光純薬株式会社製)を用いた。攪拌機を用いて所定の含水率、解膠剤、凝集剤添加量となるように泥漿を調泥した後、圧力鑄込み成形によって成形体を得た。石膏型は型寸法で縦横 107×107mm、厚さを 5mm、12mm、20mm と変えた 3 種の陶板成形用型を用いた。使用した石膏型の例を図 1 に示す。得られた成形体は乾燥後、ガス窯を用いて締め焼きを 1300℃10 時間の還元雰囲気で行い焼成体を得た。

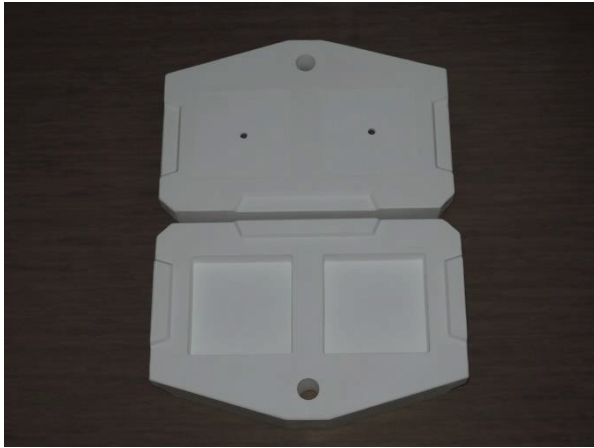


図1 使用石膏型例(107×107×20mm 陶板×2)

3. 結果と考察

3.1 鑄込み回数による型の吸水重量、焼成体重量の変化

圧力鑄込み成形においては1つの型を1日8回程度、繰り返し使用する。乾燥した状態から圧力鑄込み成形を7回繰り返し、鑄込み前後の型重量を計測することで繰り返しによる型の吸水重量の変化を確認した。1回あたりの吸水重量は7段階目の石膏型の平均で評価し、泥漿は含水率24.1%(ケイ酸ナトリウム0.25%添加)と28.2%(ケイ酸ナトリウム0.1%添加)の2種を用いた。また鑄込み圧力は0.12MPaと0.2MPaの2水準を比較し、鑄込み時間は共に20分とした。

図2に厚さ12mmの陶板を鑄込み成形した時の結果を示す。なおグラフ中の誤差範囲は95%信頼限界を示している。石膏型の吸水量は含水率24%鑄込み圧0.20MPa

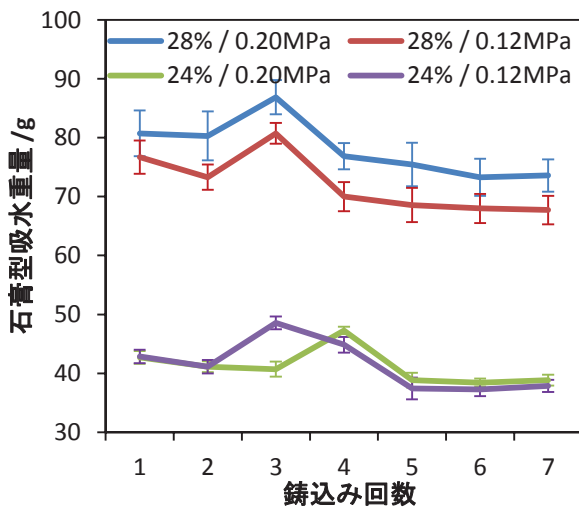


図2 鑄込み回数による石膏型吸水重量の変化。
(石膏型:107×107×12mm 陶板×2)

の条件では4回目、他の条件では3回目の鑄込みで最高値を示した。石膏型の乾燥した状態では鑄込み口の固化が早く成形体に十分な圧力を与えることが出来なかったことが1、2回目の吸水重量が最高値を示した回に比べ低くなった原因と考えられる。また、含水率28%と24%の比較では含水率の高い泥漿を用いたほうが吸水重量は大きく、0.20MPaと0.12MPaの鑄込み圧力の比較では圧力の高いほうが吸水重量が大きくなる当たり前の結果となった。また、含水率28%の泥漿は24%と比較して2倍程度の吸水重量があるが、5回目以降の吸水重量の変化率に関しては24%と比較してほとんど差が無く、この程度の繰り返し鑄込みでは型が水で飽和することはなく、吸水重量からみた型の吸水性能の変化はほとんどない結果となった。

鑄込み回数と焼成体重量の関係を図3に示す。なおデータは各条件で作成した試料14個の平均で誤差範囲は95%信頼限界を示している。圧力0.12MPaの鑄込み成形においては鑄込み回数が増えるに従い若干焼成体重量が低下していく傾向を示した。一方圧力0.20MPaの鑄込み成形では1回目から2回目にかけて焼成体重量は低下するものの、型の吸水重量が最も高くなった回数で焼成体重量が一旦増加することが確認できた。また鑄込み回数による焼成体重量の低下は圧力0.12MPaの鑄込み比べ小さい。従って、鑄込み回数を増やしていく場合、鑄込み圧力が高いほうが、焼成体重量に対する影響が少ないことが確認された。鑄込み成形では石膏型に水分を

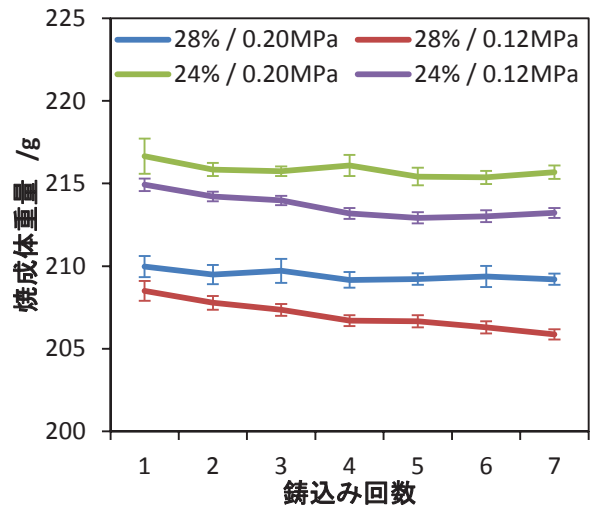


図3 鑄込み回数による焼成体重量の変化。
(石膏型:107×107×12mm 陶板×2)

奪われた分だけ泥漿が硬化するため焼成体重量と石膏型の吸水重量は相関性があると考えられるが、今回の結果では特に 0.12MPa の低圧での鑄込み成形において相関性が確認できなかった。

3.2 泥漿調泥、及び圧力鑄込み条件とヒケ発生量の変化

肉厚品の圧力鑄込み成形においては泥漿充填の不均一に起因するヒケと呼ばれる凹みが発生しやすい。厚さ 10mm で成形した試料に対しデジマチックインジゲータを用いて図 4 に示す方法で表面裏面のヒケの深さを計測し合算した結果の一例を図 5 示す。陶土粒子の配向や厚み方向中心部付近の脱水硬化不足のため、側面付近から中心に向かってヒケが大きくなる傾向が判る。なお、端部付近の数字がプラスの値を示しているのは陶板全体の反りが影響している。

図 6 に鑄込み条件、鑄込み回数によるヒケ最大値の変化を示す。含水率が高く鑄込み圧が低いほどヒケが大き

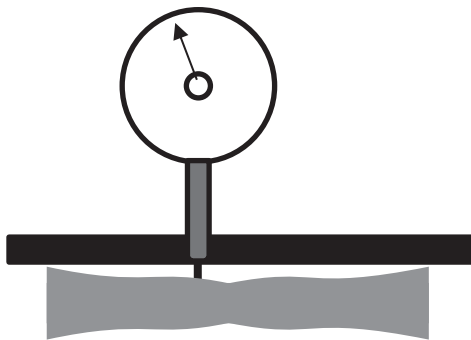


図 4 デジマチックインジゲータによるヒケの計測方法の模式図

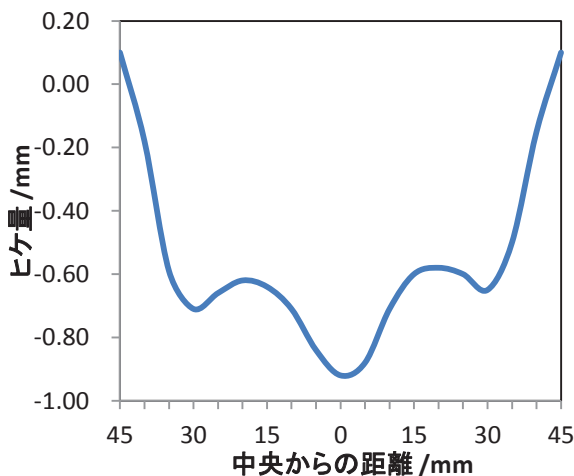


図 5 デジマチックインジゲータによるヒケの計測結果例

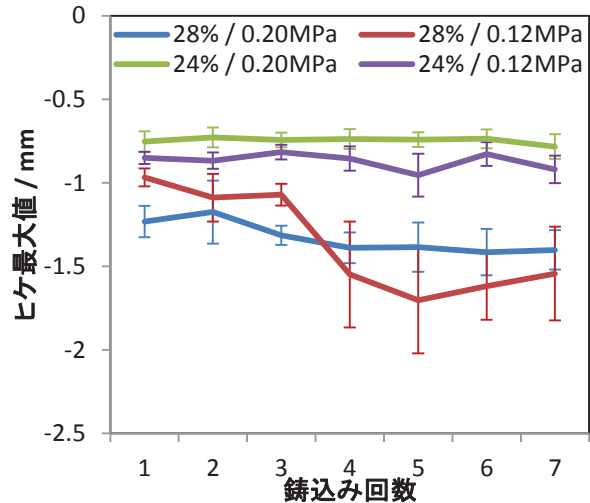


図 6 鑄込み回数によるヒケ最大値の変化
(石膏型: 107×107×12mm 陶板×2)

なると共にばらつきも大きくなる傾向があることが判る。しかし、含水率 24%、鑄込み圧力 0.20MPa の条件でも試料厚さ 10.5mm に対してヒケ 0.7mm と約 7% のヒケが発生している。解膠剤の添加量を増やし含水率をさらに低下させた条件で同様の試験を行ったが、解膠剤の添加量が増えると型付近の生地の締りが良くなることで、生地中の水分移動が困難となり、着肉の進行が停止した。結果、鑄込み時間にかかわらず中心付近にあんこ状に泥漿が残ることになり、生地の粗密が大きく、厚さ 10mm を超える試料ではヒケの解消は困難であった。

3.3 凝集剤添加試験

泥漿に凝集剤を添加することで型面付近の生地の締りを低下させ、生地中の水分移動を容易にすることで、厚さ方向での生地の粗密差を減少させ、厚肉品のヒケを低減できるか試験を行った。天草陶土に解膠剤としてディーフ 0.05% とケイ酸ナトリウム 0.15% を添加し含水率 24.1% の泥漿を調泥した後、凝集剤として重炭酸ナトリウムを添加し、凝集剤添加による泥漿粘度の変化を確認した。結果を図 7 に示す。凝集剤添加量 0.02% までは粘度の増加はほとんど認められず、更なる凝集剤の添加で粘度が上昇した。この陶土においては、0.03% 以上の重炭酸ナトリウム添加が必要なことが明らかとなった。

重炭酸ナトリウムを 0.06% 添加した泥漿で行った圧力鑄込み成形体を焼成して得られた厚さ 18.2mm の陶板の

写真を図8に示す。比較のために重炭酸ナトリウム無添加の泥漿で行った圧力鋳込み成形体を焼成して得られた厚さ 10.5mm の陶板の写真を合わせて示す。写真から明らかのように、重炭酸ナトリウムの添加により厚さが約 2 倍の試料においても、ヒケのほとんど認められない良好な焼成体を得ることが出来た。

また、凝集剤の添加により生地を保水力が高くなり、石膏型内での脱水が緩やかに進行することが確認できた。この現象を利用することで、従来の泥漿では型内での生地の収縮のために脱型前に生地割が発生しやすい、底面が広くリム部が垂直に近く立ち上がった形状の製品でも歩留まりよく成形が出来ることが明らかとなった(図9)。



図9 凝集剤添加による乾燥割れ防止例
 (上段:素焼き断面 φ195mm h30mm 縁厚3mm
 下段:締め焼き φ182mm h28mm 縁厚2.5mm)

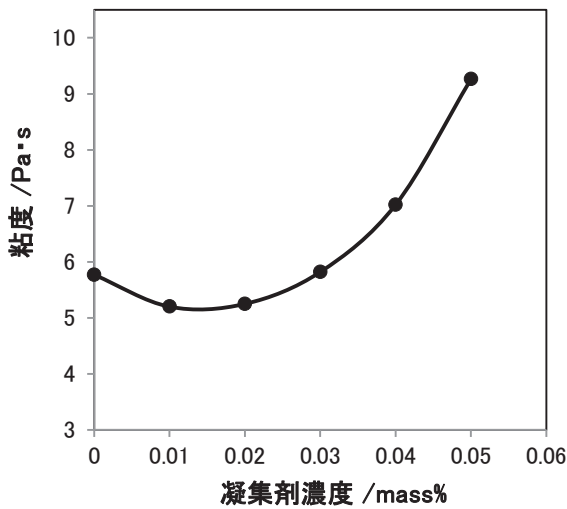


図7 凝集剤添加による天草泥漿粘度の変化
 含水率 24.1%, 解膠剤:ディーフ 0.05%, ケイ酸ナトリウム 0.15%

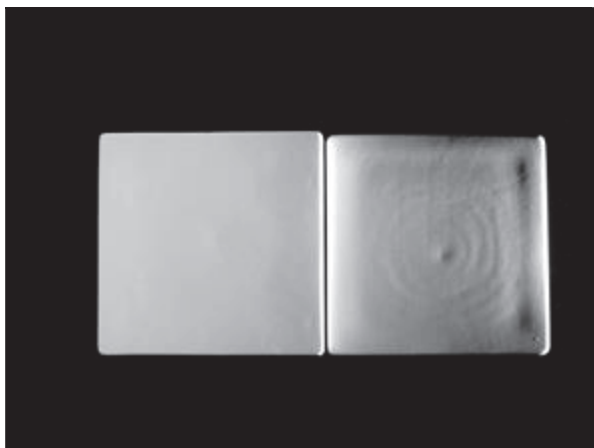


図8 凝集剤添加によるヒケ発生の低減
 (左:凝集剤添加泥漿; 94×94×18.2mm,
 右:凝集剤無添加泥漿; 94×94×10.5mm)

4. まとめ

鋳込み成形について泥漿の調泥条件と成形体の性状について検証した。結果、肉厚の製品でも安定して成形できるようになった。圧力鋳込みに関して報告を行ったが、本研究によって得られた成果は排泥鋳込みへも応用され、圧力鋳込みと合わせて従来製造困難であった製品の成形に利用されている。

参考文献

- 1) 蒲地 伸明, 吉田 秀治, 佐賀県窯業技術センター平成 18 年度研究報告書, 1-5 (2007).
- 2) 蒲地 伸明, 吉田 秀治, 佐賀県窯業技術センター平成 19 年度研究報告書, 1-3 (2008).
- 3) 蒲地 伸明, 吉田 秀治, 佐賀県窯業技術センター平成 20 年度研究報告書, 5-8 (2009).

陶土関連支援事業

酸処理陶石を用いた天草陶土の特性および実用性評価

志波 雄三、寺崎 信
佐賀県窯業技術センター

白磁は有田焼の代名詞ともいわれているが、近年原料となる高品位天草陶石の枯渇と採掘する人材減少の問題からその原料確保が懸念されている。磁器の白さを保つためには低品位陶石を塩酸処理して、白色度低下の原因となる鉄分を減少させた、いわゆる「酸処理陶石」をより多く使っていかなければならない状況にある。本事業では広く有田焼業界に酸処理陶石の認知と普及を図るため、酸処理陶石から製作した陶土の実用性評価を実施した。本年度は細工用陶土(白色度は特上陶土クラス)を酸処理陶石のみで製作し、有田焼作家等の協力を得て評価を行ったところ、使用上、特に問題ないことが明らかになった。

Support project for porcelain clay industry

Evaluation of the property and the practicality of porcelain clay from acid-treated Amakusa porcelain stone

Yuzo SHIWA, Makoto TERASAKI
Saga Ceramics Research Laboratory

The white porcelain is a synonym for Arita ware. In recent years, securing of raw materials for white porcelain has been a problem due to depletion of high-grade Amakusa porcelain stone and reduction of mining staff. It is necessary to use more acid-treated porcelain stone which lowered iron content by hydrochloric acid treatment of low grade porcelain stone to continue production of white porcelain. In this project, we evaluated the practicality of porcelain clay produced from acid-treated porcelain stone in order to disseminate acid-treated stone to the ceramic industry in Arita area. This year, we prepared special-grade test clay for wheel throwing only with acid-treated porcelain stone, then it turned out that there was no problem in using acid-treated clay with the cooperation of porcelain artists and others in Arita.

1. はじめに

バブル期以降、陶磁器産業の低迷は陶土の需要を大きく減らし、天草陶石の採石量も大きく減少している。一方、有田焼最大の特長である白磁への要求は以前と変わら

ずにある。天草陶石の埋蔵量はまだ相当量存在するといわれているが、鉄分の少ない高品位陶石は採取し難く、また採石現場での陶石の選別・鉄分除去等選鉱の重要な作業を行う人材確保(図1参照)も難しくなっており、白磁



図1 陶石業での選鉱の様子。



図2 天草地区で現在1社だけの酸処理プラント。

製造のための今後の原料供給に対する危機感が高まっている。

低品位陶石の品質を上げるため、1970年頃から塩酸処理によって陶石の鉄分を取り除く技術が実用化されている¹⁾。この鉄分除去を迅速かつ多量に行う塩酸処理プラントにより、多い時期には酸処理陶石の生産量は年間3万トンを超えていた。以前は天草地区で3社がプラントを所有していたが現在は図2に示す1社のみとなっている。このように酸処理陶石は肥前地区の窯業界を支えてきた経緯があるものの、高生産量の時期、塩酸処理後の洗浄不足が要因で使用時に「手が荒る・泥しようが使いづらい」などの問題が生じた。現在は酸処理後に十分な洗浄が行われるようになったが、当時のマイナスイメージが払拭されず業界内に根強く残っている。

しかし一方で、前述したように高品位陶石の採取が厳しくなっているため、特上陶土などの高級陶土の需要に応じていくにはこれまで行っていなかった3等石クラスの陶石を酸処理し、高級陶土の製造に活用しなければならぬ状況になっている。

このような最近の状況により肥前陶土工業協同組合から、酸処理陶石を使った陶土が問題ないことを窯業界へ広く認識してもらいたいという意向が示され、陶土利用技術に関する支援が当センターに求められた。

以上のことから、本事業では酸処理陶石を用いた陶土の製作条件を開示して陶土の各種物性・成形性等の評価を実施した。

本年度は酸処理陶石のみで細工用陶土を試作し、陶

土の物性試験を行うとともに、窯元や作家へ成形性等のアンケート調査を行った。

2. 事業の実施体制

本事業の実施体制は図3に示す。試験陶土は肥前陶土工業協同組合が製作し、陶土の成形性評価は地元の窯業関連団体に協力をお願いした。手ロクロ成形については有田陶芸協会の作家の方に、またローラーマシン成形、機械ロクロ成形については佐賀県陶磁器工業協同組合の会員やその他窯元の方に依頼し、それぞれの成形に関する評価や感想などをアンケート形式で回答いただき、その結果をまとめた。なお、陶土および焼成体の物性評価は当センターが行い、併せて総合評価とした。

3. 試験陶土の製作について

今回は酸処理陶石のみでの試験陶土を製作することとし、陶土の等級で最も白い特上陶土クラスを目指した。原料陶石は現在陶土業界でよく流通している皿山脱鉄陶石、浜平脱鉄陶石をそれぞれ70%、15%配合した。残りの15%には木山3等石を酸処理したものを配合した。この陶石は、特上陶土に欠かせない2等石の採掘状況が悪化していることから、その代替品として業界で想定されているものである。以上のような陶石の配合比で各種細工用陶土を表1の内容で約1トン製作依頼した。なお、手ロクロ用陶土においては制作者の要望に応じるため3段階の硬度を製作した。

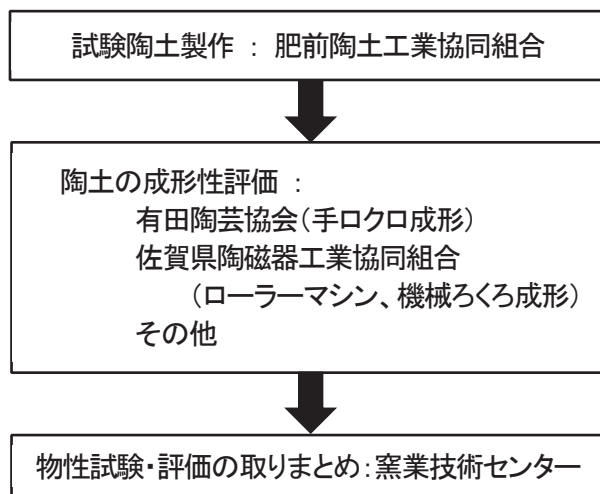


図3 本事業の実施体制。

表1 試験陶土の内容明細

陶土種	単位 (kg)	硬度	本数
手ロクロ用	15	9	10
		10	30
		10.5	10
機械ロクロ用	15	6	12
ローラーマシン用	15	11	5

4. 試験陶土の評価項目

陶土の評価として試験陶土の粒度分布、化学組成(酸化鉄)、耐火度、陶土の上澄み液pH を調べた。またテストピースを作成し還元焼成(SK10)したもののハンター白色度、かさ比重、熱膨張係数(30℃-700℃)、スパン 100 mm 支点間に乗せた角棒状試験体(成形体 126mm×20mm×6.5mm)の焼き下がり量を調べた。このとき市販細工用特上陶土も入手し、同特性を比較検討した。

成形性評価は設問形式アンケートを準備し、試験陶土を配布する際に各協力者に渡して回答を得ることとした。なおアンケートの設問は以下のとおりである。

・評価アンケートの設問内容

特上陶土として感じられる評価・ご感想を率直にお願いします。各項目5段階評価 良い5 ⇔ 1悪い および簡単な感想など

設問① 土をこねた時の状態はいかがでしたか

設問② 陶土の伸びはいかがでしたか

設問③ そのほか成形時の感触はいかがだったでしょうか？

設問④ けずりの感触はいかがだったでしょうか？

設問⑤ 陶土としての総合評価をお願いします。

設問ごとに 5 段階評価およびコメントを協力者よりいただいた。さらに本試験陶土により試作した作品が提供可能な方からは提出していただいた。

5. 陶土および焼成体の特性

陶土および還元焼成体の特性結果は以下のとおりであった。各物性について試験体の特性を見てみると、おおむね市販特上陶土と比べて同等であった。化学組成の酸

表2 酸処理陶石を用いた陶土の特性

陶土種	酸処理陶石 100%の陶土	市販特上陶土
化学組成(酸化鉄)	0.46 mass%	0.41 mass%
中心粒子径	5.1 μm	4.8 μm
耐火度	SK27 ⁺	SK28
泥しよう上澄み液 pH	7.1	7.4

化鉄含有量は陶土の白さの目安となる。含有量は酸処理陶石のみが 0.05mass%高かったが焼成素地のハンター白色度はほぼ同等であった。目視でも酸処理陶石のみの素地と市販特上陶土の素地の白さの差はほとんど感じられなかった。そのほかの特性も大きな違いはみられなかった。

表3 酸処理陶石を用いた陶土の焼成体特性

陶土種	酸処理陶石 100%の陶土	市販特上陶土
ハンター白色度	88.6	88.8
かさ比重	2.35	2.37
熱膨張係数(700℃)	$7.63 \times 10^{-6} / K$	$7.80 \times 10^{-6} / K$
焼き下がり量	7.5mm	7.5mm

6. 陶土の成形性評価

試験陶土の評価依頼状況およびアンケート回答の集計結果を表4および図5に示す。

表4 試験陶土配布数および提出状況

配布先	配布数(15kg/本)	アンケート回答数	作品提出数
有田陶芸協会	20	15	9
佐賀県陶磁器工業協同組合	7	3	2
その他窯元	12	6	5
計	39	24	16

成形性の評価コメントはおおむね「今までと変わりなく使用できる」または「使いやすい」という感想が9割以上を占めた。変わりなく使える感触を持った評価者の中には評価が3である方と、5の方が存在した。そのため評価が3と5がやや多い結果になったと考えられる。本結果では評価が3以上であれば特に使用において問題ないようである。また、素地の白さにおいても市販特上陶土と同等という感想が多かった。

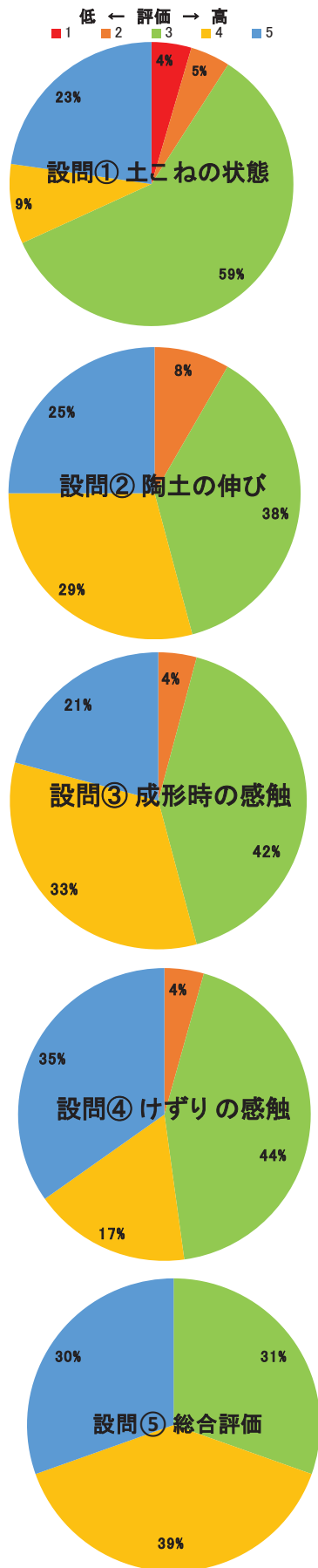


図5 アンケート回答の集計結果.



図6 平成 30 年新春展示会での製作品の展示模様.

平成 30 年 1 月 10～11 日に有田町焔博記念堂で行われた新春展示会にて本事業成果を発表し、陶石業の現状などを説明し酸処理陶石による陶土の認知と普及を図った。図 6 はその展示の様子である。

6. まとめ

有田焼白磁を将来に渡って存続させていくためには、酸処理陶石の使用を今後増やしていかなければならない。その現状をふまえ、広く有田焼業界に酸処理陶石の認知と普及を図るための支援事業を行った。本年度は酸処理陶石のみで細工用陶土を製作し、有田焼を製作する方々の協力を得て評価を行ったところ、使用上、特に問題ないことが明らかになった。この結果は今後も機会あるごとに広報を行っていく。

次年度は有田焼量産に最も行われている鑄込成形について、酸処理陶石を使って陶土を製作し、窯元等の試験・評価を得る事業を行う予定である。

参考文献

- 1) 林文雄, 永田正典, セラミックス 14, No4, 338-338 (1979).

謝辞

本事業にご協力いただいた肥前陶土工業協同組合、有田陶芸協会、佐賀県陶磁器工業協同組合の各会員の皆様、ならびに協力いただいた有志の方々に深く感謝申し上げます。

泉山陶土用釉薬の開発

藤 靖之、釘島 裕洋、鮎川 祐太
佐賀県窯業技術センター

泉山陶土用の釉薬として、有田町内で産出する白川山土を原料に用い、各灰との組み合わせにより古伊万里調の釉薬を開発した。また泉山陶土を塩酸処理し、白色度を上げた陶土の開発を行った。

Development of glaze for Izumiyama porcelain Clay

Yasuyuki FUJI, Masahiro KUGISHIMA and Yuta AYUKAWA
Saga Ceramics Research Laboratory

We developed Old-Imari-Style glaze for Izumiyama porcelain clay by use of Shirakawa stone and several kinds of ashes. Also, Izumiyama porcelain clay increased whiteness was developed by Hydrochloric acid treatment.

1. はじめに

有田では、有田焼創業 400 年を機に、泉山磁石場組合を中心に産地振興の一つの手段として、有田焼発祥時の磁器原料である泉山陶石を用いた商品開発が行われている。

天草陶土での商品開発が中心の中、泉山陶土を使うことにより、天草陶土にない付加価値等のあるモノづくりが課題になっている。今回、泉山陶石の特徴の一つである素地色がグレー色(硫化鉄を含むため)を生かした、灰釉の開発を行った。

現在、天然のイス灰が手に入らなくなったため、市販の天然灰及び合成灰を用いて、釉薬試験を行った。

また、磁石場組合では、将来他産地で原料がなくなっても有田だけで原料の確保を図りたいという意向もあり、釉薬原料についても、有田町内に多数存在する木の灰を利用することも考え、有田町役場の協力のもと各種、木を提供していただき、その灰が釉薬として使用できるかの調査を行った。

また、天草では、良質な陶石が取れなくなってきているため、塩酸処理による(酸処理陶石)が使用されているが、この技術を利用して、泉山陶土の白色度を上げる試験を試み、泉山陶土のバリエーションを増やした。

2. 開発内容

2.1 市販灰を利用したの釉薬調製

白川山土と各灰を混合粉碎し釉薬調製を行った。

全体的に青黒味掛かった釉調で、灰からの鉄分はもとより、素地からの影響もかなりある。

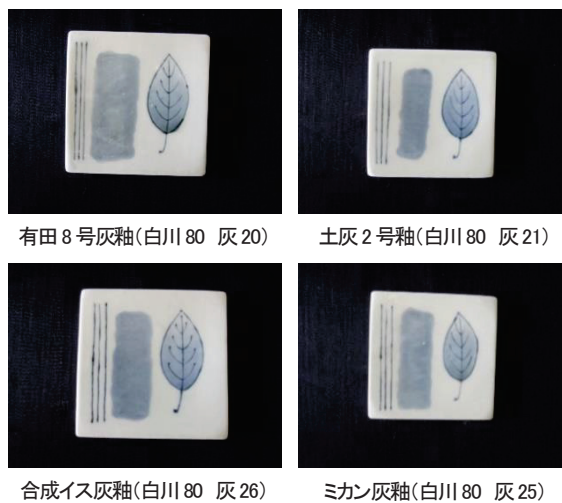


図 1 白川山土と市販各種灰からの釉薬調製

2.2 有田町の木材から製造した灰について

有田町よりいただいた、金柑、赤松、黒松、縄文樫、梅、銀杏を焼成し、炭化から灰化させ、灰汁抜きを行って釉原料とした。

釉薬原料として市販されている灰および今回提供を受けた有田町の木材から作成した各種灰の化学組成を表 1 に示す。有田町の木灰は、鉄分が少なく CaO、MgO も釉薬に使われる灰と同程度含まれており、今後有田天然灰として使用できると考えられる。灰化までの工程で重量が

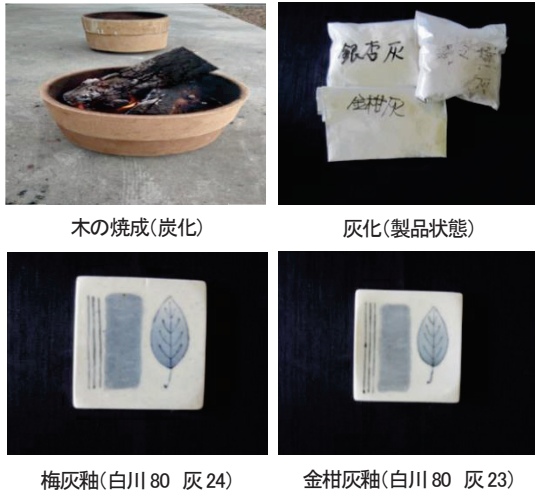


図2 有田町の木材からの釉薬調製

100 分の 1 程度になるため量の不足により今回は多くの試験ができなかったが、今後有田町の協力を得てさらに試験を進めていきたい。

2.3 市販呉須発色試験

異なる種類の灰を配合した釉薬において、市販されている呉須 12 種類(表 2)の発色がどのように変化するかを調べた。灰の違いにより、呉須の発色には大きな違いが表れた。

表 2 発色試験に用いた市販呉須 12 種

①スジ呉須	⑮唐呉須 5 号
④古代 3 号	⑰支那呉須 1 号
⑥旧古代	⑳源
⑧濃古代	㉑古伊万里
⑨特別古代	㉒新呉須
⑫京古代 3 号	㉓海碧

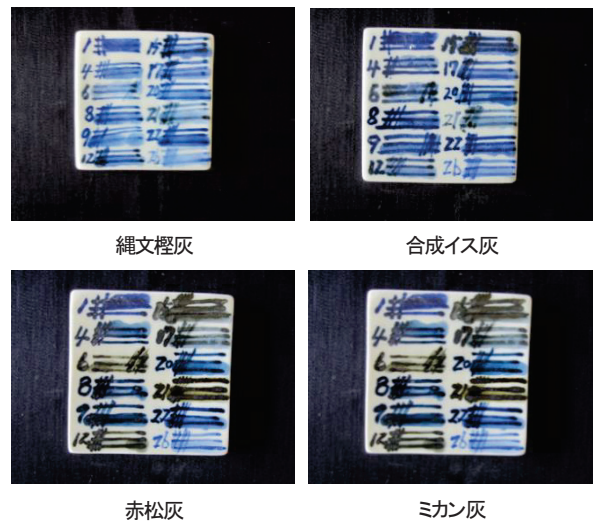


図3 釉薬に使用した灰の種類の違いによる市販呉須の発色変化

3. 酸処理及び脱鉄による焼成体の変化について

3.1 陶土の塩酸処理による脱鉄

天草低品位陶石の塩酸処理で白色度の高い陶土が作

られているが、同様な工程で泉山陶土の酸処理を行った。

市販されている泉山陶土に 10%塩酸を加え、40℃で 5 日間放置し、その後塩素分がなくなるまで(pH 6 程度)水

表 1 各種灰の化学組成

原料名	L.O.I	SiO2	Al2O3	Fe2O3	TiO2	CaO	MgO	Na2O	K2O	ZnO	BaO	SrO	Li2O	P2O5	total
天然イス灰	36.29	8.22	1.29	0.73	0.05	43.14	5.54	0.18	0.93	0	0	0	0	0	96.37
天然土灰	29.21	17.35	5.71	2.18	0.22	35.31	3.66	0.7	1.64	0	0	0	0	1.28	97.26
天然土灰2号	36.01	7.57	3.26	0.98	0.09	42.69	3.31	0.23	1.27	0	0	0	0	0	95.41
有田8号灰	38.24	3.5	1.97	0.29	0	47.15	3.43	0	0.94	0	0	0	0	0	95.52
天然ケヤキ灰	26.37	25.79	6.21	1.83	0	29.8	4.55	0.8	2.34	0	0	0	0	0	97.69
合成柞灰	33.92	16.47	2.74	0.14	0.06	36.8	6.67	0.07	0.29	0	0	0	0	2.95	100.11
合成土灰	33.95	16.47	2.48	0.14	0.05	37.13	6.53	0.08	0.27	0	0	0	0	2.81	99.91
脱鉄土灰2号	37.57	3.98	2.55	0.32	0.09	47.07	3.91	0.15	0.99	0	0.4	0.26	0	1.89	99.18
ミカン灰	37.24	3.83	1.56	0.7	0.12	49.47	2.36	0.15	0.8	0.04	0.24	0	0	3.23	99.74
金柑灰(有田町)	35.12	7.38	2.85	1.32	0.19	43.06	5.6	0.21	0.57	0.15	0	0.18	0	2.87	99.5
梅灰(有田町)	25.31	11.22	3.12	1.65	0.15	40.03	3.23	1.08	2.54	0.24	0	0.17	0	10.92	99.66
銀杏灰(有田町)	36.36	4	1.94	0.45	0.08	39.59	11.89	0.07	0.22	0.09	0.17	0	0	3.21	98.07
縄文樫(有田町)	35.31	2.87	0.28	0.15	0	51.12	5.04	0.21	0.52	0	0.16	0.18	0	3.93	99.77
赤松灰(有田町)	29.72	2.23	3.02	0.28	0	42.03	10.84	0.08	0	0.29	1.4	0.32	0	5.13	95.34
黒松灰(有田町)	28.15	12.37	3.76	0.94	0.12	42.84	2.28	0.75	2.43	0.12	0.12	0.11	0	1.81	95.8

表 3 泉山陶土の化学組成

原料名	L.O.I	SiO2	Al2O3	Fe2O3	TiO2	CaO	MgO	Na2O	K2O	total	耐火度
泉山陶土	3.09	77.13	14.63	0.7	0.05	0.04	0.06	0.06	3.98	99.74	SK19
酸処理 泉山陶土	3.18	76.47	15.01	0.23	0.06	0.18	0.08	0.09	4.44	99.74	SK19
配合泉山陶土	5.12	74.34	16.62	0.66	0.17	0.06	0.09	0.23	2.57	99.86	SK27

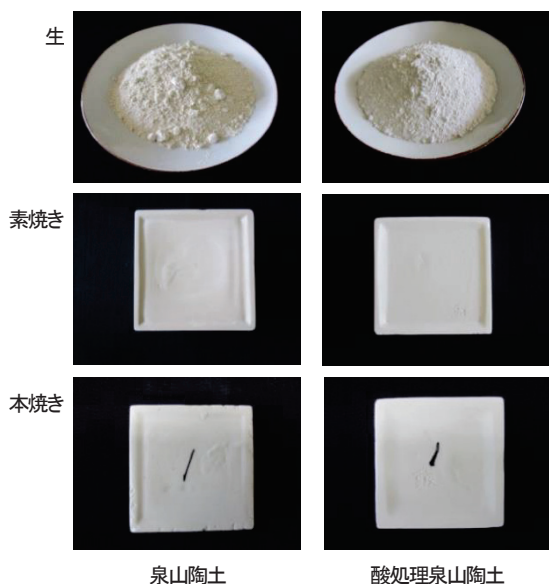


図 4 酸処理による泉山陶土の焼成色の変化

洗いを行い、鑄込み土を作製し、焼成色の変化を見た。

表 3 に泉山陶土の化学組成を、図 5 に市販の泉山陶土および酸処理泉山陶土で作成したサンプル外観を示す。塩酸処理することにより、 Fe_2O_3 含有量が 0.7% から 0.23% に減っており、白色度を上げる効果があったが、硫化鉄については、まだ残留していると思われ、 Fe_2O_3 含有量 0.23% (天草特上陶土の Fe_2O_3 含有量より少ない) の割には、白さが得られなかった。また、陶土での塩酸処理を行ったため、可塑性が小さくなった。セリサイト等粘土の分解が生じた可能性がある。

3.2 脱鉄機を利用して天然灰の脱鉄

市販天然土灰 2 号は、 Fe_2O_3 含有量が 0.98% で土灰にしては少ないが、白釉を作る場合どうしても青味が出てくる。今回脱鉄機にかけることでどの程度の鉄分が除去できるか試験し、釉薬の白色度の検討を行った(図 6)。

脱鉄後(脱鉄機 2 時間循環)の Fe_2O_3 含有量が 0.32% に減少し、天然イス灰同等以上の灰になった。



市販泉山陶土 酸処理泉山陶土



市販泉山陶土 酸処理泉山陶土



市販泉山陶土 酸処理泉山陶土

図 5 市販および酸処理泉山陶土による試験体



市販泉山陶土 酸処理泉山陶土

図 6 土灰の脱鉄による白色度の比較

4. まとめ

古伊万里調の製品を開発するためには、天然灰の使用が不可欠である。現在天然のイス灰が手に入りにくくなっている状況下で、市販天然灰を脱鉄することで白色度を上げる釉薬を作ることができた。また陶土についても、酸処理することにより、白色度の高い製品開発が可能である。今後有田町の協力のもと、有田天然灰の製造は、酸処理泉山を使用しての試作を行っていきたい。

佐賀県窯業技術センター
平成 29 年度 研究報告書・支援事業報告書
平成 30 年(2018 年) 7 月 1 日発行
ISSN 2432-2628

発行：佐賀県窯業技術センター
〒844-0022 佐賀県西松浦郡有田町黒牟田丙 3037-7
TEL 0955-43-2185 FAX 0955-41-1003
URL <http://www.scri.gr.jp/>