

# 佐賀県窯業技術センター

令和3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

## 令和3年度 研究報告書・支援事業報告書

### 目 次

#### 戦略的試験研究

光彩上絵の高度化研究	1
------------	---

#### 経常研究

新規陶磁器素材の用途開発に関する研究	7
釉薬性状の制御に関する研究	17
NC ローラーマシンによる高精度成形及び特殊形状成形に関する研究	22

#### 共同研究

産業技術連携推進会議知的基盤部会分析分科会	37
第64回分析技術共同研究 無機分析(リチウム電池正極材料)への参加	

#### 支援事業

陶石利用技術支援事業	42
酸処理陶土による泥しよ調製追試験及び天草酸処理陶石の品質調査	
伊万里・有田焼のものづくりを考えるイベントの開催	47
NEXTRAD 1st Exhibition 「Go Forward -磁器のものづくりに関する“13P”の挑戦-」の企画立案および 運営支援	

その他 令和3年度に取り組んだ事業の概要	53
----------------------	----

## 光彩上絵の高度化研究

白石 敦則、中溝 祐志  
佐賀県窯業技術センター

光彩上絵の技術を基に、(1)光彩上絵の光彩感の多様化・多色化 (2)銀色光彩上絵の開発 (3)光彩ほうろう上釉加飾材の開発を行った。(1)顔料の粒径を変化させることで光彩感を制御することができ、光彩顔料の種類や他原料との組み合わせによって多色化が可能であった。(2)銀色光彩上絵は、黒色顔料と光彩顔料の添加により光沢がある上絵を得ることができた。(3)光彩ほうろうフリットを開発することで、陶磁器用上絵と同等な光彩ほうろう用加飾材を開発することができた。

### Research to improve the Metallic style Glass

SHIRAISHI Atsunori, NAKAMIZO Yushi  
Saga Ceramics Research Laboratory

Based on the technique of Metallic style overglaze, (1) diverse and multicolored of the Metallic style overglaze, (2) silver Metallic style overglaze, and (3) Metallic style enamel upper glaze decoration material were developed. (1) The brilliance could be controlled by changing the particle size of the pigment. It was possible to increase the number of colors depending on the type of brilliant pigment and the combination with other color pigments. (2) As for the silver Metallic style overglaze, a glossy top painting could be obtained by adding a black pigment and brilliant pigment.

(3) By developing the enamel frit, it was possible to develop Metallic style enamel upper glaze decoration material that is equivalent to the Metallic style overglaze.

#### 1. はじめに

当センターでは、これまでに、陶磁器製品では今まで表現できなかった塗装製品のいわゆる「メタリック」調の様な光彩性を持つ全く新しい光彩上絵(Metallic Style Glass ;MSG)について報告<sup>1)</sup>している(図1)。これは、雲母基材の表面が酸化チタン等でコーティングされた市販の光彩顔料を熔融することなく上絵層に分散可能とする光彩上絵用の新しいガラス開発によって可能になった技術であり、2019年に特許を取得している<sup>2)</sup>。

また、その後の研究では、光彩上絵断面のSEM像において上絵ガラス中に光彩顔料が分散されている様子を捉えることができている(図2)、この光彩上絵の一部を拡大した元素マップ像(EDS)においては、光彩顔料基材の成分であるAl、Mg、Kの表面に薄いTiの膜があることを確認している(図3)。これは光彩顔料及びその表面にコーティングされた酸化チタン膜が焼成後も上絵ガラス中で熔けることなく分散できていることを裏付けるものであった。

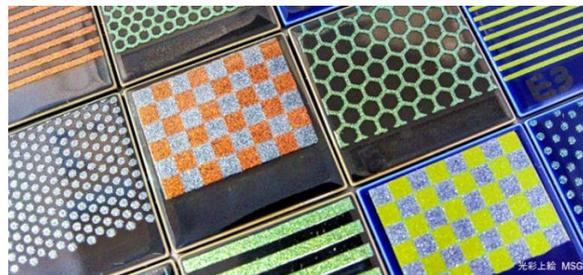


図1 開発した光彩上絵

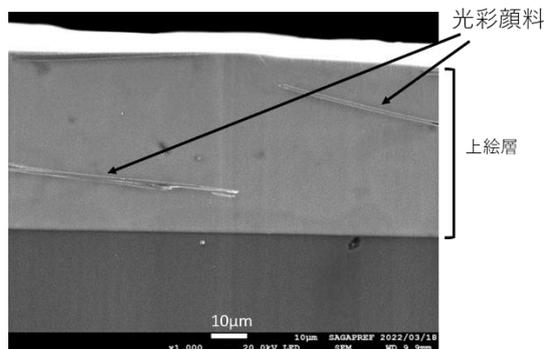


図2 光彩上絵断面のSEM像

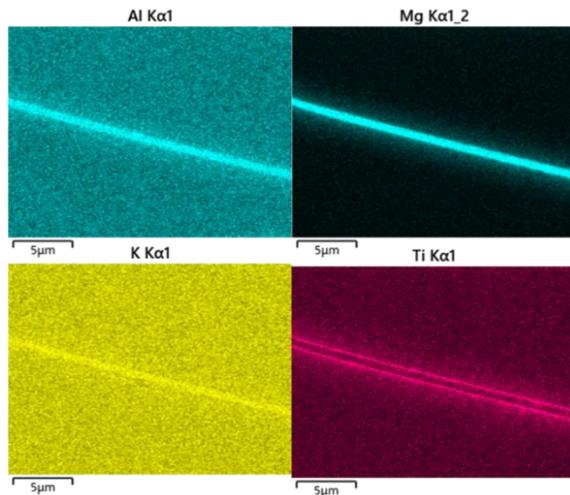


図3 光彩上絵断面の元素マップ像

この新しい上絵に対する県内陶磁器業界の関心は大きく、これまでに多くの県内企業と特許実施許諾契約を結び、技術移転を進めており、一部は既に商品化され市場に流通している。

一方、商品化が進む中で、業界からは光彩上絵に関する新たな要望が出されている。具体的には、「開発光彩上絵はキラキラしすぎているので、光彩感を抑えてほしい」という光彩感の変化に関するものや、「様々な表現が可能になるように光彩上絵の色合いを増やしてほしい」という光彩絵具の多色化に関する要望であり、更なる課題となっている。

また、表面状態がマットで汚れやすい従来の雲母銀上絵に代わる、表面光沢がある銀色の光彩上絵開発に関する要望も高い。しかしながら、これまでの光彩上絵技術では、市販の銀色光彩顔料を用いて銀色光彩上絵を作製しても茶色に変色し銀色光彩上絵にはならないため、異なるアプローチが必要である。

さらに、この光彩上絵技術は、陶磁器以外のガラス製品へ応用できると考えられ、特に陶磁器上絵と焼成温度や熱膨張係数等の特性が近い、ほうろうの上釉への応用が期待できる。ほうろう(珪瑯、ホーロー)製品にはシステムキッチン、システムバス、看板、調理器具(鍋、ポット、コップ等)様々な製品があり、陶磁器同様色鮮やかな加飾(上釉)が施されているものも多い。また、ほうろう製品にも、従来の陶磁器製品同様にこれまでメタリック調の光彩加飾は無く、ほうろう用の光彩材料が開発できれば、より広

い用途での利用が期待できる。

そこで、本研究では①光彩上絵の光彩感の多様化・多色化 ②銀色光彩上絵の開発 ③本技術を応用した光彩ほうろう上釉加飾材の開発を行った。

## 2. 実験方法

### 2.1 光彩上絵の光彩感の多様化・多色化

#### 2.1.1 光彩上絵の光彩感の多様化

図4に光彩顔料のモデルを示す。光彩顔料は、雲母などの板状結晶表面に数十nmのTiO<sub>2</sub>膜が形成された板状の顔料で、厚みは1μm程度であり、様々な粒径(X)の光彩顔料が市販化されている。従来の光彩上絵では、粒径が180~500μmの光彩顔料を使用し、光彩感(キラキラ感)を強調した質感を表現していたが、今回はこれより粒径が小さい5μm~180μmの白色光彩顔料(5種)を用いた。

なお、フリットは前回の報告<sup>1)</sup>で開発した光彩上絵用フリットを用い、テスト用の陶板は石灰釉を施釉した磁器を用いた。まず、フリットに白色光彩顔料を0.25~5.0mass%添加して光彩上絵具を作製し、これに水を適量添加し液状にしたものを陶板表面に筆で塗布した。塗布された陶板は乾燥後に800℃で焼成(昇温速度:100℃/hr、10min保持)し、これを光彩上絵のテストピースとした。また加飾方法の違いとして同じ光彩上絵具を用いた転写紙を作製し、これを陶板に転写印刷したものについても同様に乾燥、焼成して光彩上絵のテストピースとした。

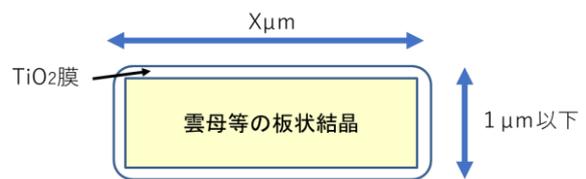


図4 光彩顔料のモデル。

#### 2.1.2 光彩上絵の多色化

前項と同じフリットに、様々な色合いの市販光彩顔料を0.25~5.0mass%添加して光彩上絵具を作製した。また、一部試料においては、光彩上絵用フリットにCoOやCr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>等の酸化金属や市販の各種顔料を加え、これに粒径や呈色が異なる市販の光彩顔料を0.25~5.0mass%添加し、光彩上絵具を作製した。なお、テストピースの作製

手順は前項と同じとしたが、多色化を目的として一部陶板には色釉陶板または様々な色の市販上絵陶板を用いた。

## 2.2 銀色光彩上絵の開発

フリットは前回の報告<sup>1)</sup>で開発した光彩上絵用フリットを用いた。これに市販の黒色顔料を 0.1~1.0mass%添加し、更に粒径が異なる市販の光彩顔料(白色)を 1.0~3.0mass%添加して銀色光彩上絵具を作製した。テストピースの作製は前項(2.1.1)の方法と同じく、筆による塗布と転写印刷で行い、焼成後の銀色感の評価は、目視による官能評価で行った。

## 2.3 光彩ほうろう上釉の開発

ほうろうの断面構造は、図5の構造モデルに示すように陶磁器の断面構造と似通っており、陶磁器の上絵がほうろう上釉に相当する。ほうろう上釉は熱膨張係数が  $6\sim 8 \times 10^{-6}/K$  で陶磁器上絵と近いが、焼成温度が陶磁器上絵よりやや低く、焼成時間も短いため、ほうろうの製造条件に合わせるためには陶磁器上絵より融点を低くする必要がある。今回は、一般的なほうろう上釉の焼成温度である  $760\sim 800^{\circ}C$  に対応できるようにするため、光彩ほうろう上釉用フリットの焼成温度  $760^{\circ}C$  を目標に調合を試みた。前報<sup>1)</sup>で開発した光彩上絵用フリットをベースとし、添加するアルカリ成分などの量や種類を変化させ原料を調合し、十分に混合して耐火のつぼに入れ、電気炉で  $1300^{\circ}C$  に加熱して熔融後、急冷してガラスとした。このガラスをポットミルおよび自動乳鉢で粉碎することで光彩ほうろう上釉用フリットとした。これに粒径や呈色が異なる市販の光彩顔料を 0.25~5.0mass%添加し、光彩ほうろう上釉加飾材を作製した。

これら各種の光彩ほうろう上釉加飾材に水を適量添加し、これを市販のほうろう板の下釉表面または上釉表面に筆で塗布した。塗布されたほうろう板は乾燥後に  $760^{\circ}C$  で焼成(昇温速度: $200^{\circ}C/h$ 、10min 保持)し、これを光彩ほうろう上釉のテストピースとした。また、光彩ほうろう上釉加飾材を用いた転写紙を前項と同様に作製し、これを市販のほうろう板の下釉表面または上釉表面、または様々な色のほうろうの上釉上に転写印刷し、乾燥後、同じく  $760^{\circ}C$  で焼成して光彩ほうろう上釉のテストピースとした。



ほうろうの構造モデル(断面) 陶磁器の構造モデル(断面)

図5 ほうろうと陶磁器の構造モデル(断面)。

## 3. 結果と考察

### 3.1 光彩上絵の光彩感の多様化・多色化

#### 3.1.1 光彩上絵の光彩感の多様化

粒径が  $5\mu m\sim 180\mu m$  の白色光彩顔料(5種)のうち、 $5\sim 25\mu m$  の光彩顔料を用いた場合は、顔料粒子のキラキラ感あまり目立たず、パール状の質感となった。ただし、パール状の質感は示していることから、光彩顔料は上絵ガラス中で熔融せずに残っているものと推察される。また粒径が  $40\mu m$  以上の光彩顔料を用いて光彩上絵を作製した場合は、光彩顔料粒子のキラキラ感を有したまま、その強さを抑えることができていた。図6に光彩顔料の粒径を変化させたテストピースの代表的な4種類の外観を示す。粒径  $180\mu m$  の光彩顔料を用いたサンプルではキラキラした光彩感が非常に強いが、顔料の粒径が小さくなるほど光彩感が抑えられていることがわかる。一方、 $25\mu m$  以下の光彩顔料を用いたサンプルでは顔料粒子のキラキラ感が目立たずパール状の質感となっていることがわかる。

このように、使用する光彩顔料の粒径を変化させることで、光彩上絵の光彩感の強さや質感を自由に変化させることができることがわかった。

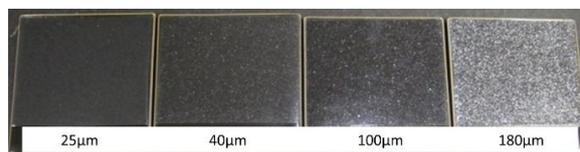


図6 光彩顔料粒径の光彩特性への影響。

#### 3.1.2 光彩上絵の多色化

前報<sup>1)</sup>では白色、赤色、緑色、青色の4種の光彩顔料を用い、下地の色によって様々な発色の光彩上絵を表現できることを報告した。しかしながら、市販の光彩顔料はこの

4種以外にも様々な発色を呈するものがあり、これらを用いることで、光彩上絵の更なる多色化が期待できる。

今回は、それ以外の色合いを示す市販の様々な光彩顔料を用い、光彩上絵の多色化の検討を行った。

その結果、赤色系6種、緑色系1種、青色系4種、金色系4種、オレンジ色系1種の計16種の光彩顔料が、いわゆる「メタリック調」の光彩特性をもつ光彩上絵の着色に用いることができることがわかった。図7に、これら16種類の光彩顔料で作製した光彩上絵を、黒色釉陶板上にそれぞれ施したテストピースを示す。光彩顔料の種類によって、それぞれ特徴ある光彩感や呈色を示すことが観察された。



図7 新たに開発した着色系の光彩上絵(黒色陶板上)。

また、光彩上絵用フリットに  $\text{CoO}$  や  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  等の酸化金属やプラセオジム黄などの市販の各種顔料を添加して着色し、これに光彩顔料を添加して、光彩上絵の着色を試みた。この場合、上絵ガラス(色ガラス)の色が濃いと光彩感が損なわれてしまうので、発色が薄めの色の方が光彩感をより生じ、特徴ある有色光彩上絵になることがわかった(図8)。

さらに、市販の様々な色の上絵(層)の上に光彩上絵層を形成する(焼成する)ことによって、さらに多くの光彩上絵のカラーバリエーションを作り出すことができることを確認した(図9)。

以上のように、光彩上絵自体の多色化の他に、これら

光彩上絵+色ガラスや光彩上絵+下地色(色上絵)によって、数多くの色合いの光彩上絵を作製できることが確認できた。



図8 酸化金属などの着色剤を用いた光彩上絵



図9 各色上絵上に形成した光彩上絵

### 3.2 銀色光彩上絵の開発

市販の銀雲母上絵は上絵フリットに黒色顔料を少量添加し、白色の雲母添加量などを調整して作製されている。光彩上絵においても同様な方法で銀色光彩上絵を作製できると考え、まず、白色光彩上絵具(粒径  $180\mu\text{m}$ 、 $2.0\text{mass}\%$ 添加試料)に黒色顔料を添加する試験を行った。図10に黒色顔料を0~ $1.0\text{mass}\%$ 添加した時の銀色光彩感の変化を示す。目視による官能試験において、 $0.2\text{mass}\%$ 黒色顔料添加試料が最も銀色に近いことが確認できた。したがって、以後は、 $0.2\text{mass}\%$ 黒色顔料添加試料を標準とし、試験を行うこととした。

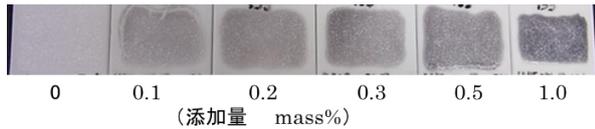


図10 銀色光彩感に及ぼす黒色顔料添加量の影響

次に、光彩顔料の各粒径違いによる銀色光彩感の試験を行った。図11にその結果を示す。粒径が25 $\mu\text{m}$ 以下の光彩顔料を用いた場合は、光彩感が小さいためか、銀色より灰色の印象が大きかった。また100 $\mu\text{m}$ 以上の比較的大きな粒径の光彩顔料を用いた場合は、光彩顔料が上絵ガラス中でキラキラと光を反射し、より銀色感を示した。また、光彩顔料の添加量の検討を行った結果、2mass%添加の試料が光彩感は良好であった。

これらの結果から、光彩上絵用フリットに黒色顔料0.2mass%添加し、粒径が約180 $\mu\text{m}$ 及び約100 $\mu\text{m}$ 光彩材を2.0mass%添加し、銀色光彩上絵試料を作製した。その結果を図12に示す。

開発した銀色光彩上絵は、従来の銀雲母上絵とは全く異なった質感であり、キラキラと光る表面光沢を有する上絵であり、今までにない銀色上絵加飾材を得ることができた。

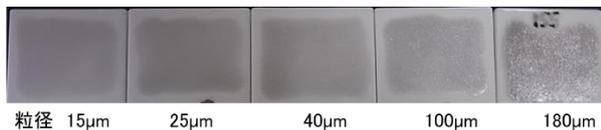


図11 銀色光彩感に及ぼす光彩顔料粒径の影響

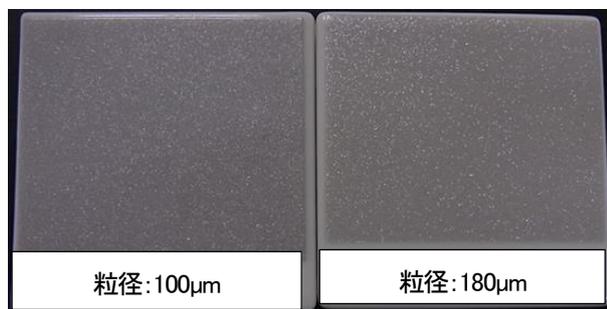


図12 開発した銀色光彩上絵

### 3.3 光彩ほうろう上釉の開発

陶磁器上絵より焼成温度がやや低く、焼成時間も短いほうろう上釉に適合させるため、陶磁器用光彩上絵フリットの

組成を基に、添加するアルカリ成分などの量や種類を変化させ760 $^{\circ}\text{C}$ で焼成可能なフリットの調整を試みた。その結果、アルカリ金属であるLi成分を添加し、融点調整のためBa成分を減らし、さらに熱膨張の調整のため $\text{SiO}_2$ 添加量の再検討などを行うことによって、従来より40 $^{\circ}\text{C}$ 低い焼成温度に対応可能なほうろう光彩上釉用フリットを作製することができた。これに光彩顔料を添加することで、ほうろう光彩上釉用加飾材を開発した。このほうろう光彩上釉用加飾材を用いることで、陶磁器光彩上絵と同様に光彩顔料がキラキラとラメ状に光り、且つ、表面光沢があるほうろう製品が作製できた。その試作品を図13に示す。また、このほうろう光彩上釉用加飾材は、陶磁器用光彩上絵同様、光彩顔料の粒径や色合いの種類を変えることで、光彩の強さの調整や、様々な色への着色が可能であることがわかった。

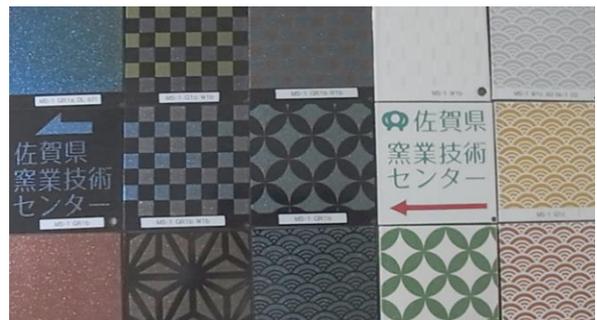


図13 ほうろう下釉上及び上釉上へ用いた光彩ほうろう上釉加飾材試料

## 4. まとめ

「メタリック」調の光彩性を持つ光彩上絵(Metallic Style Glass ;MSG)の技術を基に、①光彩上絵の光彩感の多様化・多色化 ②銀色光彩上絵の開発 ③光彩ほうろう上釉加飾材の開発を行った。

その結果、①光彩上絵の光彩感の多様化・多色化においては、40 $\mu\text{m}$ 以上の粒径の光彩顔料を用いて光彩上絵を作製した場合は、光彩感を有したまま光彩感を抑えることができ、光彩顔料の粒径を変化させることで、光彩上絵の光彩感の強度変化を自由に変えることができた。また、16種の光彩顔料が光彩上絵に用いることができることがわかり、それぞれ特徴ある光彩感や呈色を示した。また、光彩上絵自体の多色化の他に、これら光彩上絵+色ガラスや光彩上絵+下地色(色上絵)によって、数多くの色合

いの光彩上絵を作製できることが確認できた。

②銀色光彩上絵の開発においては光彩上絵用フリットに黒色顔料を添加し、粒径が大きめの光彩材を添加することで、銀色光彩上絵試料を作製した。黒色顔料の添加量が0.2mass%、光彩顔料の粒径を100～180 $\mu\text{m}$ とすることで、表面光沢があり、従来の銀雲母上絵とは全く異なった質感の、今までにない銀色上絵になった。

③光彩ほうろう上釉加飾材の開発においては、光彩上絵技術を基に焼成温度を約40 $^{\circ}\text{C}$ 低下させたフリットを新たに開発することで、ほうろう用の光彩上釉用加飾材を開発できた。このほうろう光彩上釉用加飾材を用いることで、陶磁器光彩上絵と同様に光彩顔料がキラキラとラメ状に光り且つ、表面光沢があるほうろう製品の作製が可能になった。

#### 参考文献

- 1) 白石敦則, 佐賀県窯業技術センター令和元年度研究報告書・支援事業報告書, 31-36 (2019).
- 2) 特許第6635610号 (2019).

## 新規陶磁器材料の用途開発に関する研究

嘉村 翔太郎  
佐賀県窯業技術センター

平成 28 年度に当センターで開発した世界最高強度磁器、高精度陶磁器という今までにない性質を持つ新しい材料について、食器の分野だけでなく、工業用製品など他分野への応用の可能性を調べるため、機械的特性、熱的特性、化学的特性等の各種物性評価を行った。また、高精度陶磁器について、原料や製造条件が気孔特性に与える影響を調べ、1200℃付近の低温焼成でも十分な気孔容積が得られる条件を見出した。

## Research on the development of new ceramic material applications

KAMURA Shotaro  
Saga Ceramics Research Laboratory

In order to investigate the applicability of new materials such as most strengthened porcelain and high precision ceramics, which Saga Ceramics Research Laboratory developed in 2016, to other fields such as industrial products as well as tableware, various properties like mechanical, thermal and chemical properties were evaluated. We also investigated the effects of raw materials and preparing conditions on the porous characteristics of high precision ceramics, and found the conditions under which a high pore volume can be obtained even by low temperature firing at around 1200°C.

### 1. はじめに

平成 28 年度に当センターで開発した世界最高強度磁器及び高精度陶磁器<sup>1)</sup>は、県内外の消費者、商社、窯元などから高い関心を集め、商品化が進んでいる。世界最高強度磁器はアルミナに匹敵する高い曲げ強度を持つことが明らかとなっており、アルミナ代替材料として期待される。また、高精度陶磁器は焼成変形や焼成収縮がほとんどない全く新しい陶磁器である。そのため、高精度の製品の製造が可能であり、さらに多孔質であるという特性を生かした新たな製品の開発が期待される。

二つの新しい陶磁器は、一般の有田焼と同じプロセスで製造が可能であるという特徴を有する。このため、一般的に高純度原料や厳密な製造条件の管理、1400℃以上の高温焼成が必要なファインセラミックス材料と比較し、低コスト、省エネルギーでの製造が可能である。また、一般的なファインセラミックス材料に比べると可塑性が高いため、成形性や加工性に優れ、バインダーや可塑剤を用い

る必要が無いことも利点として挙げられる。しかしながら、これらの新規陶磁器材料は物性が未評価であったため、工業用製品に要求される機械的特性、熱的特性、耐食性などの各物性を把握することが必要である。

本研究では、世界最高強度磁器及び高精度陶磁器の材料について、食器だけでなく幅広い用途への利用を促進するため、基礎的な物性を評価し、成形方法の確認や工業用製品としての用途開発及び更なる高機能化のための指針を得ることを目的とした。

### 2. 実験方法

#### 2.1 世界最高強度磁器の物性試験

世界最高強度磁器(以降、強化磁器と表記)についてはアルミナやジルコニアのようなファインセラミックス材料と比較するため、機械的特性を主として評価した。また、その他の物性についても一部評価を行った。物性試験において、強化磁器は、まず強化磁器陶土に適量の蒸留

水及び分散剤としてアクリル系ポリマー (A6012, 東亜合成製) を 0.2mass% 添加して含水率 25% の強化磁器泥漿を調製した。これを石膏型に流し込んで鑄込み成形し、乾燥後に 1300°C で焼成 (昇温速度: 100°C/h, 1 時間保持) して得られた焼成体をテストピースとした。なお、得られたテストピースは各物性試験ごとに適正な形状に成形あるいは試料切断機 (MARUTO 製 MC-171) で加工して試験を行った。

### 2.1.1 機械的特性

#### ・ビッカース硬さ試験

焼成体 5 つを 5mm × 5mm × 厚さ 3mm (±0.5mm) 以下のサイズに加工したのち、測定面を鏡面研磨機 (ムサシノ電子株式会社製 MA-150) で研磨処理を行った。その後、ビッカース硬さ試験機 (島津製作所製 HMV MICRO HARDNESS TESTER) を用いて硬度を測定し、平均値を算出した。

#### ・曲げ強度試験 (JCRS 203, JIS R 1601)

試験は JCRS 203 (食器用強化磁器の曲げ強さ試験方法)<sup>2)</sup> 及び JIS R 1601 (ファインセラミックスの曲げ強さ試験方法)<sup>3)</sup> の規格に基づいた二種類の方法で行った。

JCRS 203 では、原料を鑄込み成形した生の試料を 900°C で素焼き (昇温速度: 150°C/h) し、強化磁器用タルク釉 (線熱膨張係数  $6.57 \times 10^{-6} / K$ ) を施釉したのち 1300°C で焼成したものをテストピースとした。また、JIS R 1601 では、原料を鑄込み成形した試料を無釉のまま 1300°C で焼成したものをテストピースとした。試料は、それぞれの規格<sup>2)3)</sup> に準じた形状に成形又は加工したものを測定試料とし、試験は卓上精密万能試験機 (島津製作所製 autograph AG-X 10kN) を用いて、クロスヘッドスピード 5mm/min の条件で測定を行った。得られた破壊荷重データと試料サイズから曲げ強度を算出し、それぞれ 10 サンプル試験による平均を測定値とした。

#### ・圧縮強度試験

焼成体を 10mm × 10mm × 厚さ 10mm 以下のサイズに加工したのち、万能材料試験機 (島津製作所 UH-1000kNC) を用いて圧縮試験を行った。得られた破壊荷重から圧縮強さを算出し、5 サンプル試験による平均を測定値とした。

#### ・ヤング率、ポアソン比測定

焼成体を 20mm × 100mm × 厚さ 2mm (面平行度 0.01) に加工した試料を、一般財団法人ファインセラミックスセンターに依頼して、共振法 (曲げ、ねじり) による測定を行った。

#### ・破壊靱性試験

焼成体を 3mm × 4mm × (厚さ 36~40mm) に加工した試料を、一般財団法人ファインセラミックスセンターに依頼し、SEPB 法による測定を行った。

### 2.1.2 熱的性質

#### ・熱膨張率試験

焼成体を丸棒状 (5mm φ × 約 20mm) に加工した試料を、熱機械分析装置 (NETZSCH 製 TMA4000SE) を用いて 50~900°C の温度範囲で線熱膨張係数を測定した。

#### ・熱伝導率試験

焼成体を 10mm × 10mm × 厚さ 1mm の角形板状に加工して測定試料とした。なお、安定した測定値を得るために、前処理として板状試料の上下面に卓上スパッタ装置 (サンヨー電子製 Quick Coater SC-701Mk II ADVANCE) を用いて金 (Au) コート、及びスプレーによるカーボンコートを行った。試料は、レーザーフラッシュ法熱伝導率測定装置 (NETZSCH 製 LFA457) を用いて熱伝導率及び比熱容量を測定した。

### 2.1.3 耐薬品性

JIS R 1503 (化学工業耐酸磁器の試験方法)<sup>4)</sup> に基づき試験を行った。試料は焼成体をアルミナ製乳鉢で粉碎し、500 μm の標準網ふるいを用いてふるい分け、超音波洗浄で表面の微粉末を除去した後、99.5% エタノール (富士フィルム和光純薬 特級) で洗浄し、105°C の空気浴中で 1 時間乾燥させた。この試料について耐酸、耐アルカリ性試験を行い、得られた結果から耐薬品性を表す指標として質量減少率 (%) を算出した。

耐酸 (アルカリ) 度 (質量減少率) (%) =

$$\frac{(m_1 - m_2)}{m_1} \times 100$$

$m_1$  : 処理前の試料の質量

$m_2$  : 処理後の試料の質量

・耐酸性試験

粉碎処理した試料を 10g 秤量し、塩酸(36%)、硝酸(61%)、硫酸(95%) (すべて富士フィルム和光純薬製)の各 10 mass %の等量混液 100mL に加え、30 分おきに振とうし、90℃の水浴中で 5 時間加熱した。その後、上澄み液を静かに流出させ、その残渣を温水とともに傾斜法で pH 試験紙を利用しながら中性となるまで反復洗浄し、99.5% エタノールで洗浄したのち 105℃の空気浴中で 1 時間乾燥させ秤量した。

・耐アルカリ性試験

アルカリ溶液として水酸化カリウム(和光純薬工業製)で 10 mass%の KOH 溶液を調製し、耐酸性試験と同様の手順で耐アルカリ試験についても行った。

2.1.4 その他の物理的性質

・真密度測定

焼成体をアルミナ乳鉢で微粉碎し、ゲーリュサック型比重瓶を用いてピクノメーター法で測定を行った。

・吸水率、嵩密度測定

試験は水中重量法(アルキメデス法)を用いた。重量の変化がみられなくなるまで乾燥させた焼成体を 3 個用意し、それらを 3 時間煮沸して室温まで冷却後、乾燥重量、飽水重量、水中重量の値から吸水率と嵩密度を算出した。

2.2 高精度陶磁器の物性試験

高精度陶磁器(以降、多孔質陶器と表記)は多孔質材料であるため、気孔特性及びその他の物性について評価を行うこととした。物性試験において、多孔質陶器は、まず原料粉末に適量の蒸留水及び分散剤として珪酸ナトリウム(水ガラス 3 号, 日本化学工業製)を 0.2mass%添加して含水率 27%の多孔質陶器泥漿を調製した。これを石膏型に流し込んで鑄込み成形し、乾燥後に 1300℃で焼成(昇温速度:100℃/h, 1 時間保持)して得られた焼成体をテストピースとした。なお、得られたテストピースは各物性試験ごとに適正な形状に加工して試験を行った。

2.2.1 気孔特性

焼成体を乳鉢で 5~10mm 程度に粉碎し、以下の測定を行った。

・細孔分布測定

自動水銀ポロシメータ (Micromeritics 製 AutoPoreIV) を用いて水銀圧入法で測定した。

・比表面積測定

ガス吸着アナライザー (Quantachrome 製 QUADRASORB SI)を用いてガス吸着法で行った。

2.2.2 機械的特性

・曲げ強度試験

無釉で、JCRS 203 の方法で行った。

・圧縮強度試験

強化磁器と同様の方法で行った。

2.2.3 熱的性質

・熱膨張率試験:強化磁器と同様の方法で行った。

・熱伝導率試験

多孔質材料はレーザーフラッシュ法では測定が難しいため、熱線法による測定とし、迅速熱伝導率計(京都電子工業製 Kemtherm QTM-D3)を用いて行った。なお試料は、測定プローブのヒータ線が試料と十分に接触するように 48mm×129mm×厚さ 20mm に加工したものをを用いた。

2.2.4 化学的性質

耐酸、耐アルカリ性試験について強化磁器と同様の方法で行った。

2.2.5 その他の物理的性質

真密度、吸水率、嵩密度試験について強化磁器と同様の方法で行った。

2.3 高精度陶磁器の改良試験

・気孔特性のコントロール

多孔質陶器の気孔特性をコントロールすることができれば、さまざまな用途へ応用できる可能性がある。一般的に、多孔質セラミックスの気孔をコントロールする際にはいくつかの方法があるが、有田で作られているような一般的な磁器と同じ工程で製造すること考慮して、原料を変更することで気孔サイズの調整ができないか検討を行った。多孔質陶器陶土の原料は天草陶土、蛙目粘土、石灰、ア

ルミナを使用しているが、今回はアルミナ及びその粒子径に注目し、試験を行った。試験する陶土は、原料として、天草陶土、蛙目粘土及び石灰石に、粒径が異なる8種類のアルミナ(表1を参照。AES-11, A20(住友化学製)、SA31, SA32, SA34(日本軽金属製)、AL13KT, AL43A, AL170(昭和電工製))をそれぞれ混合することとし、これに適量の蒸留水及び分散剤として珪酸ナトリウム(水ガラス3号, 日本化学工業製)を0.2mass%添加して含水率28%の泥漿を調製した。これを石膏型に流し込んで鑄込み成形し、乾燥後に各温度(1200°C, 1250°C, 1300°C)で焼成(昇温速度:100°C/h, 1時間保持)して得られた焼成体をテストピースとした。

表1 使用したアルミナの中心粒径

アルミナ	中心粒径(μm)
AL13KT	97
AL43A	50
A20	29.5
SA31	5
SA34	4
AL170	1.8
SA32	1.7
AES-11	0.43

・焼成条件について

多孔質陶器の気孔特性と、焼成温度や昇温速度等の焼成条件との関連性ははっきりとわかっていないため、その条件について検討した。過去の研究結果<sup>5)</sup>からAnorthite(CaO・Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>・2SiO<sub>2</sub>)の生成がガラスの生成より早ければ変形しにくいことが分かっている。このことから、昇温速度の違いによる変形量の変化について試験した。試料は、多孔質陶器の原料である天草陶土、蛙目粘土、石灰、アルミナの4種類の原料割合を変化させ、珪酸ナトリウム(水ガラス3号)を0.2mass%添加した含水率27%の泥漿で鑄込み成形を行い、複数のテストピースを作成した。その後、ベンディング用架台にそれらのテストピースを乗せ、電気炉を用いて1300°Cまで各昇温速度(50°C/h, 100°C/h, 200°C/h, 300°C/h)の条件で焼成を行い、焼成変形の量を確認した。

多孔質陶器は1200°C台前半のような比較的低温領域

での焼成では中央細孔径が小さく1300°C焼成のものと比較してディフューザーとしての吸い上げ特性が低下する。そこで、低温域での焼成でもディフューザーとしても十分に使用できるように改良試験を行った。ここでは既存の原料を用いて天草陶土を35~55%、蛙目粘土を5~20%、石灰を20~35%、アルミナを10~20%の範囲で調合割合を変化させテストピースを作成することとした。既存の原料に珪酸ナトリウム(水ガラス3号)を0.2mass%添加し、含水率27%の泥漿でテストピースを鑄込み成形し、電気炉を用いて各温度(1200°C, 1225°C, 1250°C)で焼成(昇温速度:100°C/h, 1時間保持)した。得られた焼成体のアルミナの粒子径の違いによる気孔特性を自動水銀圧ポロシメーター(2.2を参照)で評価した。また一部の材料においては、電解放出型走査電子顕微鏡(JEOL製JSM-7500f)を用いて組織構造の表面観察を行い、また生成物については全自動多目的X線回折装置(Rigaku製SmartLab)を用いて結晶層の同定を行った。

2.4 世界最高強度磁器と高精度陶磁器の成形試験

強化磁器と多孔質陶器を利用した製品は、現在、主に鑄込み成形やローラーマシン成形が行われているが、これらの素材の食器以外の分野への応用の可能性を探るためには、他の成形方法による成形性の評価を行う必要がある。そこで、以下の方法を用いて成形試験を行った。

・プレス成型

はじめに、強化磁器と多孔質陶器の陶土を乾燥させ、粉末になるまで磁器製乳鉢で粉碎した。その後、約10gずつ15mm×60mmの金型に入れ、ハンディ油圧プレス機(ENERPAC製SEFW-20)を用いて約2tonの荷重で30秒間プレス成型を行い、成形性について評価した。

・押出成形

強化磁器陶土(含水率20%)と多孔質陶器陶土(含水率19%)で、混練一体押出成形機(宮崎鉄工製FM-P30H)を用いて押出成形を行った。成形に使用した押出用金型は、角柱状(8mm×8mm)、円柱状(φ3mm, φ10mm)、パイプ(外形φ10mm、内径φ1mm)、ハニカム(24mm×24mm、ピッチ径2mm×2mm、壁厚1mm)の5種類を使用し、成形のしやすさについて評価した。

3. 結果と考察

3.1 世界最高強度磁器の物性試験結果

2.1 の強化磁器に関する物性試験で得られた結果を表2に示す。また、強化磁器と当初の比較対象であったアルミナの物性<sup>6)7)8)</sup>と、ジルコニアの物性<sup>7)8)9)</sup>について合わせて表記した。機械的特性について注目すると、多くの評価項目で強化磁器はアルミナとジルコニアに比べて値が低い傾向があったが、曲げ強度に関してはアルミナに匹敵することがわかった。アルミナやジルコニアのようなファインセラミックス材料は一般的に1500℃以上の高い温度で焼成され、製造に多くのエネルギーを必要とする。また、原料自身に可塑性が無いためバインダーを添加する必要があり、製造における工程数が多く、硬い材料であるため加工コストもかかる。これと比較し、強化磁器は通常の磁器と同じ1300℃で焼成が可能で、原料自体に可塑性があるためバインダーも不要である。また、製造工程が少なく、アルミナやジルコニアに比べると切削加工が容易であるなど、エネルギーや製造コストの面でメリットがある。このため、アルミナやジルコニアのような高い機械的特性

を要求しない用途への利用については十分に代替として利用できる可能性があると考えられる。また、熱伝導率以外の熱的性質、化学的性質、物理的性質について本強化磁器は比較的アルミナに近い値であった。このことから、特にアルミナの代替材料として利用の可能性が示唆された。

3.2 高精度陶磁器の物性試験

細孔分布測定で得られた分析結果を図1に示す。この結果から多孔質陶器は細孔径が約8μmの非常にシャープな細孔分布を有することが明らかとなった。また、2.2 の多孔質陶器に関する物性試験で得られた結果を表3に示す。現在、この材料の用途としてはアロマディフューザーが多いが、多孔質材料は気孔サイズによって適した用途があるため、材料の各種物性が明らかになったことで酵母や触媒の担体やフィルター、散気材等、ディフューザー以外の用途への応用につながると考えられる。また、化学的性質について見ると、酸にとっても弱く、アルカリにも注意が必要な結果となった。これは、材料成分中には

表2 強化磁器(1300℃酸化焼成、昇温速度100℃/h、保持時間1h)とアルミナ、ジルコニアの物性表.

	試験項目	単位	材質		
			強化磁器	アルミナ	ジルコニア
機械的 性質	ビッカース硬さ	GPa	7.86	18.6	10.7~12.7
	曲げ強度(JCRS203)	MPa	351	-	-
	曲げ強度(JISR1601)	MPa	281	294~392	900~1500
	圧縮強度	MPa	531	2700~3000	-
	ヤング率	GPa	153	350~400	210
	ポアソン比	-	0.22	0.25	0.31
	破壊靱性	MPa·m <sup>1/2</sup>	1.8	4.5	8~12
熱的 性質	平均線熱膨張係数	×10 <sup>-6</sup> /K	7.0	8.0	9.2~9.8
	熱伝導率(室温)	W/(m·K)	5.3	25~31	3.3
	比熱容量	J/(g·K)	0.69	0.79~0.84	0.46
化学的 性質	耐酸度	%	0.03	0.03~0.65	0~0.04
	耐アルカリ度	%	0.49	0.03~0.91	0.08
物理的 性質	真密度	g/cm <sup>3</sup>	3.1	3.6~3.9	6.05
	吸水率	%	0.02	0	0
	嵩密度	g/cm <sup>3</sup>	3.1	3.9	6.0~6.1

CaO 成分が多いためであると考えられ、強い酸やアルカリ条件中で使用する場合は注意が必要であることがわかった。

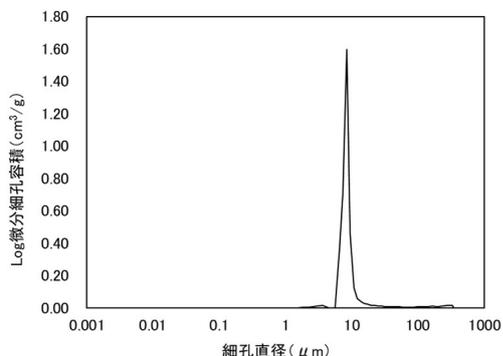


図1 多孔質陶器の最高分布(焼成温度 1300°C、酸化焼成、昇温速度 100°C/h、保持時間 1h).

表3 多孔質陶器(1300°C焼成、昇温速度 100°C/h、保持時間 1h)の物性表.

	試験項目	単位	結果
気孔特性	気孔率	%	33
	全細孔容積	cm <sup>3</sup> /g	0.19
	中央細孔径	μm	8.2
機械的性質	曲げ強度(JCRS 203)	MPa	48
	圧縮強度	MPa	17
熱的性質	平均線熱膨張係数	10 <sup>-6</sup> /K	5.4
	熱伝導率	W/(m·K)	1.9
化学的性質	耐酸度	%	47
	耐アルカリ度	%	0.97
物理的性質	真密度	g/cm <sup>3</sup>	2.8
	吸水率	%	18
	嵩密度	g/cm <sup>3</sup>	1.7

### 3.3 高精度陶磁器の改良試験

#### ・気孔特性のコントロールについて

異なる粒径のアルミナを用いた焼成試験結果を図2に示す。この結果から、中心粒径が29.5 μm以上のような大きい粒径では焼成変形が大きく、それ以下の粒径を持つアルミナを用いた試料ではほとんど焼成変形をしないという結果が得られた。これは、粒径が小さいものは表面積が大きいことから反応性が高く、早い段階で Anorthite が生成したことが要因となったと考えられる。また、焼成変形

が小さかったテストピース(SA31, SA32, SA34, AL170, AES-11)の全細孔容積及び中央細孔直径を図3、図4に示す。

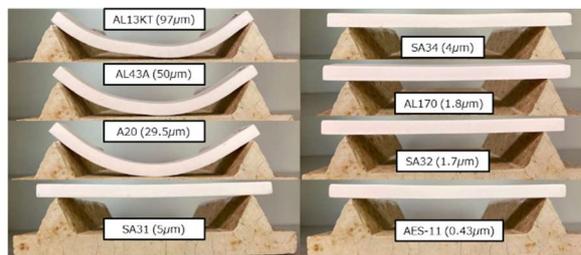


図2 異なる粒径のアルミナと焼成変形の関係(焼成温度 1300°C、酸化焼成、昇温速度 100°C/h、保持時間 1h).

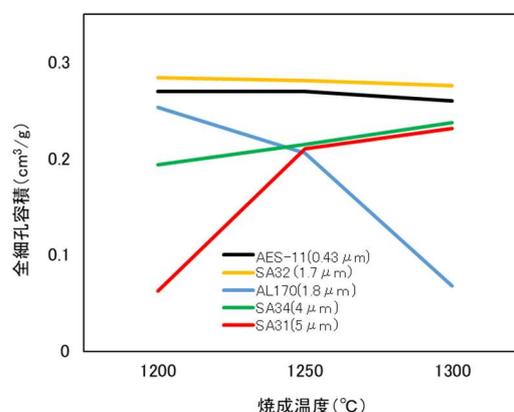


図3 異なる粒径のアルミナと焼成温度、全細孔容積の関係(酸化焼成、昇温速度 100°C/h、保持時間 1h).

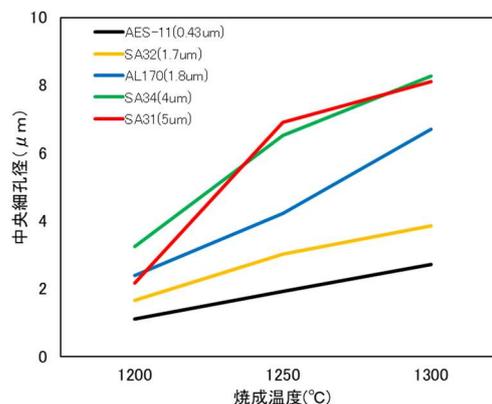


図4 異なる粒径のアルミナと焼成温度、中央細孔径の関係(酸化焼成、昇温速度 100°C/h、保持時間 1h).

全細孔容積の結果からはアルミナの粒径、焼成温度との明確な関連性はみられなかったが、中央細孔直径については 1200°C~1300°Cの焼成温度の範囲では大きくなる傾向が確認でき、さらに粒子の大きなアルミナの方が、細孔径が大きくなる傾向が明らかとなった。このことから、原料を変更することによって一定の範囲内ではあるが気

孔特性のコントロールが可能であることが示唆された。これらの中で SA32(中心径 1.7 μm)と AL170(中心径 1.8 μm)では中心径の差が 0.1 μm しかないにもかかわらず、温度依存性が大きく異なる。これらの違いについて詳しく確認するため、それぞれのアルミナについて粒度分布測定装置(セイシン企業製 LMS-2000e)を用いて粒度の測定を行い、その結果を図 5 に示す。

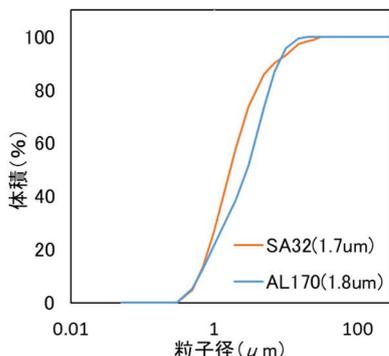


図 5 アルミナ(SA32とAL170)の粒度分布.

粒度分布の測定結果では、粒子径に大きな違いはなかったが、AL170 は低い焼結温度でも焼結しやすいという特性を持つため、1300℃の焼成温度では焼結が進むことでガラス化が早まり、全細孔容積が減少し、結晶の成長により中央細孔径が大きくなったのではないかと考えられる。

・焼成条件について

焼成体の中では焼成変形が小さいテストピースもあったため、比較しやすいように変形量が大きかった試料 A (天草陶土 40%、蛙目粘土 10%、石灰 30%、アルミナ(SA34) 20%)、試料 B(天草陶土 40%、蛙目粘土 18%、石灰 24%、アルミナ(SA34) 18%)について焼曲試験を行った結果を図 6 に示す。

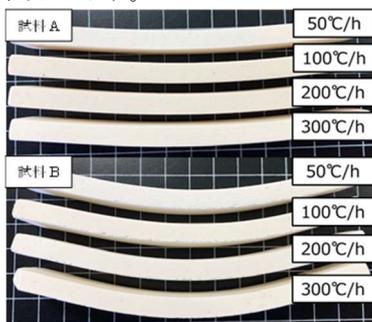


図 6 昇温速度と焼成体 AB の焼成変形量の関係(1300℃酸化焼成、昇温速度は図中記載、保持なし).

焼成変形が大きくなテストピースは昇温速度にかかわらず変形してしまい、今回試験を行った昇温速度の範囲(50℃/h~300℃/h)では焼成変形量と昇温速度の関連性は小さいという結果が得られた。

次に低温域での焼成について 1200℃、1225℃、1250℃の焼成で焼曲がほとんどなかったものについて4つピックアップした。その調合割合(%)を表 4 に示す。

表 4 改良した高精度陶磁器の調合割合表.

原料	試料 1	試料 2	試料 3	試料 4
天草	35	32	40	40
蛙目	20	18	10	18
石灰	25	30	30	24
アルミナ	20	20	20	18

これらの調合割合で作成した焼成後の試料について全細孔容積及び中央細孔直径を図 7、図 8 に示す。

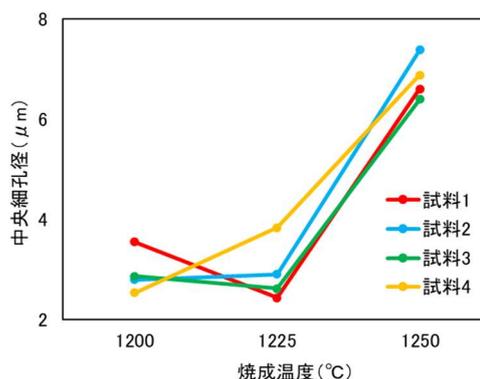


図 7 試料 1~4 の全細孔容積と焼成温度の関係 (酸化焼成、昇温速度 100℃/h、保持時間 1h).

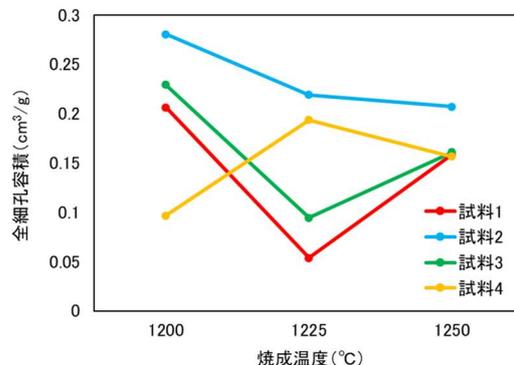


図 8 試料 1~4 の中央細孔径と焼成温度の関係 (酸化焼成、昇温速度 100℃/h、保持時間)

全細孔容積について、1200℃ではばらつきがみられたが、1250℃ではその差が小さい結果であった。また、中

中央細孔直径については焼成温度依存性が強く、焼成温度が高くなるにつれて細孔径も大きくなることが明らかとなった。

得られた試料1、2、3、4のSEM像を図9(低倍率)及び図10(高倍率)に示す。250倍のSEM像を見ると、焼成温度が高くなるにつれてすべての試料で気孔径が大きくなっている傾向がみられ、細孔分布測定による細孔径の結果と一致した。低倍率のSEM像では、焼成温度が高くなるにつれてすべての試料で気孔径が大きくなっている傾向が見られ、細孔分布測定による細孔径の結果と一致し

た。また、高倍率のSEM像からは焼成温度からは焼成温度が高くなるにつれて Anorthite と思われる結晶(図中矢印箇所)が晶出していることを確認できた。次に図11にX線回折パターンによる焼成温度による変化を示す。試料の主な結晶相は Quartz、Corundum、Gehlenite、Anorthiteであった。以前の研究<sup>5)</sup>により、多孔質陶器陶土の焼成反応では原料中の Quartz や Corundum、Lime 等が反応し Gehlenite から Anorthite が晶出し、成長すると考えられている。そこで、X線回折パターンの中で特に強く表れている Quartz(26.6°)、Corundum(35.2°)、Gehlenite(31.4°)、

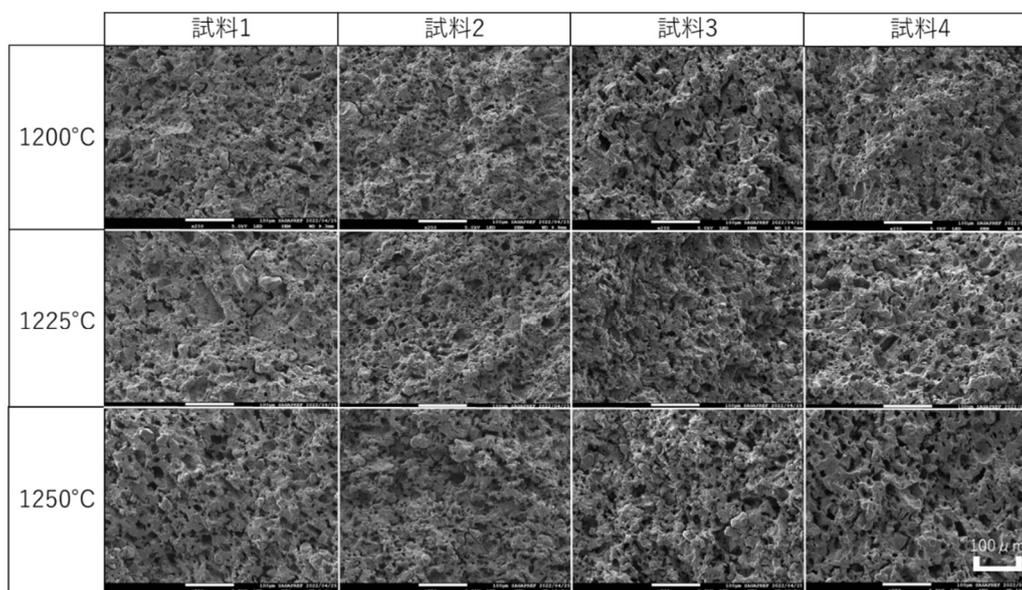


図9 試料1~4の各焼成温度におけるSEM像(エッチング処理無、250倍)。

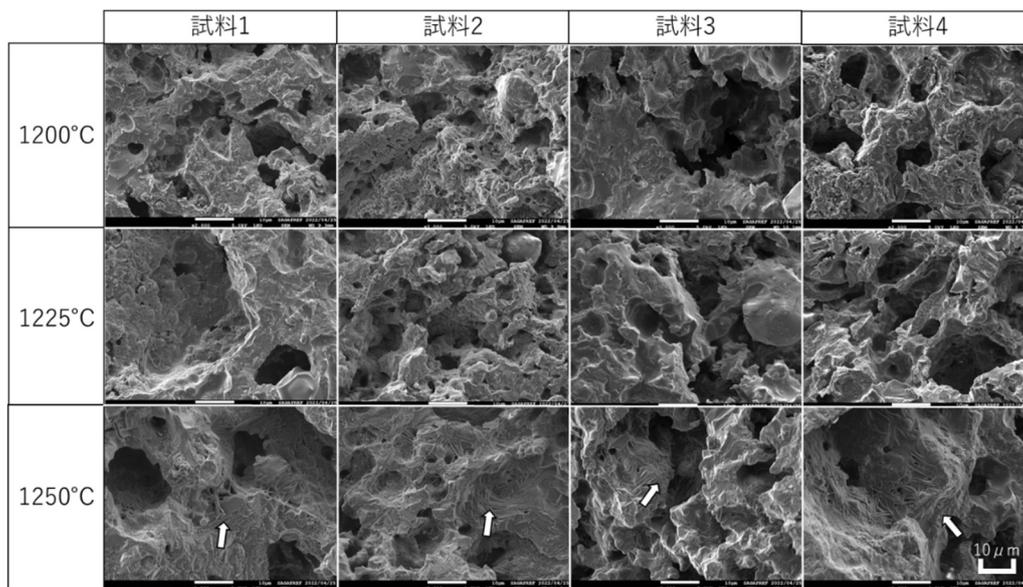


図10 試料1~4の各焼成温度におけるSEM像(エッチング処理無、2000倍)。

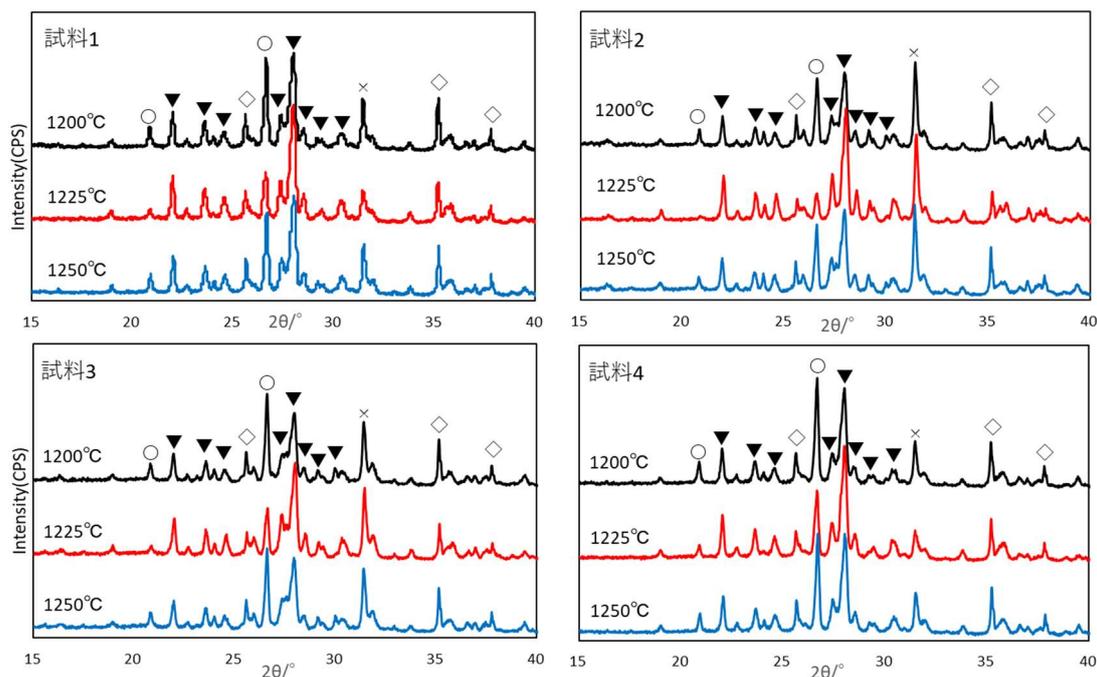


図 11 試料 1~4 の各焼成温度における XRD 測定結果 (○:Quartz、◇:Corundum、×:Gehlenite、▼:Anorthite)。

Anorthite(28°)の第一ピークに着目し、ピーク強度の変化を表 5 に示す。Quartz、Corundum についてはすべての試料で焼成温度が高くなるにつれてピーク強度が減少し、Anorthite のピーク強度が強くなっていることがわかり Anorthite の成長が確認された。しかし、Gehlenite の強度については、試料 1、試料 4 は焼成温度が高くなるにつれて減少しているが試料 2、試料 3 については減少していなかった。このことから、1200°C付近で Gehlenite 結晶が十分晶出していると、図 7 で示したように全細孔容積が大きくなるのではないかと考えられる。よって、低い焼成

温度帯で大きな気孔容積を有する焼成体を得るには Gehlenite 結晶の晶出が重要ではないかと考えられる。Gehlenite が既に多く成長していた試料 2、3 では試料 1、4 に比べ 1200°C焼成での Quartz と Anorthite のピーク強度が比較的低かった。このことから Gehlenite と Anorthite が成長するために十分な量の Quartz が存在していればより Gehlenite が増加するのではないかと考えられ、さらなる改良の余地が示唆された。

表 5 試料 1~4 の各焼成温度におけるピーク強度 (CPS)

Sample	Quartz (26.6°)	Corundum (35.2°)	Gehlenite (31.4°)	Anorthite (28°)
試料 1	1200°C	2050	1210	1200
	1225°C	1840	1150	1180
	1250°C	1175	965	802
試料 2	1200°C	1609	1109	1942
	1225°C	1575	1106	1984
	1250°C	720	757	1944
試料 3	1200°C	1984	1057	1413
	1225°C	1831	1024	1421
	1250°C	1155	833	1566
試料 4	1200°C	2334	1037	1057
	1225°C	2180	1090	977
	1250°C	1551	978	744

### 3.4 世界最高強度磁器と高精度陶磁器の成形試験結果 ・プレス成型

強化磁器、多孔質陶器共に乾粉は水やバインダーを用いずに成型が可能で、焼成前の成形体はハンドリングが可能な強度であった。成形体を電気炉で 1300°C、昇温速度 200°C/h の条件で焼成したものを図 12 に示す。

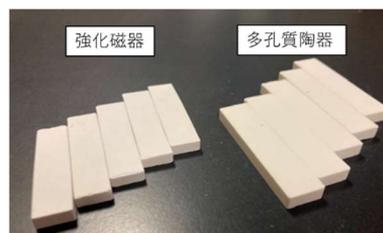


図 12 プレス成型のテストピース(1300°C酸化焼成、昇温速度 200°C/h、保持時間 1h)。

焼成体について、多孔質陶器はほとんど収縮がなかったが、強化磁器では焼成前のサイズから26%小さくなっていた。このため、強化磁器を用いる際は特に焼成収縮について注意する必要がある。

・押出成形

成形体を電気炉で1300℃、昇温速度200℃/hの条件で焼成したものを図13に示す。



図13 押出成形のテストピース(1300℃酸化焼成、昇温速度 200℃/h、保持時間 1h).

強化磁器、多孔質陶器共に、角柱、円柱、パイプについてはバインダーを添加せずに問題なく成形が可能であった。しかしながら、ハニカムについては陶土が押し出されたのち裂けてしまい成形することができなかった。したがって、ハニカムのような複雑な形状を成形するには、強化磁器及び多孔質陶器についてそれぞれ適したバインダーを検討し、可塑性の増加及び原料粒子同士の密着性の向上をはかる必要があると考えられる。

4. まとめ

世界最高強度磁器と高精度陶磁器について物性表を作成した。これらの材料の詳細な物性が判明したことにより、他分野への応用の可能性が広がった。

多孔質陶器について改良試験を行うことで原料と気孔特性の関係性や焼成温度の影響について知見を得ることができた。また、1200℃周辺の低温領域の焼成でも高い気孔容積が得られる条件を発見し、更なる改良の余地が見いだされた。

強化磁器と多孔質陶器について、食器以外の分野での応用の可能性を探るため、プレス成型と押出成形について実施した。ハニカムのような複雑な形状については課題が残ったが、円柱、角柱、パイプについては問題なく成形が可能であることがわかった。

参考文献

- 1) 蒲地伸明 他, 佐賀県窯業技術センター平成 29 年度 研究報告書, 1-3(2017).
- 2) JCRS 203:1996.
- 3) JIS R 1601:2008.
- 4) JIS R 1503:1991.
- 5) 蒲地伸明, 山崎加奈 佐賀県窯業技術センター令和元年度研究報告書, 40-44(2020).
- 6) 檜垣寅雄(1983). エンジニアリングセラミックス,176-210.
- 7) 日本セラミックス協会(1989). セラミック工学ハンドブック, 2006-2009.
- 8) KYOCERA FINE CERAMICS 材料特性表 (<https://kyocera.co.jp/prdct/fc/material/property/material/comparison/index.html>)
- 9) 宗宮重行(1983). ジルコニアセラミックス 1,175.

## 釉薬性状の制御に関する研究

蒲地 伸明

佐賀県窯業技術センター

施釉時間、釉薬の濃度が施釉に与える影響を改めて確認するとともに、添加剤による施釉特性の改善を試みた。素地が飽和するまでは施釉時間と釉薬の付着量は比例すること、施釉時間に対する施釉重量の変化率は重ポーメ度の影響をほとんど受けないことが確認できた。消泡剤や撥水剤の添加試験では、わずかな添加でも施釉体表面の状態が大きく変化することが明らかとなった。

### An attempt to improve glazing properties.

KAMOCHI Nobuaki

Saga Ceramics Research Laboratory

The purpose of this study is confirmation how the glazing time and glaze density affect the workability and the glazed surface state. The glaze adhesion weight was directly proportional to glazing time until water saturating the body. The glaze density didn't affect on the glaze adhesion weight changing ratio to the glazing time. On the defoaming agent or water repellent agent additive test, a small amount agent gave large influence on the glazed surface state.

#### 1. はじめに

陶磁器に使用される釉薬は目的の雰囲気や熱膨張等を得るために様々な原料を用いて調合される。当センターでも多様化する加飾ニーズに応えるために様々な釉薬開発を行ってきた<sup>1)</sup>。他に、釉薬原料の変化に対応するために釉調合支援ソフトを開発し配布も行っている<sup>2)</sup>。

一方で、焼成後の雰囲気や熱膨張を優先した釉薬によっては施釉時の作業性の低下や、乾燥後の釉薬表面の脆さ等が問題となることがある。主な原因として、粘土鉱物の過多や過少、凝集・分散作用の強い原料の使用があり、原料の煨焼や釉薬の粒度調整などで対策するが限界もある<sup>3)</sup>。

そこで、本研究では施釉時間、釉薬の濃度が施釉に与える影響を改めて確認するとともに、添加剤による施釉特性の改善を試みた。

#### 2. 実験方法

##### 2.1 施釉装置

施釉特性の確認には安定して施釉を行う必要があるため施釉装置を製作した。図1に施釉装置の写真を示す。

施釉装置は 60~90° に角度調整可能な釉タンクとワイヤー支持の釉ばさみから構成されており、最小限の釉薬量で施釉試験が可能である。

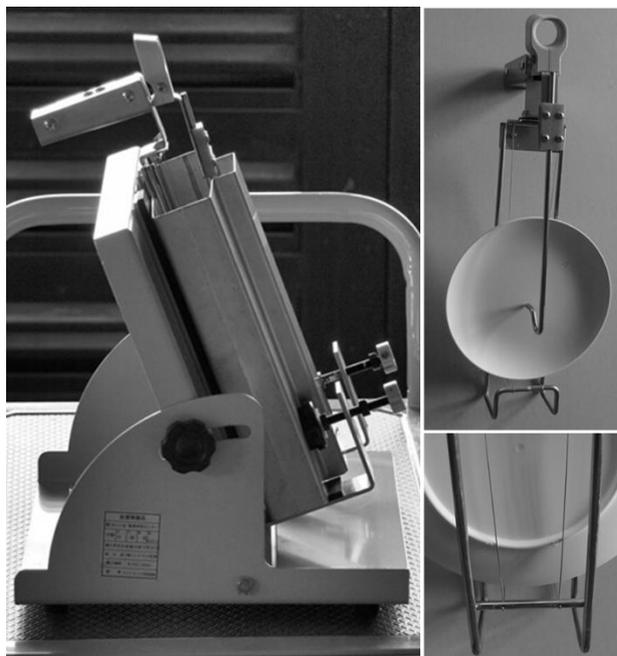
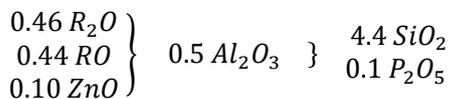


図1 施釉装置。  
(左:釉タンク, 右上:釉ばさみ上面, 右下:釉ばさみ下面)。

## 2.2 基礎試験用釉薬

試験に使用した釉の調合を表1に、粒度分布を図2に示す。またゼーゲル式は以下のとおりである。



釉薬の粘度は B 型回転粘度計(DVH-BII,トキメック製)で測定した。

表1 基礎試験用釉薬の調合割合

原料	調合割合 %
益田長石	46
インドソーダ長石	19
焼タルク	6
骨灰	7
マレーシアカオリン	5
珪石	15
亜鉛華	2

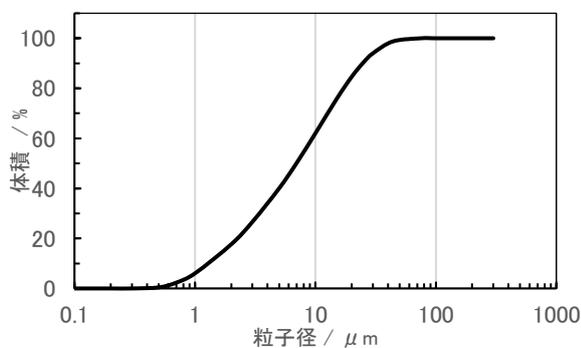


図2 基礎試験釉の粒度分布。(中心粒径 70μm)

## 2.3 施釉試験

2.2 に示した基礎釉のボーマ度を 38~44 まで変化させ施釉装置を用いて 5 寸皿へ施釉試験を行った。施釉前の素焼き素地重量を計量後、1, 3, 5 秒と浸漬時間を変えて施釉を実施し、乾燥後の試料重量から素地重量を差し引いて各条件で付着した釉薬重量を求めた。試験には、ローラーマシン成形で作製した 5 寸皿をランダムに 12 枚抜き出し試料として用いた。それらの試料は平均重量が 131.3g、標準偏差が 1.77 であった。

## 2.4 重ボーマ度、釉比重-含水率換算グラフ

本稿は釉薬の含水率を施釉現場の現状に合わせ重ボーマ度で示す。一方で、重ボーマ度になじみがない場合内容が判り難くなるのが懸念されるため、参考として釉薬原料の真密度を 2.6 と仮定して作成した重ボーマ度、釉比重-含水率の換算グラフを図3に示す。2.2 により調合した釉薬で確認したところ、重ボーマ度と含水率の関係はグラフの実線とよく一致した。

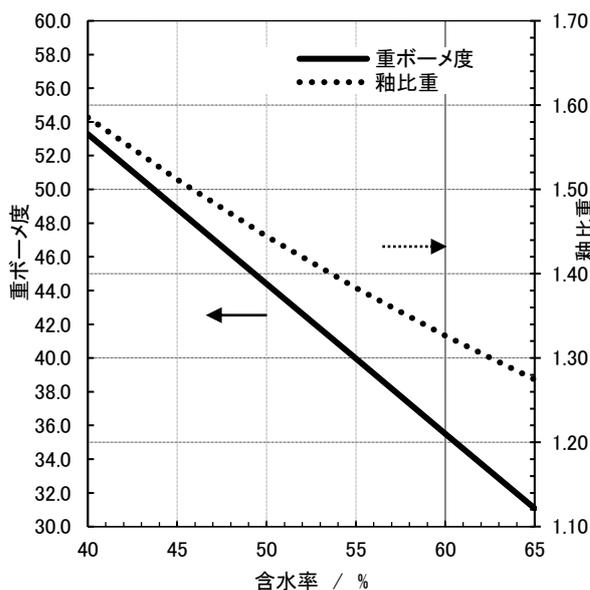


図3 重ボーマ度、釉比重-含水率換算グラフ。

## 3. 結果と考察

### 3.1 施釉時間、ボーマ度と施釉重量の関係

施釉試験に先立ち施釉装置の試験精度を確認した。釉薬の代わりに水道水を用い浸漬時間を 1, 3, 5 秒と変化させた時の素焼き素地 3 枚の平均吸水重量を図4に示す。エラーバーは各条件の最大・最小値を示す。図から明らかなように浸漬時間ごとの吸水重量の最大値と最小値の幅は、浸漬時間による変化に比べ小さく施釉装置を用いて精度よく施釉試験ができることが確認できた。なお、素焼き素地を水中に放置したのち測定した飽和吸水重量は 3 枚の平均が 20.4g であった。

釉薬の含水率を変化させ、ボーマ度を 38, 40, 42, 44 とし、4 番ローターを用いてローター回転数 1rpm と 20rpm で測定した粘度変化を図5に示す。いずれの回転数においても重ボーマ度が高くなるに従い粘度が増加する傾向

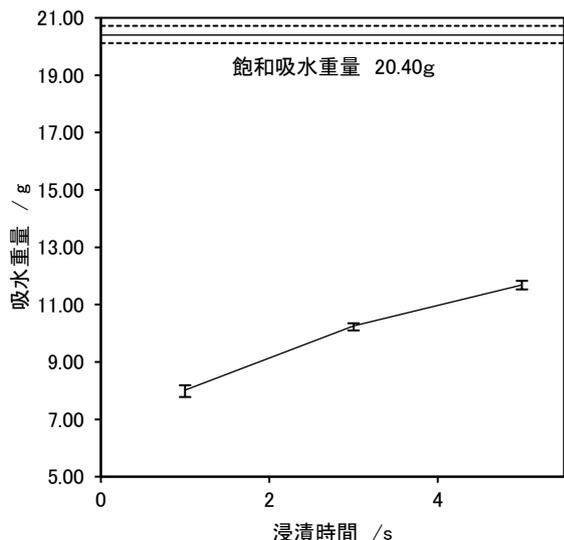


図4 浸漬時間と吸水重量の関係。(5寸皿 素焼き重量平均131g)

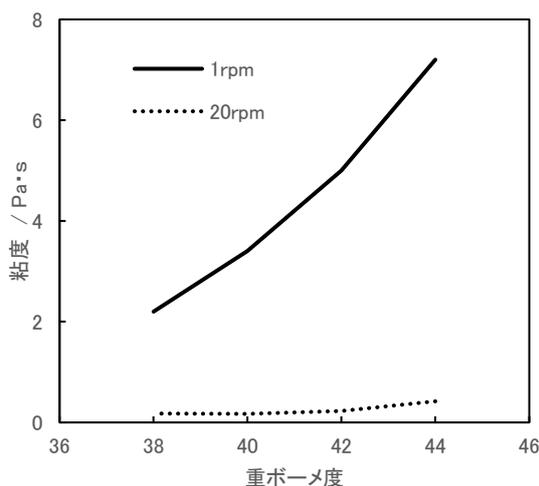


図5 重ポーメ度と粘度の関係。

が確認できたが、1rpmと比較して20rpmの測定値の変化量は非常に小さい。

施釉時に素地が釉薬中を移動している際には、素地周りの釉薬には4番ローター20rpm以上のずり速度が発生していると考えられるので、ポーメ度に関わらず施釉中の釉薬の粘度はほぼ一定と考えられる。

釉薬のポーメ度を38, 40, 42, 44とし施釉時間を1, 3, 5秒として5寸皿に施釉したときの施釉時間と釉薬の付着重量の関係を表2に示す。合わせて釉薬の付着量から次式により算出した施釉後素地の吸水が飽和したときの素地上の釉薬の含水率を示す。

$$\text{素地上釉薬含水率 (\%)} = \frac{(W_{dg}/(1 - u_g) - W_{dg}) - W}{W_{dg}/(1 - u_g)} \times 100$$

$W_{dg}$  : 釉乾燥重量

$u_g$  : 釉薬含水率

$W$  : 素地飽和水分量(20.4g)

施釉は1条件につき3枚ずつを予定していたが、乾燥が遅く作業が困難であった条件では試験数を減じた。表中の水重量の部分で背景が薄いグレーの部分には試料2個の平均、濃いグレーは試料1個のデータである。表から明らかのようにグレーで示した部分における施釉後の釉薬の含水率が20%近くになると、施釉後の釉薬面に触れることができなくなり作業性が低下することが判る。

表2において素地の水分飽和の影響を受けていないと考えられる重ポーメ度38の1秒及び3秒施釉試料とポーメ度40, 42の1秒施釉試料について、釉乾燥重量における施釉時間と重ポーメ度の関係を確認した。図4に示した浸漬時間と吸水重量の関係から逆算した施釉時間が1秒から3秒に変化したときに期待される施釉重量の増加率は1.28であるが、実際の増加率は15.3/10.5=1.46と期待値の1.14倍であった。一方、ポーメ度が38から40, 42に変化したときに期待される施釉重量の増加率はそれぞれ1.1, 1.2であるが、実際の増加率は16.5/10.5=1.42、16.5/10.5=1.57でありそれぞれ期待値の1.29倍、1.30倍となった。したがって、施釉量への影響は施釉時間よりも重ポーメ度のほうが大きいと考えられる。

表2 施釉時間と釉薬の付着重量の関係、及び施釉直後の釉薬含水率

重ポーメ度 ↓	釉乾燥重量 / g			素地上釉薬含水率 / %		
	1s	3s	5s	1s	3s	5s
44	23.4	31.0	35.6	13	26	31
42	16.5	21.7	27.5	0	15	27
40	14.9	19.8	24.9	0	16	29
38	10.5	15.3	20.5	0	1	25

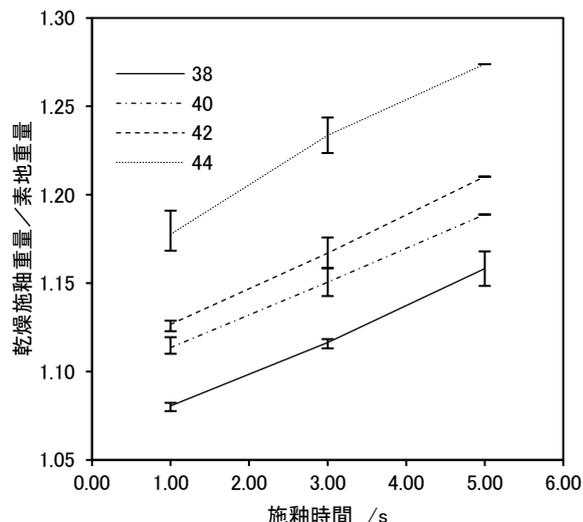


図6 施釉時間と釉薬付着割合の重ポーム度による変化

表 2 の乾燥施釉重量を素地重量に対する乾燥施釉素地の重量増加率としてグラフ化したものを図 6 に示す。エラーバーはそれぞれの条件における最大最長値を示しているが、図から明らかなように素地の飽和吸水重量を超える釉薬が付着した場合、施釉重量のばらつきが大きくなるが判る。一方で、施釉時間ごとの施釉重量の増加は直線的であり、素地飽和時素地上釉薬含水率が 30%程度までは施釉時間に比例して施釉重量が増加することが確認できる。また、グラフの傾きも重ポーム度による差はほとんどなく、施釉時間に対する施釉重量の変化率は重ポーム度の影響をほとんど受けないことが判った。

図 7 に施釉試験時に発生した釉ムラの写真を示す。左は重ポーム度 38 施釉時間 5 秒の条件のもので、施釉時間が長いために薄い縁部が水で飽和し縁部の釉が迅速



図7 釉ムラの発生状況。  
(左:重ポーム度 38—施釉時間 5 秒、右:重ポーム度 44—施釉時間 1 秒)

に固化できずに半乾きの釉面に垂れてきたものである。右の重ポーム度 44 施釉時間 1 秒の試料には縁部からの釉だれはほとんどない。一方で、高台部からの釉だれが目立つ。高台部から余剰の釉薬が垂れてきたときにすでに高台付近の釉面は半乾きの状態になっているため、垂れてきた釉薬が周りとなじむことができずに段差になったものである。施釉時間が長い右の試料では高台部からの釉だれは周りとなじみ、ほとんど目立たない。このように釉層から素地への水分移動は速すぎても遅すぎても釉ムラが発生することが改めて確認できた。

### 3.2 釉薬への消泡剤、撥水剤添加試験

釉層から素地への水分移動の速度を制御するための様々な方法が知られている<sup>4)</sup>。代表的なものとして釉薬の粒度分布を変えたり、釉層の保水力に強く影響する粘土鉱物の一部を仮焼する等がある。これらの調整は釉組成によっては難しい場合もあるので、本研究では新たな試みとして水の表面張力を変化させることを試みた。

表面張力を低下させるためにシリコーン消泡剤(KM-73:信越化学工業)を重ポーム度 42 の釉中の水分量に対して 0.05%添加し 3 秒施釉した時の釉薬面を図 8 に示す。図から判るように消泡剤を添加した釉薬を用いた施釉体表面は、独特な釉ムラが発生した。釉ムラの発生の様子を確認したところ、施釉時に素地に吸われた水に押し出された素地中の空気が釉層の固化が始まる前に勢いよく弾け釉層の薄い部分を形成していると考えられた。釉層表面の乾燥は消泡剤無添加の釉薬に比べ速く水の表面張

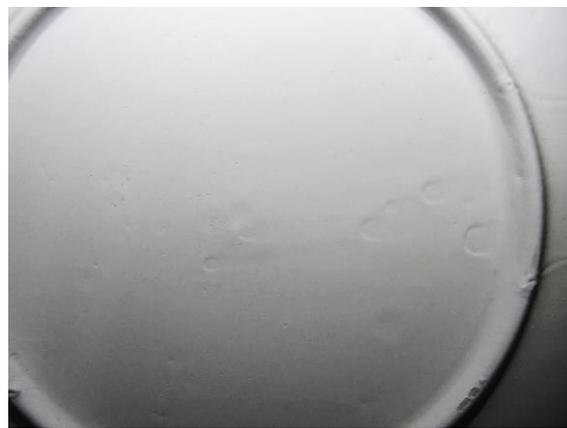


図8 消泡剤0.05%添加釉薬の施釉体表面

力が低下した結果、素地中への水分移動が速くなったことが独特な釉ムラ発生の原因と推察される。製品によっては釉ムラを意図的に出したいという場合もあり、特殊な釉組成を作ることなく釉ムラを出せるこの方法は新しい釉加飾の技法としての可能性がある。

水の表面張力を低下させる消泡剤の添加で釉ムラが発生したことから、逆に水の表面張力を高くすることで釉ムラが軽減できないか検討した。しかしながら、釉組成に影響を与えずに表面張力を高くすることは難しいため、素地の濡れ性を低下させることで同様の効果が得られると考え、釉薬中へのフッ素系撥水撥油剤(AG-E080:明成化学工業株式会社)の添加を試みた。重ポーメ度 42 の釉中の水分量に対して 0.05% 添加し 3 秒施釉した時の釉薬面を図 9 に示す。図から明らかなように多数のピンホールが釉薬面に発生した。理由は不明であるが素地中から出てくる空気が撥水剤の影響によりピンホールを形成できるほどの大きな塊となったと推察される。施釉後の釉層表面の乾きは撥水剤無添加の施釉体に比べ遅くなった。

なお、消泡剤、撥水剤ともに添加量を増やしてもあまり釉薬面の状態に変化はなかった。また、同時に添加した場合は消泡剤の影響による釉ムラが発生した。



図9 撥水剤 0.05% 添加釉薬の施釉体表面。

#### 4. まとめ

少量の釉薬で精度よく試験ができる施釉装置を製作し施釉時間、釉薬の濃度が施釉に与える影響を改めて確認した。結果、素地が飽和するまでは施釉時間と釉薬の付着量は比例すること、施釉時間に対する施釉重量の変化率は重ポーメ度の影響をほとんど受けないこと等が確認できた。

また、消泡剤や撥水剤の添加試験では、わずかな添加でも施釉体表面の状態が大きく変化することが明らかとなった。本研究では釉ムラを低減する添加剤を見出すことができなかったが、消泡剤や撥水剤の種類が変われば釉ムラやピンホールの発生状態は変化しており、今後も種類をふやして試験を続けていく予定である。また、釉ムラについては新しい加飾技法として提案するとともに、釉ムラの制御方法について検討していきたい。

#### 参考文献

- 1) 志波雄三他, 佐賀県窯業技術センター令和元年度研究報告書・支援事業報告書, 1-18 (2020).
- 2) 蒲地伸明, セラミックス, 48, No11, 879-884 (2013).
- 3) 蒲地伸明, 佐賀県窯業技術センター平成 13 年度業務報告書, 33-37 (2002).
- 4) 素木洋一, 釉とその顔料, 技報堂, 392-424 (1968).

## NC ローラーマシンによる高精度成形及び特殊形状成形に関する研究

蒲地 伸明、関戸 正信  
佐賀県窯業技術センター

NC ローラーマシンの内ゴテ成形、外ゴテ成形それぞれの成形因子が製品性状に与える影響について実験計画法を用い確認を行った。その結果、NC ローラーマシン特有の成形因子が製品性状に大きな影響を与えることがあることを確認できた。また、解析結果をもとに薄肉製品や、ヤエン付き袋物の成形試験を行い必要な成形条件を明らかにした。

### Optimization in NC roller-machine forming process to achieve the specific shape products.

KAMOCHI Nobuaki, SEKIDO Masanobu  
Saga Ceramics Research Laboratory

Numerical control (NC) roller machine forming process was studied using experimental design method. Some NC roller machine specific parameter deeply affected the properties of fired body. The very thin bowl and tea pot body with gallery could be achieve based on these results.

#### 1. はじめに

ローラーマシンは高精度の回転体を短時間で量産可能であるため、肥前地区においても多く利用されている。ローラーマシン成形は金属製の成型(ヘッド)と石膏製の成型型を用い、石膏型の上に乘せた陶土を成型型の下型と成型型との回転差により延ばし生地を作る。成形力が高いため成形直後の生地形状は一定であるが、生地中の組織は成形条件の影響を受けており、乾燥や焼成工程で形状が変化する場合がある。過去に、著者はヘッドの上下運動をカム機構で行う従来型のローラーマシン(UR-50型:高浜工業株式会社製)の成形に関し、成形条件が最終製品に与える影響について実験計画法により解析し報告した<sup>1,2)</sup>。一方で、ローラーマシンの挙動を数値制御するNCローラーマシンの導入が肥前地区でも進みつつある。NCローラーマシンはヘッド角度、位置、成形時間等が数値入力により細かく設定できるため、従来型と比べ製品の切り替えに要する時間が大幅に短縮され、セッティングの精度や再現性も飛躍的に向上した。上記の利点に加えNC制御のローラーマシンは各制御項目を独立して動作させることができることから、従来のローラーマシンでは成形が出来なかった特殊な形状も成形できるという特徴がある。しかし、カム式ローラーマシンと異なるNCローラーマシ

ンの制御因子が製品性状に与える影響については明らかにされていない。

そこで、本研究ではNCローラーマシン(URM-125型:高浜工業株式会社製:図1)を対象に、NCローラーマシンの制御因子が製品性状に与える影響について実験計画法を用いて解析するとともに、従来型のカム式ローラーマシンでは成形困難な形状について成形試験を実施した。

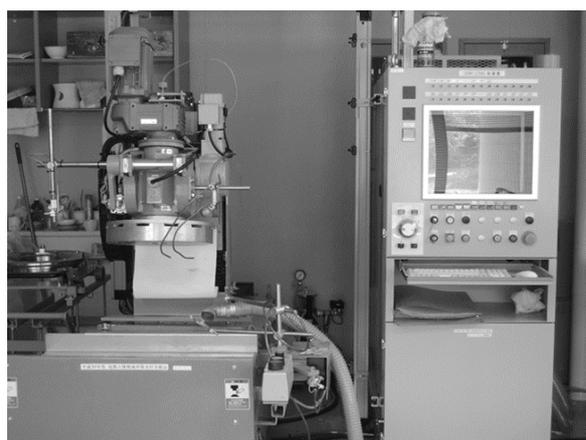


図1 NCローラーマシン(URM-125型:高浜工業株式会社製)。

#### 2. 実験方法

##### 2.1 内ゴテ成形解析

直径 8 cm、硬度 10~10.5 (NGK 硬度計) の市販天草撰

上陶土を用い、型寸法が直径 154 mm高さ 62 mmのボウルを成形した。図2 に使用したヘッド及び型の図面を示す。図3 に内ゴテ成形におけるヘッドの軌道及び制御因子を示す。成形時に NC ローラーマシンのヘッドは“X 軸セリ込み量”だけ石膏型中心から成形機正面(図2 における型中心の左側)へ移動した位置から鉛直方向へ下降を開始する。鉛直方向へ向かう直線と、最終的な生地形状を決める仕上げ位置からセリ込角で指定した角度で延ばした直線の交点にヘッド位置が到達すると“セリ込角”でヘッドは型中心に向かって斜めに下降し、“仕上げ時間”停止後、“逃げ角”に従って上昇し成形が完了する。ヘッドの下降速度は“セリ込み時間”によって、ならし時の上昇速度は“ナラシ時間”で決定される。内ゴテ成形の解析ではこれらの6 制御因子に石膏型の回転数である“ロクロ軸回

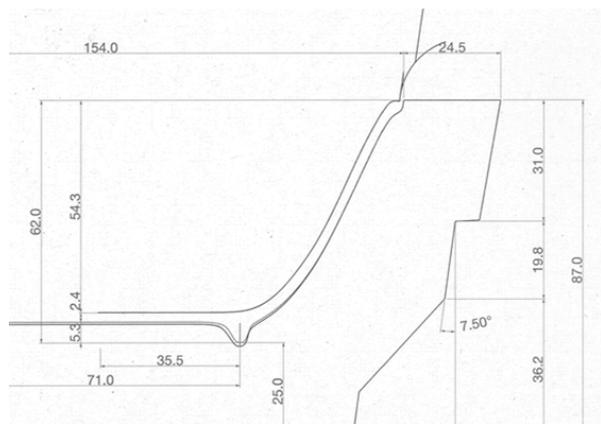


図2 内ゴテ成形に使用したヘッド及び型の図面。

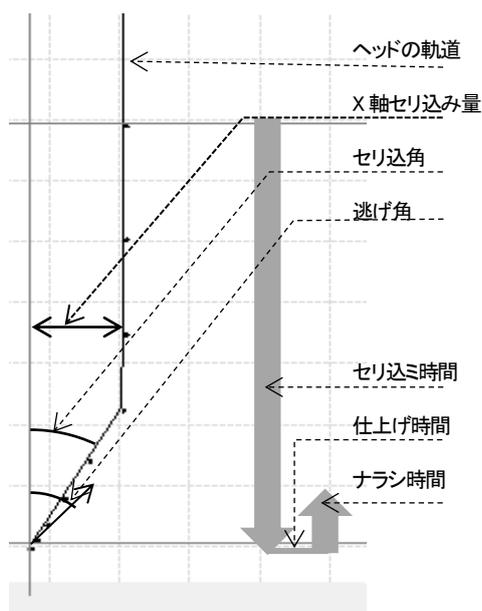


図3 内ゴテ成形におけるローラーマシンヘッドの軌道と制御因子。

転数”とロクロ軸とヘッド軸の“回転差”の2 制御因子を加えた8 制御因子について実験を行った。なお、制御因子の表記はURM-125型の制御ソフトウェアの表記方法を採用している。表1 に各制御因子と設定した3つの水準値を示す。なお、それぞれの制御因子における水準値の決定は予備試験により最も厳しい条件でも生地に割れが発生しない範囲で決定した。表1に示した制御因子をL27直交表に割り付け、27種の成形条件でそれぞれ7個ずつ成形を行った。ローラーマシン成形で安定した成形を行うためには15%程度の余剰土が必要であることから<sup>1)</sup>、1回の成形における陶土使用量は200gとした。この時の成形直後の成形体重量は約170gであった。また、ヘッド温度は105°Cに設定した。使用した石膏型は63個であり成形後28°Cに調温した室内で自然乾燥した。乾燥後脱型を行い縁部の削り仕上げを行った。得られた27(種)×7(個)=189(個)の成形体は0.3m<sup>3</sup>強制対流式ガス炉(高砂工業製)で1300°C、10時間の還元焼成を行った。焼成は3回に分けて実施したが、炉内12か所(戸前、右、左、奥×上、中、下)で測定したリファサーモ(JFCC製:type M)の指示温度は1294~1285°Cと10°C未満の範囲であった。なお、釉による重量や軟化変形への影響を避けるため、施釉は実施せず締め焼きとした。

得られた焼成体の、重量、直径((短径+長径)/2)、底落(高台最下部から裏面碗中央部までの距離をディプスゲージで計測後、焼成後の高台高さ4.0mmから除算した値)、内側(ヘッド面)の表面状態(ヘッド跡の有無、粗さ)、縁形状の6項目について分散分析を行い各制御因子の影響について確認した。

表1 内ゴテ成形における各制御因子と水準値

制御因子	水準1	水準2	水準3
X 軸セリ込み量 /mm	0.5	2.5	4.5
セリ込角 / °	30	45	60
逃げ角 / °	0.5	30	60
ロクロ軸回転数 / r.p.m.	450	550	650
回転差 / r.p.m.	50	100	150
セリ込み時間 / sec.	1.0	2.0	3.0
仕上げ時間 / sec.	0.2	0.4	0.6
ナラシ時間 / sec.	0.2	0.4	0.6

## 2.2 外ゴテ成形解析

直径 15cm、硬度 10.5～11.0 の市販天草撰上陶土を用い 9 インチ洋皿を成形した。図 4 に使用したヘッド及び型の図面を示す。表 2 に各制御因子と設定した 3 つの水準値を示す。

外ゴテ成形の場合、ヘッド面で高台部を成形するため、内ゴテ成形のような大きなセリ込角や逃げ角の設定はできない。そこで、内ゴテ成形で検証した X 軸セリ込み量や逃げ角、逃げ角に関連した設定項目であるナラシ時間を除き、代わりに成形機正面に向かってヘッドセンターを左右に移動させる“センター位置”を制御因子として追加した。表 2 に示した制御因子を L27 直交表に割り付け、27 種の成形条件でそれぞれ 8 個ずつ成形を行った。1 回の成形で陶土は 670g 使用し、成形直後の成形体重量は約 590g であった。また、ヘッド温度は 110℃に設定した。使用した石膏型は 60 個であり成形後 28℃に調温した室内で自然乾燥した。乾燥後脱型を行い縁部の削り仕上げを行った。なお、乾燥時に 2 個の試料が破損した。得られた 27(種)×8(個)-2(個)=214(個)の成形体は内ゴテ成形体と同様に締め焼きを 0.3m<sup>3</sup> 強制対流式ガス炉で 1300℃、10 時間の還元焼成で行った。焼成は 5 回に分けて実施し、炉内 12 か所で測定したリファサーモ指示温度は 1296～1289℃であった。

得られた焼成体の重量、底落(高台最下部から裏面皿中央部までの距離をディプスゲージで計測後、焼成後の高台高さ 4.5mm から除算したのち突き上げ量を足した値)、突き上げ(ディプスゲージを裏面皿中央に当てた時の値)、高台成形性(内傷、外傷)、裏面(ヘッド面)の表面状態(粗さ、ヘッド跡の有無)、縁形状の 8 項目について分散分析を行い各制御因子の影響について確認した。

## 2.3 薄肉成形試験

NC ローラーマシンは一度設定が完了、保存すれば同じ設定を精度よく再現できるため、カム式ローラーマシンでは形状交換時に設定の再現に時間を要する量産が困難な形状でも安定した製品化が可能である。そこで、図 2 に示したボウルのヘッドと型を用い、厚さ 1mm 未満の成形体の成形試験を実施し薄肉成形時に必要な成形条件の検討を行った。

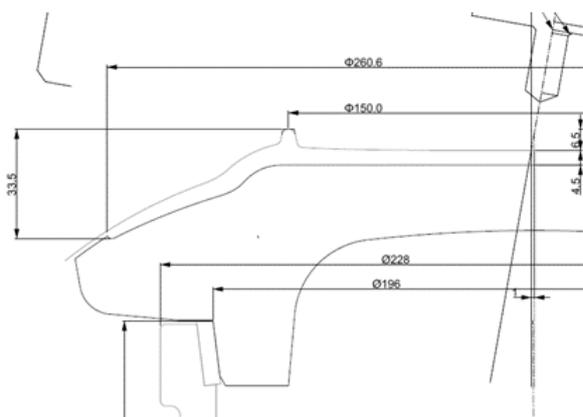


図 4 外ゴテ成形に使用した9インチ皿の型図面

表 2 外ゴテ成形における各制御因子と水準値

制御因子	水準1	水準2	水準3
セリ込角 / °	2.5	6.5	10.5
ヘッド軸回転数 / r.p.m.	200	240	280
回転差 / r.p.m.	40	80	120
セリ込み時間 / sec.	5.0	6.0	7.0
仕上げ時間 / sec.	0.3	0.6	0.9
センター位置 / mm	-0.5	0.0	0.5

## 2.4 袋物成形試験

図 5 にヤエン付ポット胴体部分とヘッドの図面を示す。

カム式ローラーマシンではスライドカムによってヘッドの前後位置を成形途中に移動させることが可能であるが、動作範囲はスライドカムにより決定され細かなスライド量の制御は困難であり動作範囲も限られる。一方、NC ロー

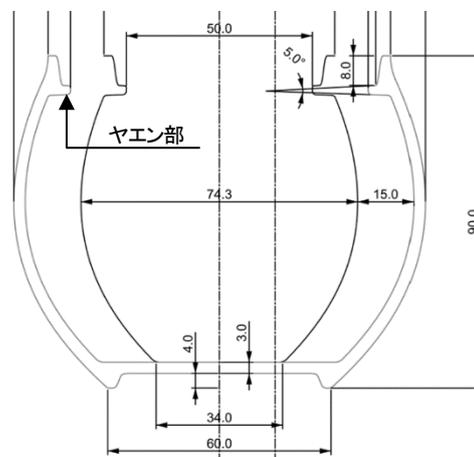


図 5 ヤエン付ポット胴体とヘッド図面

ラーマシンではヘッドの前後位置を大きく動かせる上に、セリ込角、逃げ角も自在に設定できるために従来成形困難な形状であっても成形が可能となる。ヤエン付袋物としてポットの胴体部分の成形の検討を行った。

図 6-1,2 に重量、直径、底落、ヘッド跡、表面状態、縁切状態について分散分析を行った結果を示す。図中の“○”マーカー及び実線で示した因子は有意水準0.01(危険率1%)で有意であったことを示し、“×”マーカー及び破線で示した因子は有意水準0.05(危険率5%)で有意であったことを示している。なお、マーカーのない制御因子は有意水準0.05で有意でなかったことを示している。

3. 結果と考察

3.1 内ゴテ成形試験結果

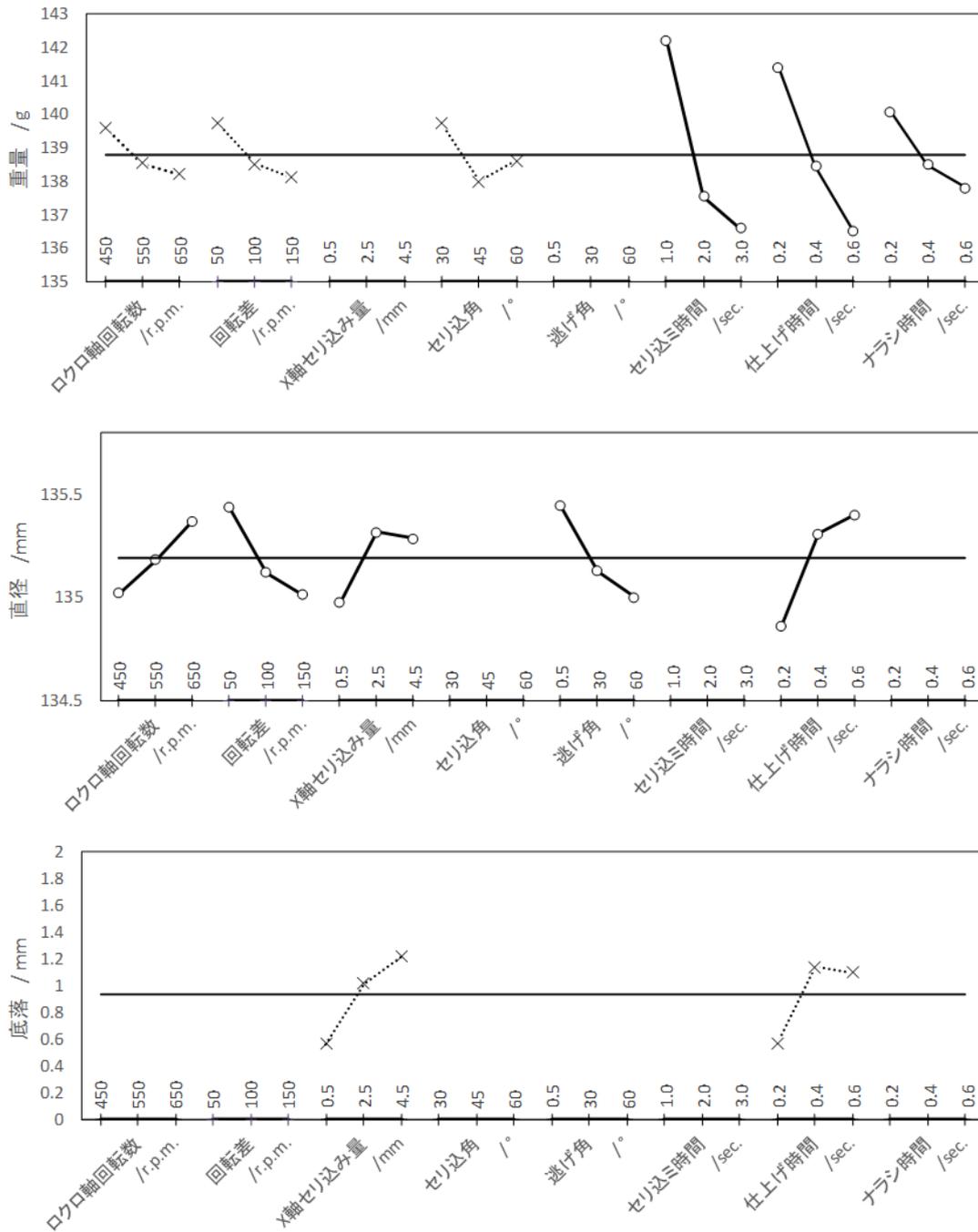


図 6-1 内ゴテ成形分散分析解析結果。(上から順に、重量:直径:底落)

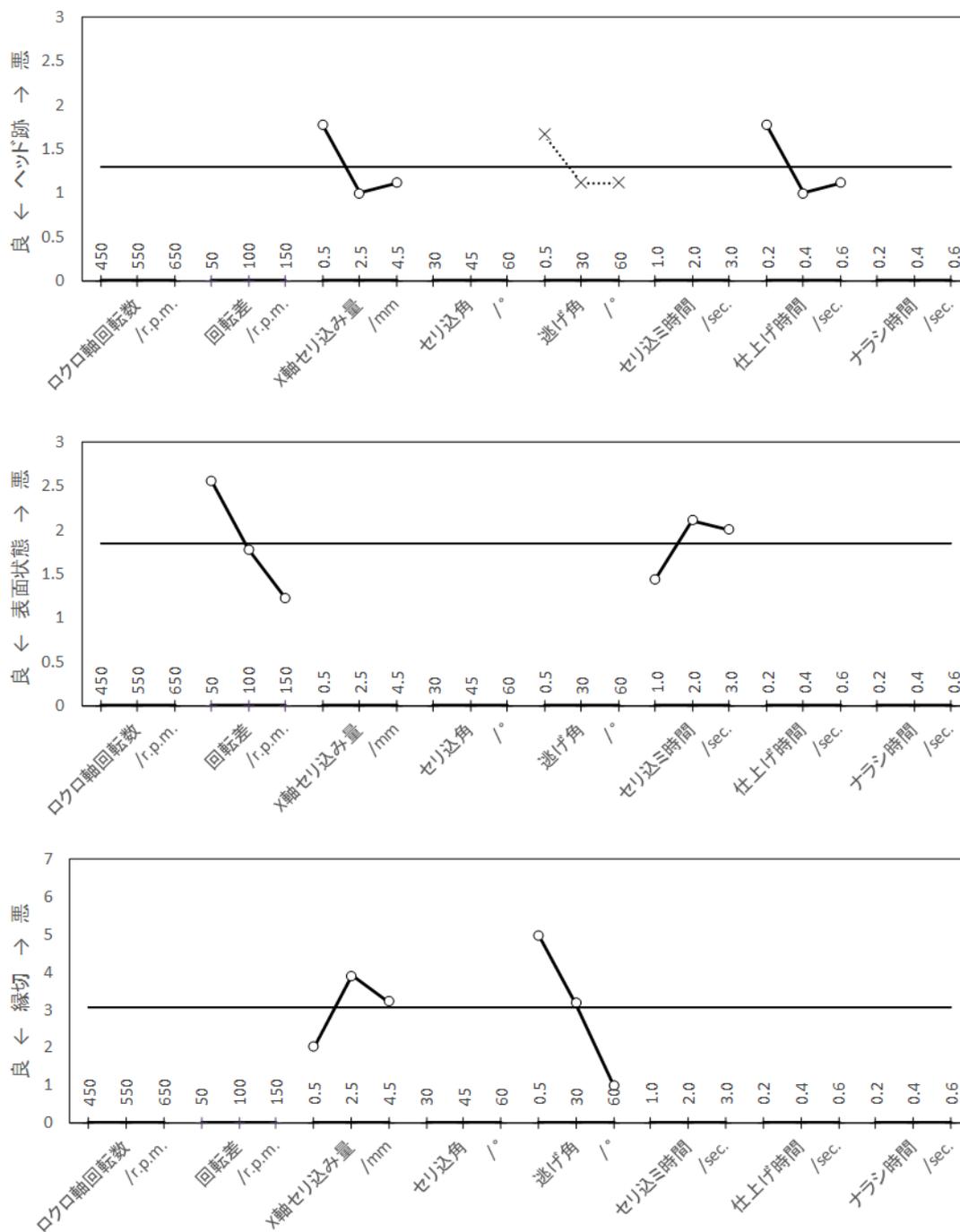


図6-2 内ゴテ成形分散分析解析結果。(上から順に、ヘッド跡:表面状態:縁切)

### 3.1.1 製品重量

製品重量に最も影響を与えたのは、セリ込ミ時間で寄与率は45%であった。続いて仕上げ時間30%、ナラシ時間6%の寄与率で、これらの因子が有意水準0.01で有意となった。3因子は成形時間であり成形時間が長くなるほど重量が軽くなる結果となった。今回の成形条件では成形終了まで余剰陶土が排出されている状態であったので、

成形時間が長くなるにつれて切り捨てられる陶土量が増え製品重量が軽くなっている。また、成形に寄与する時間の順に寄与率も高くなっている。他に、回転差、ロクロ軸回転数、セリ込角が有意水準0.05で有意であったが寄与率は5%未満であった。回転差は大きくなると陶土を延ばす力が大きくなり、ロクロ軸回転数は速くなることで生地にかかる遠心力が大きくなる。これらにより陶土の移動速度

が速くなり、結果製品重量が軽くなったと考えられる。セリ込角は NC ローラーマシン独特の制御因子である。今回の成形体の胴部の開き角は約 116° であるが、開き角にヘッドを寄せていく角度で製品重量が変化することが明らかとなった。

### 3.1.2 製品直径

製品直径に最も影響を与えたのは、仕上げ時間で寄与率は 28% であった。続いて逃げ角 17%、回転差 16%、X 軸セリ込み量 14%、ロクロ軸回転数 9% の寄与率であり、これらの因子が有意水準 0.01 で有意となった。焼成温度はほぼ一定であることから、製品直径の違いは成形条件による生地密度の違いを示している。つまり、直径が大きいものは生地密度が高く、小さいものは生地密度が低いと考えられる。セリ込み終了、すなわち生地形状が完成してから押さえ時間である仕上げ時間は今回の水準値の範囲では長いほど直径が大きくなっており、仕上げ時間が長いほど生地密度が高くなることを示している。成形終了後のヘッド退避方向である逃げ角に関しては胴部の傾きに対して垂直方向に移動したほうの直径が大きく、胴部に対して垂直に近い角度で退避させると小さくなった。これは後述する縁形状の解析とも関係するが、ヘッドがほぼ垂直に上昇する水準値 0.5° が胴部の開き角度に対して約 26° で退避するのに対して水準値“60°”は胴部の開き角度に対してほぼ垂直方向への退避となり、ヘッドが生地に接触している時間が短くなった影響と考えられる。なお、ヘッドの退避時間であるナラシ時間は今回の検定では有意とならなかったが、ナラシ時間が長くなるほど直径が大きくなる傾向は認められた。回転差については小さいほうの直径が大きく、回転差を小さくしゆっくりと成形したほうが生地密度を高くすることができることが示唆された。ロクロ軸回転数については速いほうの直径が大きく、生地の外側に石膏型がある内ゴテ成形では生地密度が遠心力の影響を受けていることが明らかとなった。また、X 軸セリ込み量に関してはヘッドをほぼ垂直に落とす水準値“0.5mm”が小さくなったので、側面に向けて対してヘッドをスライドさせたほうが生地の締まりが良くなることが示唆された。以上の結果から、仕上げ時間とロクロ軸回転数に関しては製品重量を軽減しながら生地密度を高くす

ることができることが明らかになった。

### 3.1.3 底落

底落に最も影響を与えたのは X 軸セリ込み量であり、寄与率は 17% であった。仕上げ時間が寄与率 16% であり、有意水準 0.05 で有意であった。底落についても製品直径と同様に製品底部の生地の締りが大きく影響し生地の締りが良いほうが小さいと考えられる。しかし、今回有意となった 2 つの制御因子の底落に与える影響は製品直径とは逆のものとなった。X 軸セリ込み量については小さいほうの底落が少ないが、製品直径は小さい。仕上げ時間についても短いほうの底落が小さく、製品直径から推察される生地密度とは逆の結果となっている。ローラーマシンの内ゴテ成形において、陶土直径は高台直径と合わせることが多い。したがって、陶土の移動によってのみ成形される側面と、あらかじめ置かれた陶土が延びていく高台内側では生地の締りが異なると考えられる。今回の結果からは、X 軸セリ込み量が大きくなると側面の生地密度は高くなるが逆に底面の生地密度は低下し、仕上げ時間に関しても長くなると側面の生地密度は高くなるが、新たな陶土が供給されず延びていくだけで底面の生地密度が低くなると推察された。筆者は以前に強化磁器のカム式ローラーマシン成形の解析において底落に影響を最も与える因子は回転差であることを報告した<sup>2)</sup>。この時に、生地の気孔率の違いから回転差が大きいと生地全体の密度が低下し、特にヘッド側の生地密度が低下するために上面下面の焼成収縮の違いにより底落が大きくなることを明らかにしている。一方で、今回の試験では回転差は有意とならなかった。今回、最も影響の大きかった、X 軸セリ込み量に相当するものをカム式ローラーマシンによって実現するためにはスライドカムを利用する必要があるが、前回の解析では因子として取り上げておらず、スライドカムを利用していなかったために、任意の X 軸セリ込み量は 0 mm であり、今回の底落の小さかった 0.5 mm に近い。従って、ロクロとヘッドの回転軸がほぼ同じ場合は回転差の影響が強く表れるが、セリ込みによりロクロとヘッドの回転軸がずれていくことで、底部においては回転差の影響が小さくなることが推察された。

### 3.1.4 ヘッド跡

成形終了時にヘッドが生地から離れた時の痕跡をヘッド跡として評価した。成形が十分に進まない状態でヘッドが生地から離れると、離れる瞬間にヘッドが触れていた部分と触れる直前だった部分に成形体の厚みの差が生じ段差となって成形体に現れる。ヘッド跡は製品の見た目を損なうだけでなく、ヘッド跡の部分で厚さが変わることから製品歪の原因となる。ヘッド跡がはっきりを現れた例を成形条件とともに図7に示す。写真では中央から縁部まではっきりとした段差が生じているが、軽微な場合は底中央付近にのみ現れる。今回ははっきりとわかるものを“3”、わずかに認められるものを“2”、認められないものを“1”として目視により評価し、分析をおこなった。ヘッド跡に強く影響を与えたのは仕上げ時間とセリ込み時間が有意水準0.01で有意、寄与率は共に24%であった。逃げ角は寄与率13%であり有意水準0.05で有意であった。仕上げ時間が短い場合、X軸セリ込み量は小さい場合にヘッド跡が残りやすいという結果になった。製品直径から推察された生地の締りにおいて、この条件は生地が十分に締まっていないことを示唆しており、十分に成形が進まないままヘッドが離れているためヘッドの接触の前後で生地の厚みの差が大きくなりヘッド跡が残りやすくなっていることが明らかとなった。一方、逃げ角については生地の締りの良いはずである0.5°が、ヘッド跡がつきやすいという結果になっている。ヘッド跡のつきやすい底面においては直径に大きな影響を与える胴部ではヘッドがほぼ垂直に上



図7 ヘッド跡発生例。(ロクロ軸回転数 450r.p.m.; 回転差 50r.p.m.; X軸セリ込み量 0.5mm; セリ込角 30°; 逃げ角 0.5°; セリ込み時間 1s; 仕上げ時間 0.2s; ナラシ時間 0.2s)

昇する水準値0.5°は胴部の角度に対して約26°で退避するのに対して、水平な底面では垂直方向のヘッド退避となることから、底面にヘッドが接触している時間が短くなりヘッド跡が残りやすくなったと考えられる。

### 3.1.5 表面状態

ヘッド面に現れる皺を表面状態として評価した。皺はヘッドと接触している時間が長いうえに陶土の動きが少ない中心部付近に発生しやすい。皺の例を図8に示す。皺が明らかに認められるものを“3”、わずかに認められるものを“2”、皺がなく滑らかな表面となっているものを“1”として目視により評価し、分析を行った。表面状態に最も影響を与えたのは回転差で寄与率は59%であった。回転差が小さくなると皺が発生しやすくなる傾向が認められた。次いでセリ込み時間が寄与率16%であり、セリ込み時間が1秒のとき表面状態が滑らかとなった。これら2因子は有意水準0.01で有意であった。これらの結果から、できるだけ陶土を速く動かす条件で表面が滑らかに仕上がるのが明らかとなった。

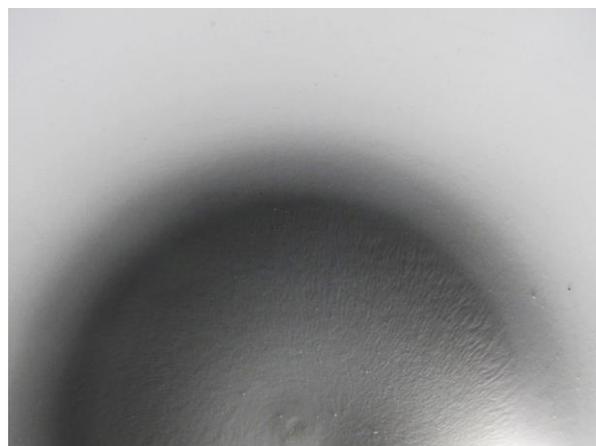


図8 ヘッド成形面皺発生例。(ロクロ軸回転数 650r.p.m.; 回転差 50r.p.m.; X軸セリ込み量 0.5mm; セリ込角 30°; 逃げ角 30°; セリ込み時間 2s; 仕上げ時間 0.6s; ナラシ時間 0.4s)

### 3.1.6 縁形状

今回の27種の成形条件においてヘッド位置、土切の入切のタイミングはすべて同じ条件で成形を実施しているが、縁形状に明らかな違いが現れたので分散分析を行った。図9に縁状態の違いを示す。図9上の写真は正常に成形が終了したもので、図2に示した図面の通り陶土が

排出されるヘッドと石膏型の隙間の部分で成形体の縁切が行われている。一方、図9下の写真は本来ヘッドの曲面に沿って成形されるべき部分まで縁切が行われている。そこで、全周にわたり正常な成形ができた状態を“1”、わずかに本来の曲面に縁切が触れている状態を“2”、明らかに曲面に縁切が認められる状態を“3”、90°にわたり曲面に縁切が認められる状態を“4”、180°を“5”、270°を“6”、全周にわたり曲面に縁切が認められる状態を“7”として目視により縁形状を評価し、分散分析を行った。

縁切に最も影響を与えたのは逃げ角であり寄与率は52%であった。次いでX軸セリ込み量が11%であり有意水準0.01で有意であった。逃げ角60°の9成形条件では全く縁形状の異常は見られなかった。一方で、逃げ角0.5°では1成形条件の成形個数である7個すべてが正常となった成形条件は無く、ヘッドの逃げ角によって縁形



図9 縁形状の違いの様子。  
(上:正常、下:異常(土切が内側Rをつぶしている))

状が影響を受けることが明らかとなった。製品直径のところでも記述した通り逃げ角0.5°の場合、胴部の開き角に対してヘッドが約26°で退避するが、退避の際にも縁の成形が継続し本来の仕上げ位置から縁部曲面形状が上部に移動したと推察された。そこで、正常な状態である評価“1”の試料と全周にわたって曲面に縁切が確認された評価“7”の試料の縁部の厚さを計測したところ、評価1の試料で2.5~2.6mm、評価7の試料で2.7~2.8mmと若干の厚さの増加が認められ、成形体内側のラインが変化していることが確認できた。X軸セリ込み量に関しては0.5mmのときに縁形状が良好になることが判った。

### 3.1.7 内ゴテ成形まとめ

内ゴテ成形における各制御因子が成形体に与える傾向を表3にまとめた。仕上げ時間が最も多くの項目に影響を与えることが判る。また、NCローラーマシン固有の成形条件である逃げ角も様々な項目で影響を与えることが明らかとなった。

## 3.2 外ゴテ成形試験結果

図10に乾燥重量、底落、突き上げ、高台えぐれ、高台傷、縁折れ、表面状態、ヘッド跡について分散分析を行った結果を示す。図中の“○”マーカー及び実線で示した因子は有意水準0.01(危険率1%)で有意であったことを示し、“×”マーカー及び破線で示した因子は有意水準0.05(危険率5%)で有意であったことを示している。また、マーカーのない制御因子は有意水準0.05で有意でなかったことを示している。

表3 内ゴテ成形における各制御因子が成形体に与える傾向

因子	ロクロ軸回転数		回転差		X軸セリ込み量		セリ込角		逃げ角		セリ込み時間		仕上げ時間		ナラン時間	
	遅	速	小	大	小	大	小	大	小	大	短	長	短	長	短	長
重量	大	小	大	小	-	-	大	小	-	-	大	小	大	小	大	小
直径	小	大	大	小	-	-	-	-	大	小	-	-	小	大	-	-
底落	-	-	-	-	小	大	-	-	-	-	-	-	小	大	-	-
ヘッド跡	-	-	悪	良	-	-	-	-	悪	良	悪	良	悪	良	-	-
表面状態	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	良	悪	良	悪	-	-
縁切	-	-	-	-	良	悪	-	-	悪	良	-	-	-	-	-	-

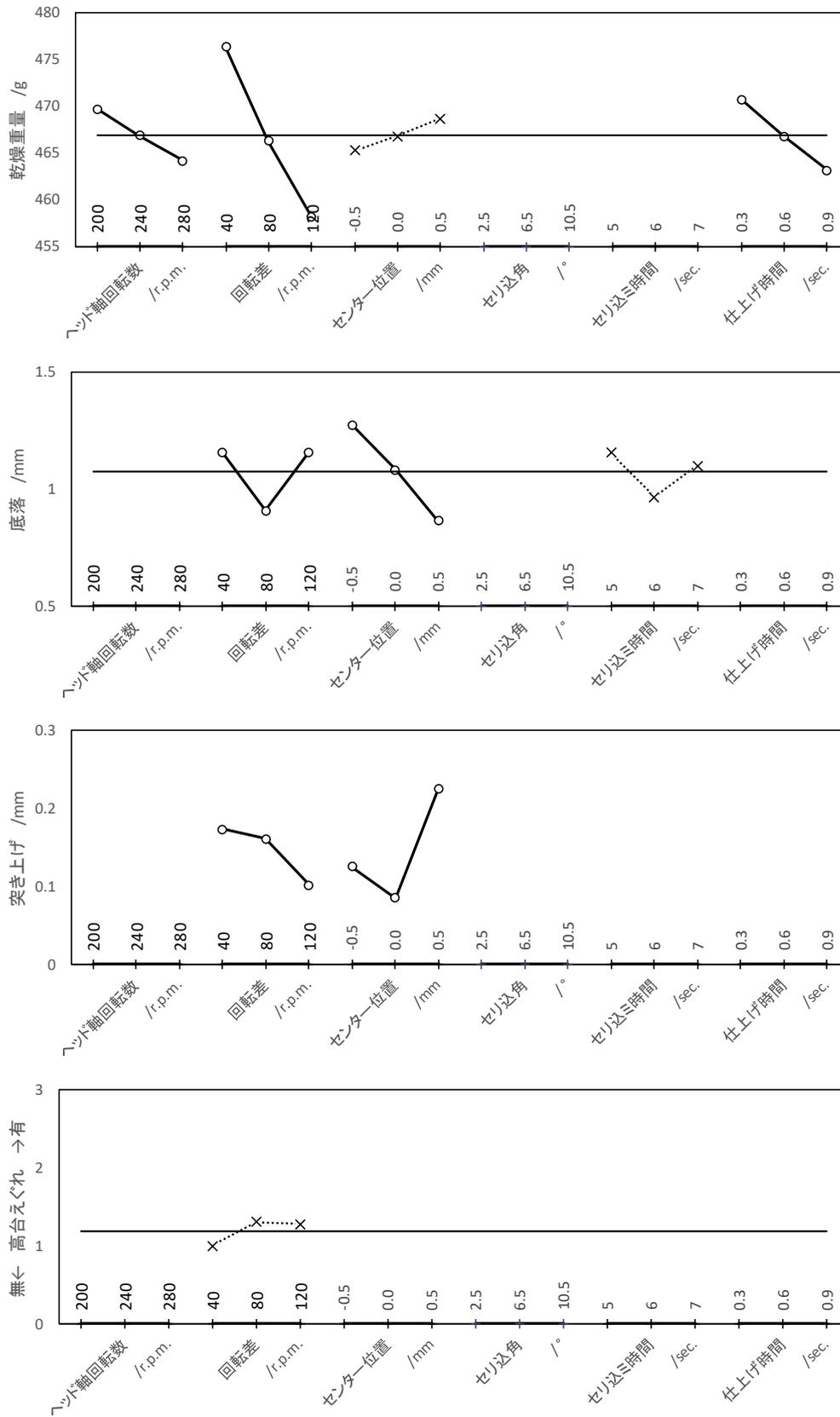


図10-1 外ゴテ成形分散分析解析結果。(上から順に、乾燥重量:底落:突き上げ:高台えぐれ)

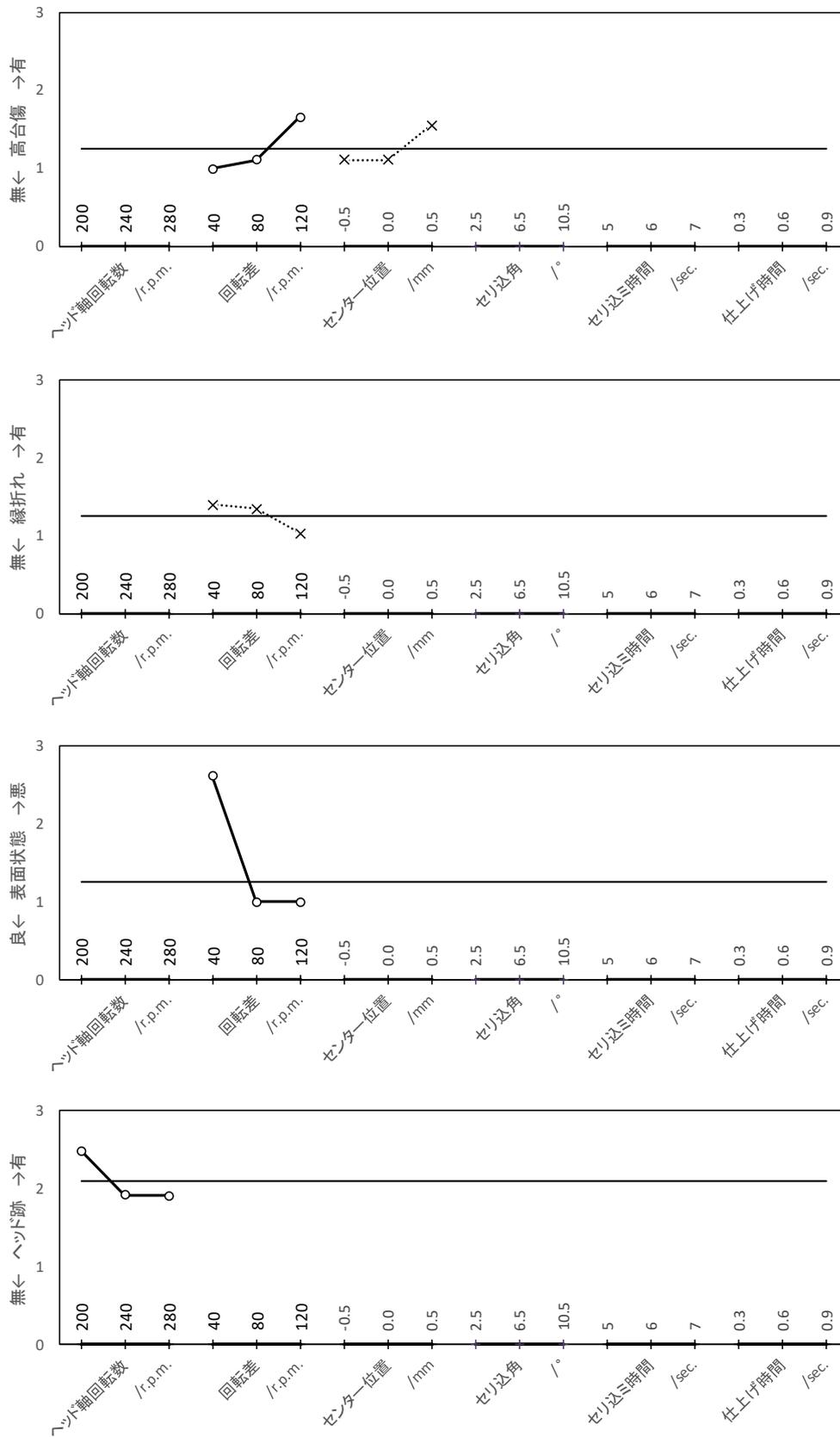


図 10-2 外ゴテ成形分散分析解析結果。(上から順に、高台傷:縁折れ:表面状態:ヘッド跡)

### 3.2.1 乾燥重量

外ゴテ成形試験では重量を製品重量ではなく、乾燥重量で評価した。乾燥重量に最も影響を与えたのは回転差であり寄与率は71%であった。続いて仕上げ時間が12%、ヘッド回転数は6%の寄与率で、これらの因子が有意水準0.01で有意であった。センター位置は寄与率2%で、有意水準0.05で有意であった。回転差、仕上げ時間、ヘッド回転数(内ゴテ試験ではロクロ軸回転数)の水準値と重量の関係は内ゴテ成形と同様の傾向であった。一方、内ゴテ成形試験で寄与率の最も高かったセリ込み時間は外ゴテ成形の試験では有意となっていないが、内ゴテ成形のセリ込み時間の水準値が1, 2, 3秒と水準間の変化率が高かったのに対し、外ゴテ成形は5, 6, 7秒と変化率が小さいために水準間での違いが表れにくくなったためと考えられる。内ゴテ成形では因子として取り上げていなかったセンター位置に関しては、左にずらしたときに軽くなり右にずらしたときに重くなる傾向が現れた。これは以前に示した左のときに重くなるという報告と逆の結果になっているが、前回の報告書では水準値のプラスマイナスと左右の関係を取り違えているものでありここで修正する<sup>1)</sup>。なお、水準値と結果の関係は合致している。

### 3.2.2 底落

底落到最も影響を与えたのはセンター位置であり、寄与率38%であった。続いて回転差が寄与率18%でここまですが有意水準0.01で有意であった。セリ込み時間は寄与率7%、有意水準0.05で有意であった。センター位置は右にずらしたときに底落が小さくなり、左で大きくなった。回転差は水準値の中央である80r.p.m.のときに底落が最も小さくなり、回転差が小さいときと大きいときでは底落が大きくなった。以前の報告では回転差の水準値30, 60, 90r.p.m.で試験を行い90r.p.m.が最も底落が小さくなったが、回転差が大きすぎても底落が大きくなることが示唆された。セリ込み時間に関しては中央値の6秒のときに最も底落が小さい結果となった。

### 3.2.3 突き上げ

プレートにおいて中央部の突き上げが目立つと見込み部分が波打ち平滑さを失うために小さいほうが良い。突き

上げに最も影響を与えたのはセンター位置であり、寄与率は49%であった。次いで回転差が寄与率13%で、いずれも有意水準0.01で有意であった。突き上げの傾向は底落と相反する関係になっており底落の小さい条件が、突き上げが大きくなる傾向があった。

### 3.2.4 高台えぐれ

成形条件によって図11の写真に示すような溝が高台内側に発生したため、これを高台えぐれとして評価した。高台えぐれは22個の試料で発生し発生率は10%であった。はっきりと溝が認められるものを“3”、わずかに認められるものを“2”、認められないものを“1”として目視により評価し、分析を行った。高台えぐれで有意(有意水準0.05)となったのは回転差で寄与率は16%であり、回転差40r.p.m.の条件では全く発生しなかった。有意な因子が1つであり寄与率も低かったため分散分析によって原因を明らかにすることは難しいと考え、高台えぐれの発生した成形の様子を観察した。高台はヘッドにある溝部で成形されるが、高台えぐれが発生したときはヘッド溝の外側から高台の成形が始まり高台内側へ巻き込むように陶土が移動していることが判った。この時、陶土が一瞬石膏型から浮き上がり不安定な状態になっており、石膏型で形作られる製品上面に図12で示すような傷が発生していた。また、成形重量も正常なもの比べて3~4%程度軽くなっていることが確認できた。高台えぐれに関しては過去の成形で

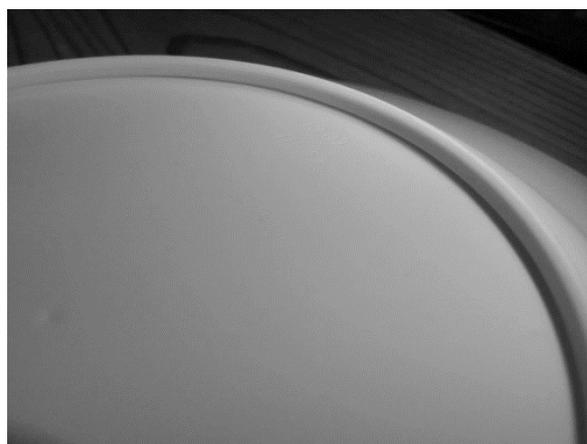


図11 高台えぐれ発生例(高台内側根本に溝が確認できる)  
 (ヘッド軸回転数200r.p.m.;回転差80r.p.m.;  
 センター位置0.5mm;セリ込角2.5°;  
 セリ込み時間5s;仕上げ時間0.9s)

は発生したことがなく原因解明のため分散分析を行って見たが、今回の実験条件では高台えぐれの発生しやすい成形条件を明確にすることはできなかった。上記観察結果を踏まえ、水準値を見直して再試験を行う必要がある。



図12 高台えぐれのある試料で確認される型面側の成形傷。

### 3.2.5 高台傷

高台に発生する細かいひび割れを高台傷として評価した。高台傷の様子を図13に示す。高台傷は深くなると乾燥時に生地割れの原因となり、今回の試験でも高台傷が原因で2個の成形体で乾燥割れが生じた。高台傷に最も影響を与えたのは回転差で、有意水準0.01で有意、寄与率は28%であった。次いでセンター位置で、有意水準0.05で有意、寄与率13%となった。回転差は大きいと高台傷は発生しやすい。高台部分はとがった形状から成形時に乾燥が進みやすく、陶土水分率の低下により可塑性が低下したところで無理に陶土を延ばそうとすることでひび割れ

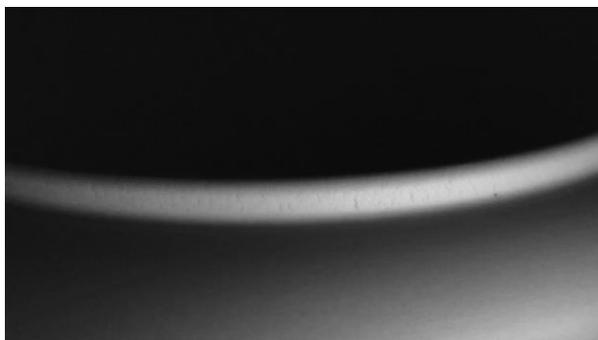


図13 高台傷発生例。(下記の条件で8個中2個乾燥割れ)  
(ヘッド軸回転数 200r.p.m.; 回転差 120r.p.m.;  
センター位置 0.5mm; セリ込角 6.5° ;  
セリ込時間 7s; 仕上げ時間 0.9s)

が発生し高台傷となることが明らかとなった。センター位置に関しては右にシフトしたときに傷が発生しやすくなった。この条件では乾燥重量が高くなることから判るように陶土の移動が遅くなるので、高台部分の陶土も動きにくく高台部の乾燥が進みやすくなった影響と考えられる。なお、今回は制御因子として取り上げなかったが生地表面の乾燥に関してはヘッド温度の影響が大きいため、高台傷が発生した場合は最初にヘッド温度に注意する必要がある。

### 3.2.6 縁折れ

リム部に現れた段差を図14に示す。このような段差はリム部の変形原因となる。段差の発生原因は成形時の陶土の伸びむらであり、皿の縁先端を形成する型の段差に陶土の到達するタイミングが大きすぎた時に発生する<sup>1)</sup>。縁折れについても、はっきりと認められるものを“3”、わずかに認められるものを“2”、認められないものを“1”として目視により評価し、分析を行った。分散分析の結果、縁折れで有意(有意水準 0.05)となったのは回転差のみであり、寄与率は 23%であった。回転差が 120r.p.m.の場合は縁折れの発生は 68 個中 1 個であり、少なくとも回転差が大きいときには縁折れが発生しにくいことが判った。

### 3.2.7 表面状態

図14に示した縁折れの写真にはヘッド側で成形した表

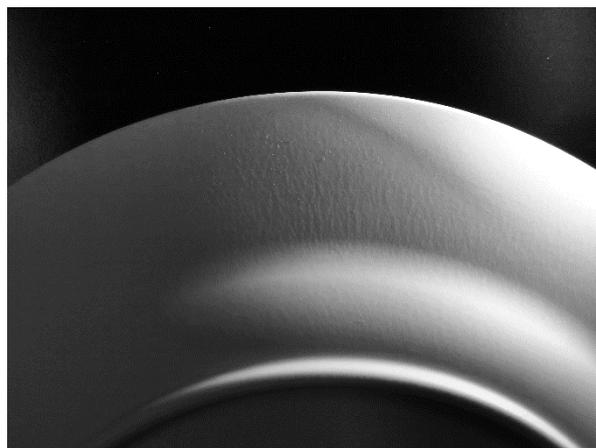


図14 縁折れとヘッド成形面の荒れ発生例。  
(ヘッド軸回転数 280r.p.m.; 回転差 40r.p.m.;  
センター位置 0.0mm; セリ込角 10.5° ;  
セリ込時間 7s; 仕上げ時間 0.9s)

面に皺が確認できる。皺が明らかに認められるものを“3”、わずかに認められるものを“2”、皺がなく滑らかな表面となっているものを“1”として目視により評価し、分析を行った。表面状態に有意(有意水準0.01)な影響を与えたのは回転差のみで寄与率は95%であった。回転差が最も小さい水準値で皺が発生することが認められ、内ゴテ成形と同様の結果となった。一方で、内ゴテ成形では回転差が大きくなるに従い皺が徐々に減少したが、外ゴテ成形においては80r.p.m.、120r.p.m.では滑らかな表面となっており、直径の大きい外ゴテ成形では角速度が大きくなるために極端に回転差が小さい場合以外では皺が発生しにくいことが明らかとなった。

### 3.2.8 ヘッド跡

内ゴテ成形と同様に成形終了時にヘッドが生地から離れた時の痕跡をヘッド跡として評価した。外ゴテ成形におけるヘッド跡の例を成形条件とともに図15に示す。外ゴテ成形におけるヘッド跡もはっきりとわかるものを“3”、わずかに認められるものを“2”、認められないものを“1”として目視により評価し、分析をおこなった。外ゴテ成形におけるヘッド跡に有意な影響を与えたのは、ヘッド回転数のみで寄与率は28%であった。内ゴテ成形で有意な制御因子であったセリ込み時間や仕上げ時間は有意となっていないが、外ゴテ成形試験における成形時間に関する因子の水準値が内ゴテ成形に比べ長くなっていることで、成形が不十分なままヘッドが生地から離れることがほとんどなかったことが原因と考えられる。段差も内ゴテ成形で

見られたような極端なものが発生することはなかった。ヘッド回転数が低い場合にヘッド跡が発生しやすいという結果になっているが、ヘッド回転数が低い場合は生地の乾燥重量も重くなっていることから、成形完了までに時間を要することが原因と考えられる。しかしながら、乾燥重量により大きな影響を与えた回転差や仕上げ時間はヘッド跡に関しては有意となっておらず条件を変えて追試を行う必要がある。

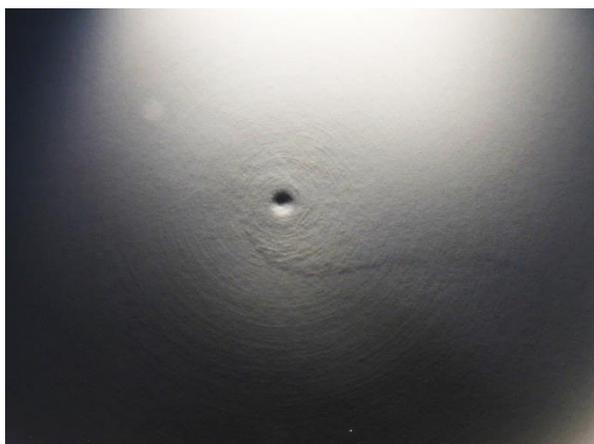


図15 外ゴテ成形におけるヘッド跡の発生例  
(ヘッド軸回転数280r.p.m.;回転差40r.p.m.;  
センター位置0.0mm;セリ込角10.5°;  
セリ込み時間7s;仕上げ時間0.9s).

### 3.2.9 外ゴテ成形まとめ

外ゴテ成形における各制御因子が成形体に与える傾向を表4にまとめた。回転差やセンター位置が評価を行った多くの項目に影響を与えることが明らかとなった。

表4 外ゴテ成形における各制御因子が成形体に与える傾向

因子	ヘッド軸回転数		回転差		センター位置		セリ込角		セリ込み時間		仕上げ時間	
	遅	速	小	大	左	右	小	大	短	長	短	長
乾燥重量	大	小	大	小	小	大	-	-	-	-	大	小
底落	-	-	中間で少		大	少	-	-	少	大	-	-
突き上げ	-	-	大	少	少	大	-	-	-	-	-	-
高台ぐれ	-	-	少	多	-	-	-	-	-	-	-	-
高台傷	-	-	少	多	少	多	-	-	-	-	-	-
縁折	-	-	多	少	-	-	-	-	-	-	-	-
ヘッド跡	有	無	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
表面状態	-	-	悪	良	-	-	-	-	-	-	-	-

### 3.3 薄肉成形試験の結果

図2に示した碗の型及びヘッドを用いて厚さ1mm未満の試作を実施した。設計時の位置合わせである内ゴテ成形試験時に比較して、ヘッド位置の調整はセンターダブリを0.5mmから-2.37mmに変更しヘッドを型に近づけるとともに、陶土の逃げを確保するために底厚を1.88mmから2.33mmへ変更した。薄い生地となるために、生地の締まりを優先し成形条件を設定した。内ゴテ成形の分析の結果から回転差は50r.p.m.とし、ロクロ軸回転数は600r.p.m.、ヘッド軸回転数550r.p.m.とした。また、生地厚さが薄いことでヘッド跡の影響を強く受けることが予想されたため、ヘッド跡が発生しにくい成形条件も優先順位が高いと考え、セリ込み時間は2s、仕上げ時間は0.4s、逃げ角は30°とした。薄く成形時の脱水が速いことが予想されたためヘッド温度は低めの100°Cで試作を開始したが、縁部に皺が生じた。本製品は玉縁であるために1mm未満の胴部が成形されたのちに玉縁が成形されるが、ヘッドと生地の滑りが悪いとヘッド側から石膏型側に陶土が回り込みながら縁が成形されるようになり回り込みの跡が皺となっていた。そこで、ヘッド温度を105°Cまで上げたところ皺



図16 薄造り試験結果(上:施釉体厚さ,下:透けの様子)

が解消し良好な成形体を得ることができ、乾燥割れ等も発生しなかった。焼成後の試作品を図16に示す。焼成後の施釉体で玉縁下の厚みが0.99mm、無釉では0.80mmの製品を破損なく得ることができた。

### 3.4 袋物の成形試験

図5に示したポット胴体の型ヘッドを用いてヤエン付き袋物の成形試験を行った。ヘッドのX軸セリ込み量は17.5mmでセリ込角は30°とした。ヘッドの逃げ角はヘッドの退避時にヤエン部に触れることのないように88°とした。一般的な形状のローラーマシン成形ではヘッド軸の回転数はロクロ軸よりも遅くし石膏形状の陶土をヘッドで引き延ばしていくが、ヤエン付きの形状を成形した場合ヤエン部の充填不足や切れ等の成形不良が発生した。ヤエン部は遠心力に逆らった方向への成形であり、陶土を引き延ばす成形条件では陶土を、ヤエン部を形成するヘッドの溝に十分に押し込むことができないことが明らかとなった。そこで、ヘッド軸の回転数をロクロ軸よりも速くし、陶土を押し延ばす条件で成形を行った。その結果、ヘッド軸回転数360r.p.m.、ロクロ軸回転数300r.p.m.の条件でヤエン切れもなく良好な成形体を得ることができた。成形体の写真を図17に示す。

ヘッドの溝によって形成されるヤエン部の成形はヘッド軸とロクロ軸の回転数を通常とは逆の関係にすることで良好な結果を得られたことから、同じくヘッドの溝によって形成される外ゴテ成形における高台の成形性もヘッド軸の回転数をロクロ軸よりも速くしたほうが良好になる可能性があると考え、ロクロ軸回転数300r.p.m.に対してヘッド軸



図17 ヤエン付き成形体の断面。

回転数を 250r.p.m.(回転差(ロクロ軸-ヘッド軸)50r.p.m.、一般的な条件)、350r.p.m.(回転差-50r.p.m.)、400r.p.m.(回転差-100r.p.m.)、450r.p.m.(回転差-150r.p.m.)と変化させ成形試験を行った。回転差と生地乾燥重量の関係を図 18 に示す。一般的なヘッド軸回転数がロクロ軸回転数よりも遅い場合と比較してヘッド軸回転数を高くした場合、生地重量は増加する傾向が確認でき、陶土を押し延ばす形の成形により生地の締まりはよくなることが明らかとなった。しかしその一方で、成形時の陶土の伸びが不安定であり、重量がばらつき安定した成形が難しくなることも確認された。また、図 13 で示したような高台傷は発生しなかったが、回転差-150r.p.m.では高台の外側の付け根部分に割れが発生した。よって、ヘッド軸の回転数をロクロ軸より速くする条件は、一般的な外ゴテ成形においてはメリットよりもデメリットのほうが多いと考えられる。

参考文献

- 1) 蒲地伸明, 佐賀県窯業技術センター平成 11 年度業務報告書, 25-32(2000).
- 2) 蒲地伸明, 『強化磁器食器の衝撃強さ評価方法と製品強さ向上に関する研究』佐賀大学工学系研究科(エネルギー物質科学専攻)博士論文, 85-102(2010).

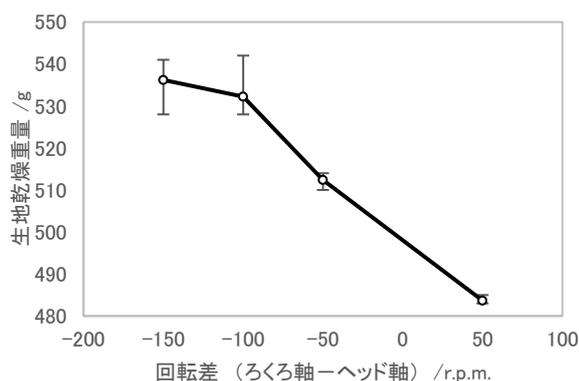


図 18 9 インチプレート成形における回転差と生地乾燥重量の関係 (プロット上の誤差範囲は最大、最小値)

4. まとめ

NC ローラーマシンの内ゴテ成形、外ゴテ成形それぞれの成形因子が製品性状に与える影響について実験計画法を用い確認を行った。その結果、NC ローラーマシン特有の成形因子が製品性状に大きな影響を与えることがあることを確認できた。また、解析結果をもとに薄肉製品や、ヤエン付き袋物の成形試験を行い必要な成形条件を明らかにした。ただし、今回の水準値では解析できなかった項目もあり、より詳細な成形条件については今後、改めて解析を進めていく予定である。

## 産業技術連携推進会議知的基盤部会分析分科会

第64回分析技術共同研究 無機分析(リチウム電池正極材料)への参加

大竹亜紗美、志波雄三  
佐賀県窯業技術センター

産業技術連携推進会議知的基盤部会分析分科会が主催する分析技術共同研究に参加し、本年度の共同分析試料である二次電池材料の「リチウム電池正極材料」の分析を行った。当センターの依頼試験で通常行っている手法(JIS M 8853)で溶液化を行い、ICP 発光分析法により測定を実施した。報告した値は事務局が定めるzスコアにおいて「満足」の範囲内と判定され認定証を受領し、当センターの分析技術は妥当性があるとの評価を受けた。

## Industrial Technology Cooperation Promotion Council Intellectual Infrastructure Committee Chemical Analysis Subcommittee

Participation in the 64th Joint Research on Chemical Analysis Technology, Inorganic Analysis  
(LITHIUM NICKEL COBALT ALUMINIUM OXIDE for Lithium Battery)

OTAKE Asami, SHIWA Yuzo  
Saga Ceramics Research Laboratory

We participated in the joint research on chemical analysis technology held by the chemical analysis subcommittee of industrial technology cooperation promotion council. This year's joint analysis sample was "LITHIUM NICKEL COBALT ALUMINIUM OXIDE for Lithium Battery," a secondary battery material. The sample was dissolved in solution using the method (JIS M 8853) that is usually used in requested tests at our laboratory, and measured by the ICP emission spectrometry. The reported value was judged to be within the "satisfactory" range in the z-score determined by the secretariat, and we received a certificate of approval. The analytical technique of our center was judged to be generally valid.

### 1. はじめに

国立研究開発法人産業技術総合研究所が主管する産業技術連携推進会議は、全国の公設試と連携して機関相互の試験研究の推進、企業等への技術開発支援を通じて、我が国の産業技術力の強化を図ることを目的とした会議<sup>1)</sup>である。その技術部会の一つである知的基盤部会分析分科会は、化学分析に係わる共通の課題について、情報交換や研究に取り組み、時代の要求に沿った国際的に通用する分析技術の確立を図ることを分科会の目的としている<sup>2)</sup>。

分析分科会では、毎年、機関相互の分析技術の情報交換の場として、無機分析の共通試料を設定し、参加を希望する全国の公設試験研究機関が分析を行う分析技術共同研究が実施されている。各公設試で得られた分析結果は統計的処理により数値の妥当性などが評価され、

分析方法及び分析値が本分科会の定める指標内にあれば認定証が交付されている。本年度は、「リチウム電池正極材料」が共同分析試料として選定された。

これまで当センターでは、依頼試験で取り扱うことの多い酸化物系天然鉱物等が共同分析試料として選定されたときに本共同研究に参加してきた。本年度の分析試料である「リチウム電池正極材料」についても、今後、定量分析の対象として県内企業から依頼試験のニーズがあると考え、今回の共同研究に参加することとした。分析手法としては、当センターの依頼試験で通常用いている JIS M 8853(セラミックス用アルミノけい酸塩質原料の化学分析方法)に準じた前処理及び ICP 発光分析装置による測定を行い、現行の分析方法がリチウム電池正極材料に対しても妥当な分析結果を示すかについて検証した。その取り組みと結果について報告する。

## 2. 実験方法

### 2.1 共同分析試料について

共同分析試料は、「リチウム電池正極材料」の粉末で約40gが配布された。試料の化学式は $\text{Li}(\text{Ni}_{0.88}\text{Co}_{0.09}\text{Al}_{0.05})\text{O}_2$ であり、粒径は150 μm以下に調整されている。分析項目はリチウム、ニッケル、コバルト、アルミニウム の元素換算での定量分析値(重量%)であり、分析対象元素が化学組成通りであれば、リチウム:7.145mass%、ニッケル:53.42mass%、コバルト:5.484mass%、アルミニウム:0.8369mass%となる。

### 2.2 共同分析試料の前処理(溶液化)について

本共同研究での試料の分析方法については、JIS M 8126(鉱石中のニッケル定量方法)、JIS M 8129(鉱石中のコバルト定量方法)、JIS M 8239(マンガン鉱石-アルミニウム定量方法)などが主催者側より提示されたが、今後当センターにおける依頼試験へ迅速に適用することを想定して、設備面や試薬等の環境を変えずに作業が可能なJIS M 8853(セラミックス用アルミノけい酸塩質原料の化学分析方法)に準じた方法で前処理(溶液化)を行った。前処理のフローを図1に示す。まず、試料を白金皿に0.1mg単位で約0.2g 秤量し、これに融剤として炭酸ナトリウム2g及びホウ酸0.5gを加えて混合したものを900℃の電気炉で約10分加熱融解した。次に濃塩酸を蒸留水で体積比2倍に希釈した溶液(以下、「塩酸(1+1)」と表記)を加えてウォーターバスで蒸発乾固を行った。この乾固物に塩酸(1+1)と熱水を添加して溶液化させるが、ろ過による残渣については再び融解処理を行い、最終的に試料を完全に溶液化した。得られた溶液は薄い緑色の透明な溶液であり、200mLメスフラスコで定容を行い、希釈倍率10倍に調製したものを測定用の実試料溶液とした。

### 2.3 測定方法

元素の測定には ICP 発光分析装置(ICP-8100CL、島津製作所製)を用いた。装置の測定条件を表1に、元素の分析波長及び波長の種類を表2に示す。定量分析は各元素の市販標準液から表3に示す各濃度の検量線用標準溶液を調製し、検量線法により実試料溶液の各元素濃度を測定した。なお、この場合の標準溶液は、マトリック

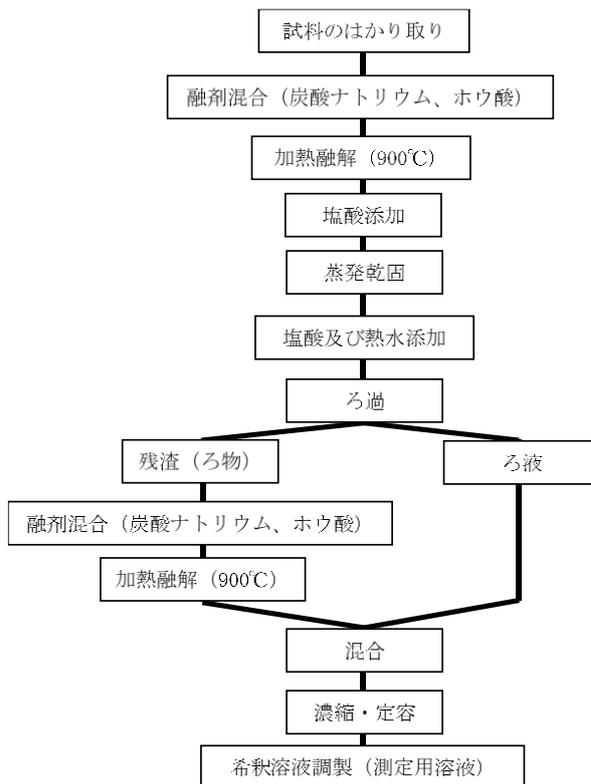


図1 試料の前処理(溶液化)フロー。

表1 ICP 発光分光分析装置の測定条件。

項目	条件等
方式	ツインシーケンシャル
高周波出力	1.2 kW
プラズマガス流量	14 L/min
補助ガス流量	1.2 L/min
キャリアガス流量	0.7 L/min
ネブライザー	同軸型
チャンバー	サイクロンチャンバー
測光方向	横方向

表2 元素の分析線波長と種類

元素	波長 nm	波長の種類
Li	670.785	中性原子線
Ni	231.604	中性原子線
Co	228.616	中性原子線
Al	396.153	中性原子線

表3 検量線標準溶液の元素各濃度(mg/L).

元素	a	b	C
Li	0	5	10
Ni	30	50	70
Co	0	5	10
Al	0	1	2

ス(共存元素)を合わせるために塩酸(1+1)及び炭酸ナトリウムとホウ酸を同様に添加したものをを用いた。

#### 2.4 分析結果の評価について

得られた定量分析の結果は、報告書として分析分科会に提出し、その評価をお願いした。分析分科会における報告値の解析は全報告値の中から極端な値の影響を受けにくいように考慮した統計手法(ロバストな方法)が用いられ、そのような値は各元素で棄却されている。中央値は各参加機関から報告された値を昇順に並べたときの50%の順位に相当する値(メディアン)である。分散指数は報告値から棄却値を除いて求めた標準偏差である。各機関からの報告値が満足できるものか判定する基準としては、(1)式で算出されるzスコアというものが用いられている<sup>3,4)</sup>。

$$z \text{ スコア} = \frac{\text{測定値} - \text{付与値}}{\text{ばらつき} \text{の標準値}} \quad (1)$$

このzスコアの判定の目安は|z|が2.0以下を「満足」、2.0を超え3.0未満は「疑わしい」、3.0以上を「不満足」とされている。表4に分析分科会事務局に報告した当センターの分析値及び事務局集計による発表値を示すが、(1)式の測定値は表4の分析報告値、付与値は中央値、ばらつき標準値は分散指標にあたる。なお、分析分科会では、共同研究の参加者(公設研究機関)は指導的な立場

表4 リチウム電池正極材料の分析報告値および事務局集計による発表値

元素	分析報告値 (mass%)	事務局発表値		
		中央値 (mass%)	分散指標	zスコア
Li	7.174	7.174	0.189	0.0
Ni	52.36	53.29	1.24	-0.8
Co	5.214	5.277	0.1111	-0.6
Al	0.8482	0.8357	0.0283	0.4

にあることから、平成15年度より「満足」判定された報告値に対して認定証を発行している。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 報告値とzスコアについて

分析分科会事務局に報告した当センターの分析報告値は表4のとおりである。事務局によると本年度は参加機関31、報告者数58名、延べ報告データ数は63件であった。当センターの報告値はすべて|z|は1.0以下となり「満足」の範囲内であったことから、当センターは今回認定証(図2)を受領することができ、リチウム電池正極材料に対する当センターの分析手法が妥当であることが確認された。



図2 分析分科会発行の認定証。

#### 3.2 溶液化及び測定方法に関する考察

2.2で述べたように本共同研究での試料の溶液化はJIS M 8853(セラミックス用アルミノルハイ酸塩質原料の化学分析方法)に準じた方法で行った。事務局から報告されたデータをもとに、参加機関の中で測定方法としてICP発光分析法を用いた件数を表5に、及び、試料前処理(溶液

化)方法ごとの件数をまとめたものを表6に示す。ここでは棄却されたデータ分の機関数も省かず含めている。まずICP発光分析による測定を行った機関の割合は65~86%程度で当センターも含め多数を占めた。その中で溶液化の方法はいずれの元素においても酸分解が最も多く、80%程度であった。一方、アルカリ融解を採用したのは当センターのみであったが、試料は完全に溶解し、残渣のない透明な測定溶液を得ることができた。報告値はzスコアを満足する範囲内であったので、前処理方法として問題はないと思われる。

本報告値のなかでニッケルはzスコアが最も大きく0.8であった。「満足」の範囲内ではあったが、ニッケルは主成分元素であるため機器分析法であるICP発光分析法は重量法分析に比べ精度が劣るといわれている<sup>5)</sup>。事務局報告の解説資料<sup>6)</sup>においても、重量分析法あるいは重量分析法を併用した方法はICP発光分析法に比べRSD(相対標準偏差)が小さかった。しかしながら、ICP発光分析法には測定の迅速性、簡便性といったメリットがあり、そのために本共同研究においてもICP発光分析法を採用した機関が多かったものと思われる。当センターでも依頼試験における化学分析にはICP発光分析法を使用している

表5 ICP発光分析法を行った機関の件数

元素	全件数	ICP発光分析件数	ICP発光分析利用の割合(%)
Li	61	50	82.0
Ni	61	40	65.6
Co	61	50	82.0
Al	58	50	86.2

表6 ICP発光分析法における試料前処理方法の件数

元素	前処理(溶液化)方法				
	酸分解	加圧分解	酸分解・アルカリ融解併用	アルカリ融解	その他の方法
Li	42	2	1	1	4
Ni	33	2	0	1	4
Co	41	2	2	1	4
Al	41	1	2	1	5

が、依頼者からの分析精度の要求度合いによっては分析手法を検討することも必要と思われる。

そのほか留意したい点としては、ICP発光分析法ではアルカリ元素の分析感度が低い傾向にあることが挙げられる。若干プラズマの温度を下げることで発光強度をアルカリ元素では上げることができる。今回の分析試料においてはアルカリ元素であるリチウムについても含有量が7.174mass%と比較的多かったためにプロファイルが明確に確認でき分析には問題なかったが、より低濃度のアルカリ元素を分析する場合には、高周波出力を下げたときの分析値への影響、また比較のため原子吸光光度法による測定結果も確認する必要があると考えられる。今後、最適な分析条件を検討していく予定である。

#### 4. まとめ

産業技術連携推進会議知的基盤部会分析分科会が主催する分析技術共同研究に参加した。当センターが通常依頼試験で行っている手法(JIS M 8853)で溶液化を行い、ICP発光分析法により測定を実施した。報告値は分析分科会事務局が定めるzスコアが「満足」の範囲内で判定され認定証を受領することができ、今回の「リチウム電池正極材料」の分析においては、当センターの分析技術は妥当性があると評価された。

当センターの化学分析業務については県内企業を中心に高純度試料の微量分析など、今後あらゆるニーズが求められていくと思われる。今後も引き続き本分科会の共同研究に参加し、情報収集、分析技術の向上に努めていきたい。

#### 参考文献

- 1) 産業技術連携推進会議運営規程  
<https://regcol.aist.go.jp/file/sgr/1612493123486.pdf>.
- 2) 知的基盤部会分析分科会ウェブサイト  
[https://unit.aist.go.jp/nmij/collab/bb\\_kai/](https://unit.aist.go.jp/nmij/collab/bb_kai/).
- 3) 分析技術共同研究のzスコアによる解析, 産業技術連携推進会議知的基盤部会分析分科会, 2021年度分析分科会年会総合資料, pp160-166(2021).
- 4) 城野克広, 津越敬寿, ぶんせき 2014 [4], pp152-160 (2014).

- 5) 森川久, 上蓑義則, 柘植明, 日本セラミックス協会, 第15回セラミックス関係分析技術者研究発表会講演予稿集, pp1-4 (2012).
- 6) 令和3年度分析分科会年会 第64回分析技術共同研究検討会 無機解説資料, pp17-20(2021).

## 陶石利用技術支援事業

酸処理陶土による泥しよ調製追試験及び天草酸処理陶石の品質調査

志波 雄三、寺崎 信、嘉村翔太郎  
佐賀県窯業技術センター

酸処理 100%陶土の泥しよ特性を確認し、その結果をもとに泥しよ重量 100kg スケールで圧力鑄込成形試験を行った。泥しよ含水率を 24.3%とし、解膠材としてディープ 0.005mass%、水ガラスを 0.25mass%を添加した条件で良好な泥しよを調製することができ、成形性も良好であることが確認できた。また、今後の天草陶石利用技術支援に資することを目的に現状の酸処理陶石の品質調査を行った。その結果、塩素濃度は酸処理陶石・陶土とも無処理物よりやや高く、pH も酸性側であることが確認された。

### Support for The Porcelain stone utilization

Supplementary examination of preparation of the slurry using the acid-treated clay and Investigation of the quality of amakusa acid-treated stone

SHIWA Yuzo, TERASAKI Makoto, KAMURA Shotaro  
Saga Ceramics Research Laboratory

The properties of a slurry of 100% Amakusa acid-treated porcelain clay were confirmed. Based on the results, the pressure casting test was operated using a slurry approximately 100 kg. The good slurry was produced under the following conditions: 24.3% moisture, 0.005 mass% deflocculant, and 0.25 mass% sodium silicate, and it could be formed without problems. In addition, a quality investigation of the current acid-treated porcelain stone was conducted in order to contribute to future support for the utilization of Amakusa stone. The results showed that the chlorine concentration of both acid-treated porcelain stone and clay tended to be slightly higher than that of the untreated material, and the pH value was also acid side.

#### 1. はじめに

近年、天草陶石は採掘状況の悪化、採掘現場の人手不足の現状から特に高品位陶石の入手が難しい状況が続いている。天草特上・撰上陶土の安定した製造には、塩酸処理により陶石中の鉄分の含有量を低下させた酸処理陶石の利用拡大が望まれる。低品位陶石から鉄分を少なくする塩酸処理は1970年頃から実用化<sup>1)</sup>されている化学処理法である。図1に示すように、処理前の低品位陶

石と比較すると、酸処理陶石は白く数 cm 程度の塊状になっている。しかしながら、酸処理陶石は流通初期に酸の洗浄不足による陶土の使いづらさの問題が発生し、現在でも利用者に酸処理陶石のマイナスイメージが残っている。こうした状況から、当センターは陶磁器業界の各組合等の協力を得ながら平成 29 年度から現在まで酸処理陶石を使用した陶土の利用拡大のための支援事業を行ってきた<sup>2~4)</sup>。平成 29~30 年度に実施した、酸処理陶石を配合した細工用試験陶土を陶磁器業界関係者に試用してもらった評価においては、現行陶土と変わりなく使えるとの評価を受けた。また、平成 30~令和元年度に実施した泥しよ特性の検討においては、鑄込用陶土では酸処理陶石の配合割合に応じて泥しよ特性が変化することがわかり、有田焼量産の主要な成形方法である圧力鑄込成形においては、酸処理陶石の配合割合に応じた適切な泥しよ調製が必要なことを明らかとした<sup>4)</sup>。この時、酸処



図1 低品位天草陶石①及び酸処理後陶石②の外観。

理陶石 50%、70%配合の陶土から調製した泥しようでは、成形性及びその後の焼成体の収縮率等も通常の天草陶土と同程度で量産性に問題はなかったが、酸処理陶石 90%配合の泥しようでは石膏型からの離型性が悪く、生地が乾きにくいという指摘があった。これらの指摘は泥しようが過解膠の状態のときに発生するものである。そこで本年度は、泥しよう調製条件の再検討と成形試験を行ったので、その結果を報告する。

また、今後天草陶石の利用を支援し、白磁の需要に応じていくには、酸処理陶石利用の重要性を伝えていくことが必要であり、そのためには酸処理陶石の性状確認を長期的に実施していく必要がある。本報告では定期検査方法の確立を目的とし、化学組成及び耐火度、酸処理陶石を蒸留水に浸漬したときの塩素濃度及び pH について調査した。

## 2. 実験方法

### 2.1 酸処理陶石を用いた鑄込用泥しようの調製と成形試験

#### 2.1.1 陶土及び泥しようの調製

既報<sup>4)</sup>における泥しよう調製試験では、酸処理陶石の割合が100%の陶土を使用し、これに通常の陶土を混ぜ合わせることで酸処理陶石の最も高い配合を90%の泥しようを調製したが、今回は酸処理100%の陶土であれば配合率90%の性状を推察できると考え、酸処理100%陶土による泥しようを用いた試験を行った。また、その結果をもとに、圧力鑄込試験用として総重量100kg程度の泥しようを調製した。

#### 2.1.2 鑄込用泥しようの調製及び粘度測定

鑄込み用泥しようは、解膠剤として水ガラス(富士フィルム和光純薬工業製)及びディーフ(太平化学産業株式会社製)を用いて調製した。既報<sup>3,4)</sup>では水ガラスの添加率を0.2mass%に固定し、ディーフ添加率を増加することで最適条件を検討したが、結果として得られた泥しようは過解膠の状態であったと考えられた。そこで、今回はディーフ添加率を固定し、水ガラス添加率を増加させることで粘度を調整することにした。固定したディーフの添加率は0.005mass%、0.01mass%、0.02mass%とした。なお、泥しよう

の粘度は、B型回転粘度計(DVH-BII、トキメック製)を用いて測定し、解膠剤添加率の変化による粘度変化を観察した。

#### 2.1.3 圧力鑄込試験について

圧力鑄込装置(今泉鉄工所製)を用いて総重量100kg程度の泥しようを調製した。石こう型は既報<sup>4)</sup>と同じ型を用いて成形圧1.6~1.7kg/cm<sup>2</sup>で生地を成形した。状態観察として離型性、着肉性、生地の乾きなどを前回試験<sup>4)</sup>と比較した。

## 2.2 天草酸処理陶石の性状調査

### 2.2.1 調査原料について

調査原料は、肥前陶土工業協同組合ほか陶土製造企業の協力を得て2021年12月にサンプリングした現在流通している天草酸処理陶石を用いた。サンプリングしたのは皿山系の酸処理陶石及び低火度酸処理陶石、海岸脈系の木山酸処理陶石及び低火度酸処理陶石である。比較物として、酸処理を行っていない陶石である海岸脈系の共立マテリアル4等陶石及び浜平低火度4等陶石、また陶土として2.1で用いた酸処理100%陶土と市販天草撰上陶土(鑄込用)の性状も調べた。

### 2.2.2 調査項目

原料物性として、耐火度及び化学組成について調査した。耐火度は耐火度測定装置(戸田超耐火物製、TODA'S ミニファーネス)により行い、化学組成は蛍光X線分析装置(Rigaku 製、ZSX PrimusII)を用いてガラスビードによる検量線法で定量分析を行った。

次に原料試料を蒸留水に浸漬させた上澄み液のpH及び塩素濃度の調査を行った。まず原料陶石を小型スタンプミル(日陶科学製、ANS143型)により粒子が1mm以下程度になるまで粉碎し、粉碎粉末30gを測り採ってビーカーに入れ、300gの蒸留水を加えて30分間攪拌した後、一昼夜程度静置させて上澄み液を採取した。陶土についても粉末30gを測り採り同様の操作によって上澄み液を採取した。静置させた上澄み液は約200mL分取し、冷却高速遠心機(コクサン製、H-2000A2)により回転数10000rpm

で20分間遠心分離を行い、これを測定用溶液とした。

塩素濃度は ICP 発光分光分析装置(島津製作所製、ICPS-8100CL)を用いて検量線法により、pH は pH メータ(東亜ディーケーケー製、HM-30R)により測定した。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 酸処理陶土を用いた泥しよう調製及び圧力鑄込試験

##### 3.1.1 酸処理陶石 100%陶土及び 90%陶土泥しようの粘度特性

図2に、ディーフ添加率を0.005mass%、0.01mass%、0.02mass%と固定した時の水ガラス添加率と各泥しようの粘度曲線を示す。なお、比較として酸処理割合90%陶土で水ガラスのみ添加の粘度曲線<sup>3)</sup>を併せて記している。ディーフ添加率が高いほど水ガラス添加率が同じでも粘度が低く、ディーフ添加率0.02mass%の泥しようは、水ガラス添加率が0.2mass%以下の領域からでも約350mPa・sと低粘度となることが分かった。ディーフ0.005mass%においても粘度は最終的には約370mPa・sとなり他の2条件と大差はなかった。酸処理90%ディーフ無しの最小粘度は約750mPa・sであり、本試験で行ったわずか0.005mass%のディーフ添加で粘度を半減できることが明らかとなった。同時にディーフが泥しようの解膠状態に与える影響は極めて大きく使用に関しては繊細な管理が必要であり、泥しよう特性が過解膠となる危険性に十分注意しなければならないことも判った。

##### 3.1.2 泥しよう調製と圧力鑄込試験

既報<sup>4)</sup>における酸処理陶石90%の泥しよう調製では、水ガラス0.2mass%にディーフ0.02mass%を加えて調製した結果、過解膠の現象が見られたので、本試験においては、3.1.1の試験結果からディーフの添加率を0.005mass%に固定し水ガラスを順次加えて泥しようを調製することとした。酸処理陶石100%の陶土を使用し、泥しよう含水率24.3%でディーフ0.005mass%に水ガラスを0.25mass%を添加した条件で、総重量100kgの良好な圧力鑄込用の泥しようを作製することができた。成形性に関わる生地離型性・着肉性・乾燥状態は既報<sup>4)</sup>で指摘された状態より改善され前回試験の酸処理陶石50%及び70%の泥しようと同等であった。

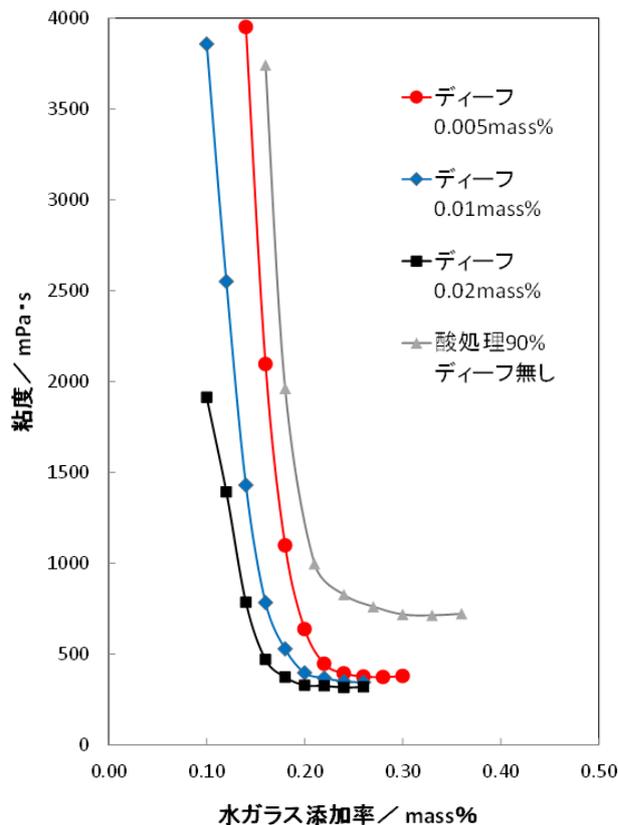


図2 酸処理陶石100%陶土及び90%陶土泥しようの粘度曲線

このように、酸処理陶石100%の陶土でも解膠剤の適切な使用により実用性のある鑄込泥しようが調製できることがわかった。

#### 3.2 天草酸処理陶石の性状

表1に各原料上澄み液の塩素濃度及びpHの結果を示す。塩素濃度は比較として当センターの水道水及び蒸留水も調べた。

塩素濃度は最も高いのが水道水で8.6ppmであった。各原料の値はこの値よりも低く0.2~3.7ppmであった。酸処理陶石では皿山陶石の2種は0.7ppm、木山陶石は1.3ppm、3.7ppmと皿山陶石より高い数値であった。酸処理無しの陶石の2種はいずれも1ppm未満で酸処理陶石より低い値であった。陶土においても市販天草摺上陶土が酸処理100%陶土より低い値であった。結果として、塩素濃度は酸処理をした陶石・陶土とも高くなる傾向を示したが成形には問題はないと考えられる。表2に、2012年に実施された同様な調査報告<sup>5)</sup>の一部を示した。酸処理

表1 各原料上澄み液の塩素濃度及びpH.

原料名	塩素濃度 (ppm)	pH
皿山酸処理陶石	0.7	6.1
皿山低火度酸処理陶石	0.7	6.4
木山酸処理陶石	1.3	6.8
木山低火度酸処理陶石	3.7	6.4
共立4等陶石	0.2	7.8
浜平低火度4等陶石	0.6	7.3
酸処理100%陶土	1.6	6.4
市販天草撰上陶土	0.5	7.1
水道水	8.6	—
蒸留水	0.3	—

陶石上澄み液の塩素濃度は2.0、3.1、17.3ppmであり、一部酸処理陶石で水道水よりも高い値が計測されていた。今回の調査分では塩素濃度が高い酸処理陶石はなかったが、傾向を探るには一定期間ごとのサンプリング数が必要と思われる。

一方、pHは酸処理した陶石・陶土は6.1～6.8であり、無処理の陶石・陶土はややアルカリ性側の7.1～7.8と若干の差が見られた。酸処理100%陶土は6.4とやや酸性側にあり、泥しょう調製において水ガラスのみでは粘度低下し難いこととの関連性が推察された。

表3に原料陶石及び陶土2種の化学組成値、及び耐火度の結果を示す。低火度でない陶石の皿山酸処理と木山酸処理においては耐火度がどちらもSK20程度であり、予想した耐火度よりも低かった。しかしながら、天草陶石性状データベース<sup>6)</sup>に掲載されている陶石データで、酸

表3 原料陶石等の化学組成(mass%)及び耐火度.

原料名	LOI	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	CaO	MgO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	耐火度
皿山酸処理陶石	2.37	80.27	13.43	0.33	tr.	0.04	0.03	0.07	3.16	SK20 <sup>-</sup>
皿山低火度酸処理陶石	2.41	78.42	14.57	0.37	0.01	0.04	0.04	0.72	3.14	SK16 <sup>+</sup>
木山酸処理陶石	3.16	79.02	14.32	0.33	0.01	0.05	0.03	0.07	2.64	SK20 <sup>+</sup>
木山低火度酸処理陶石	2.51	77.92	14.67	0.32	0.01	0.03	0.04	1.03	3.11	SK16 <sup>+</sup>
酸処理100%陶土	3.38	76.52	15.95	0.41	0.01	0.05	0.05	0.22	3.12	SK27
市販天草撰上陶土	3.49	75.61	16.68	0.44	0.01	0.06	0.06	0.01	3.32	SK27

表2 2012年調査時<sup>5)</sup>の塩素濃度及びpH.

原料名(採取時期)	塩素濃度 (ppm)	pH
皿山陶石(2012.3)	0.4	8.0
皿山酸処理陶石(2012.3)	3.1	6.0
木山陶石(2012.3)	0.2	8.1
木山酸処理陶石(2012.3)	2.0	6.7
皿山酸処理陶石(採取時期不明)	17.3	—

処理陶石ではないが化学組成値に近い試料でSK20程度のデータもあり本データの結果も妥当であると思われる。陶土の2種はSK27と問題ない通常の耐火度であった。

#### 4. まとめ

本事業では、これまで問題となっていた酸処理100%陶土で泥しょう特性調査をあらためて行い、その結果をもとに総重量100kg程度の泥しょうを調製し圧力鑄込試験を行った。泥しょう含水率24.3%、ディーフ0.005mass%に水ガラスを0.25mass%を添加した条件で良好な圧力鑄込用の泥しょうを作製することができ、生地の離型性・着肉性・乾燥状態は改善された。

また、今後の天草陶石の利用技術の支援に資することを目的に、現状の酸処理陶石の性状を調査した。結果、塩素濃度は酸処理陶石・陶土とも無処理陶石・陶土よりも高く、それにとまないpHも酸性側にシフトする傾向が見られたが、この程度の値の変化は陶土の性質に大きな影響を及ぼさないと考えられる。今後、陶石のサンプリング数や地点(産出脈など)の精度を高めてデータ蓄積を行う予

定である。

#### 謝辞

本事業にご協力いただいた肥前陶土工業協同組合の皆様、ならびに協力いただいた方々に深く感謝申し上げます。

#### 参考文献

- 1) 林文雄, 永田正典, セラミックス 14, No.4, 333-338 (1979).
- 2) 志波雄三, 寺崎信, 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, 8-11 (2018).
- 3) 志波雄三, 寺崎信, 佐賀県窯業技術センター平成 30 年度研究報告書・支援事業報告書, 19-22 (2019).
- 4) 志波雄三, 寺崎信, 嘉村翔太郎, 佐賀県窯業技術センター令和元年度研究報告書・支援事業報告書, 51-55 (2020).
- 5) 寺崎信, 天草陶石研究開発推進協議会「天草陶石に関する意見交換会」, 講演資料, (2013).
- 6) 木村邦夫, 天草陶石のデータベース, ウェブサイトアドレス:<http://www.kumin.ne.jp/vsi/pspdb/>, 2004年8月作成, 2016年3月改訂.

## 伊万里・有田焼のものづくりを考えるイベントの開催

NEXTRAD 1st Exhibition 「Go Forward -磁器のものづくりに関する“13P”の挑戦-」

の企画立案および運営支援

浜野 貴晴

promoduction(プロモダクション) 代表 / 佐賀県窯業技術センター 外部アドバイザー

国立大学法人 佐賀大学 肥前セラミックセンター 客員研究員

有田町 クリエイティブアドバイザー



### 1. はじめに

伊万里・有田焼の窯元の若手有志 13 名(13 Person)で構成される「NEXTRAD/ネクストラッド」は、2021 年 10 月 22 日(金)、23 日(土)の 2 日間、佐賀県有田にて初の展示・体験イベント「Go Forward -磁器のものづくりに関する“13P”の挑戦-」を開催した。NEXTRAD は、有田焼産業における持続可能な未来を考え発信することを目的に活動する集団として、2017 年に設立。メンバーは、窯元の若手経営者および後継者として、それぞれに特色あるものづくりを行なっているが、月例で開催している勉強会にて各社の取り組みや産地の抱える課題・方向性などを議論している。私はファウンダー、アドバイザーとして参画している。

### 2. 目的と経緯

日本初の磁器として誕生以来、400 年の歴史を誇る有田焼。しかしながら、現在、有田焼産業は「受注減」「利益率減」「後継者・人材不足」「原料や燃料の高騰」など多岐にわたる課題を抱えている。これらの問題は産地内で度々議論されるものの、具体的な解決策の実施には至っていない。

もの余り時代と言われる様々な商品がひしめく市場に対し、多様化するライフスタイルに即した商品開発・ブランディングを行うための情報収集や分析そして企画力、有田焼のものづくりや魅力を伝える情報発信力の重要性はより高まっている。

その窯元若手有志13社の集まりであるNEXTRAD/ネクストラッドでは、今後も永く有田焼産業に携わっていくつくり手として、日々取り組んでいること、そしてこれからの産地でのものづくりのあり方について、自分たちの将来を見つめ議論を重ねてきたことを、窯業関係者から一般消費者まで広く多くの方々と共有したいという想いから、産地に人を招き入れる展示・体験イベントを企画した。

イベント内容としては、メイン会場にて、磁器の製造工程から、各社の様々な技や美などの特徴を紹介する展示、SDGs への取り組みに関するパネル展示と産学連携による応援型チャリティとして規格外品の社会実験販売、金継ぎ体験ワークショップを計画。さらに人数限定の予約制にて、2つの窯元の工場や作業風景を見学できるオープンファクトリーを2日間にわたり実施することとした。

### 3. イベント実施概要

#### 3.1 展示イベント(製造工程)

会場となった佐賀県陶磁器工業協同組合のショールーム「ARITA MONONOSU」では、メイン展示として、実際に使用する材料や道具とともに作業風景のパネルなど、原料となる陶石から順を追って磁器の製造工程を紹介した。



原材料や道具など、製造工程を紹介した展示会場風景

さらに、今回のイベントのタイトルにもなっている、有田焼をより深く理解していただくために導き出した“P”を頭文字とする13のキーワード(Porcelain 磁器 / Process 工程 / Polyethism 分業制 / Professionalism 専門性 / Peculiarity 独自性 / Planning 企画 / Prototype 試作 / Production 生産 / Pricing 価格設定 / Path 流通 / Promotion 販売促進 / Purchaser 顧客 / Partnership 協働)を紹介した印刷物を配布し、展示物とともに窯元が有田焼のものづくりについて自ら説明。参加者とつくり手が産地の現状や課題を共有し、これからの磁器のものづくりを一緒になって考えていくことを目指した。



窯元が自ら、展示物や工程について説明を行う

#### 3.2 展示イベント(各社の特徴)

メイン展示を取り囲むように、13の窯元もそれぞれが自社ブースを設けたが、自らの強みや得意な技術1つに展示テーマを絞り、自社のものづくりの特徴を紹介した。

徳永 弘幸氏(徳幸)は、自社の転写技術をテーマに選定。器を埋め尽くすような華やかな加飾が特徴の有田焼らしい伝統的な多色の絵柄を表現するために、20数版ま

で刷り重ねた細かいパーツが並ぶ転写シールのシートを展示するとともに、その技法を紹介。長らく転写に対する市場の認識は、安価に量産するための技法とされてきた。しかし、手描きでは困難な極微・精密なグラフィックなどシルクスクリーン印刷だからこそできる表現の可能性を探る。



転写紙に印刷された様々なパーツの現物を実際に貼り付けた器を用いて、転写の技法について紹介した「徳幸」の展示

原田 吉泰氏(吉右エ門製陶所)は、割れてしまったり廃番品となり、これまで廃棄してきた素焼き生地を再利用できないかと考え、粉碎した素焼き粉を釉薬として再調合した「泡化粧」の加飾技法について紹介。限りある天然資源である陶土の有効活用という、SDGs(持続可能な開発目標)に通ずる取り組みでもある。



粉碎した素焼きの実物や釉薬の製造工程をパネルにて紹介した「吉右エ門製陶所」の展示

畑石 修嗣氏(畑萬陶苑)は、調香師とコラボし、香水とのセット販売を企画した鍋島の伝統的絵付けを施した新作の携帯式的アトマイザー香水瓶を紹介。金属製のスプレー部品とねじ切り部分を噛み合わせる高い精度の瓶の製造技術とともに、中身となる香水の原料と絵柄を合わせた商品企画をものづくりのストーリーとして伝える。アルコー

ル消毒液を入れて使用することもできる、現代のニーズを的確にとらえた商品でもある。



「香り」をテーマに新商品の企画やストーリーを紹介した「畑萬陶苑」の展示

各窯元の展示テーマは以下の通り。

川副 史郎氏(川副青山)

「成形、焼成変形を塾考し、複雑な形状を焼き上げる。」

徳永 弘幸氏(徳幸窯)

「転写技法を駆使して、加飾の可能性を探る。」

北川 朝行氏(北川美宣窯)

「代々受け継ぐ彫刻の技、多様な形状を削り出す。」

前田 洋介氏(皓洋窯)

「形×絵柄で構成する器のマトリックス。」

藤本 和孝氏(貝山製陶所)

「大物づくりと彫り文様、自社完結のものづくり。」

藤本 浩輔氏(藤巻製陶)

「深みある青白磁の可能性、引き算の美学。」

下村 耕司氏(福泉窯)

「絵の具、釉薬、泥しよう、筆使いの表現を極める。」

森田 文一郎氏(文翔窯)

「成形されたものに手を加え、無限に広がるかたちの世界。」

原田 吉泰氏(吉右エ門製陶所)

「大切な原料の有効利用が、新しい表現へと昇華する。」

福田 雄介氏(福珠窯)

「伝統の絵付けの技、伝統に留まらない新しい表現。」

田中 克幸氏(田森陶園)

「陶土の持つ味わい、柔らかさを感じる磁器。」

畑石 修嗣氏(畑萬陶苑)

「香りのうつわ 企画を伝えるものづくり。」

山本 晃平氏(やま平窯元)

「独自に改良した透光性陶土、薄さと白さへのこだわり。」

消費地で行われる一般的な展示会では、商品の紹介が中心となるのに対し、今回のイベントでは、産地で開催するからこそ、商品だけの展示に終わらせず、つくり手自らがその背景やストーリーを伝えるため、完成品でなく、工程や素材を展示紹介する窯元も多く見られた。

### 3.3 SDGs への取り組みに関するパネル展示

SDGs への取り組みに関するパネル展示では、磁器のものづくりが抱える課題として、予防措置が困難な瑕疵が現出してしまふ実情と検品基準のあり方、産業廃棄物、CO<sub>2</sub>の排出について NEXTRAD としての見解を紹介した。



13 枚のパネルにて SDGs への NEXTRAD としての取り組みや提言について紹介

天然原料を用い、分業制による多くの職人の手を経て製造される磁器において、例えば「鉄粉」や「ピンホール」と呼ばれる焼成品の生地や釉薬の表面に現れる小さな黒点や異物、突起や凹みをなくすことは困難を極める。しかしながら、鉄粉やピンホールなどは極小であってもすべて欠陥とみなされ、そのほとんどは、規格外品として扱われ、陶器市などを通じたセール品販売、もしくは産業廃棄物として処分されている。

昨今の SDGs への意識向上、環境負荷軽減の社会情勢、来たる将来の脱炭素社会を目指していく上で、こうした規格外品の扱いをそのままにしておくことに向けられる世間からの目はより厳しくなっている。

つくり手として、納得できる商品をお客さまの元に届けたいという想いから、窯元は、日々、技術の向上や生産管理

に努めてきた。また、パートナーシップを結ぶ陶土、型、生地製造事業者との連携、さらに、販売を託す商社とも意見交換を行い、不具合への対応策を検討していることを紹介した。



SDGs に関する展示パネルの一部

また、近年複雑かつ精密な形状への要望が多くなったことに伴い、焼成時の変形防止のため、「ハマ」と呼ばれる専用の窯道具の必要性も高くなるが、一度焼成したハマは再利用できず、廃棄処分する以外の処理方法はない。量産品を製造する産地であるが故、生地の成形には石膏型が多く用いられるが、この石膏型も消耗品であるため、摩耗した型は廃棄される。しかしながら、石膏型も再資源化が難しく、ハマ同様、現状埋め立て処理されている。こうした産業廃棄物の軽減および再資源、再活用化のための研究も今後の課題である。

さらに、脱炭素社会に向けて社会活動の見直しが進む昨今であるが、磁器を製造する上で、焼成という工程は欠かすことができない。現在、有田焼を製造する多くの窯元は、その焼成に化石燃料を用いたガス窯を用いており、

結果多くの CO<sub>2</sub> を排出しているものの、その実情について産地内にて把握した例はこれまでみられないことから、今回どの程度の CO<sub>2</sub> を排出しているのか算出を試みた。

NEXTRAD のメンバー13 社の1年間の燃料ガスの総使用料：約 214.1 トンから推計した、13 社の窯焚きによる CO<sub>2</sub> の総排出量は、約 642.4 トンになる。

CO<sub>2</sub> の吸収源とされる森林だが、642.4 トンの CO<sub>2</sub> を吸収するためには、約 73 ヘクタール<sup>\*1</sup>が必要となり、これは東京ドームに換算して、約 15.5 個分の広さとなる。

貴重な天然資源である陶石を用い、CO<sub>2</sub> を多く排出する焼成という工程が必須な陶磁器産業であるからこそ、今回のパネル展示を通じて、環境負荷軽減のための対策が必要であることを広く伝えるとともに、産地内および市場において有田焼産業の持続可能性のための収益率の向上や産業廃棄物などの課題について考え、行動する機運を高めることを目指した。

### 3.4 応援型チャリティによる規格外品の社会実験販売

現在、伊万里・有田焼の陶磁器産業は、受注減少、原料や燃料・人件費の高騰による利益率の減少、後継者や人材の不足、CO<sub>2</sub> 排出や産業廃棄物の問題など、さまざまな課題を抱えている。この状況を鑑み、パネル展示説明による SDGs への NEXTRAD の考えや取り組みをしっかりと伝えた上で、持続可能な産業の構築に向けての試みのひとつとして企画されたのが、規格外品の実証実験販売である。産地の実情を研究している長崎県立大学に協力いただき、学生に説明要員として参画してもらった。

磁器は、道具としての機能に問題のない安全な商品であっても、ほんの小さな鉄粉やピンホールひとつで規格外品として廃棄されたり価格を下げた販売されたりしている。今回の実証実験販売の目的は、これらの規格外品が一般にどれほど受け入れられるものであるかを検証することにある。

規格外品を Re-BIRTH 品(リ・バース品)と名付け、定価で販売し、その収益の一部を森林保全活動に充てることで、その価値の社会的評価を探るというものである。規格外品の定価販売が可能になれば、収益率の増加や窯焚き回数減少による CO<sub>2</sub> 削減、産業廃棄物削減による地球

環境負荷の軽減につながり、産地の持続性が担保される可能性が高くなる。しかし、磁器は陶器と異なり、歪みやピンホール、鉄粉、釉ムラなどを「景色」として愛でる慣習がなく、特に有田焼は、昔から白さを追い求め、その繊細な技と端正な美を讃えられてきた歴史的経緯がある。こうした固定観念の中で、「本当に小さな鉄粉一つでも良品として認識いただくことはできないのだろうか」という疑問から始まったこの実証実験販売は、価値観の転換を図る一種の「攻め」の試みであると同時に、長い歴史を持つ有田の次世代を担う若手たちが、新たな歴史を紡いでいくための、真摯な覚悟に基づく挑戦の第一歩と言えよう。



社会実験販売のコーナー

### 3.5 オープンファクトリー

オープンファクトリーは、藤巻製陶と福泉窯にて実施した。2 日間、午前午後約 1 時間、日頃公開していないそれぞれの工場を、窯元自らが案内した。実際の職人の作業の様子が見学できるとあって、多くの事前予約があった。

藤本 浩輔氏が案内した藤巻製陶は、絵付けが一般的な有田では珍しく、白磁や青白磁など絵を施さない磁器を製造している窯元である。

分業制が一般的な有田焼産地での生産体制であるが、成形から焼成までを自社で手掛け、厳正な品質管理のもと生産を行なっている。「機械を使った量産体制ですが、完成するまでには、かなり多くの人の手がかかっているんです」と説明しながら、参加者に焼きあがった器の窯出しや釉掛けも体験してもらった。職人たちの実作業を近くで見ること、さらに体験することで、何気ない職人の手さばきが一朝一夕には真似できない経験に裏打ちされたものであるか、実感を伴って参加者の理解を促した。



藤巻製陶でのオープンファクトリーの様子

福泉窯を案内したのは下村 耕司氏。まず約 4,000 種にもおよぶという商品ラインナップの豊富さに参加者一同を驚かせた。有田ならではの絵付け技術を紹介しながら、「デザインは伝統的でなくても良い。しかし、工程には伝統を残したい。技術は一度失うと簡単には取り戻せませんから」と話し、筆仕事を残していきたいという強い想いを伝えていた。



福泉窯でのオープンファクトリーの様子

オープンファクトリーは、有田に訪問しなくては体験することができない、産地ならではの価値あるイベントコンテンツであることを関係者一同、再認識した。

#### 4. イベントへの参加者の反応と今後の展開

有田焼とは？それぞれの窯元の個性とは？持続可能な磁器のものづくりとは？どのようなものか。参加者がそれらをより深く理解し、産地が抱えるさまざまな課題についてともに考え、つくり手と問題意識を共有する機会の提供を試みた今回のイベント。これからの産地のものづくりを見据えた若手窯元たちの取り組みは、参加者からのアンケートやヒヤリング結果を見ても好意的に捉えられた。

展示を見学した産地商社からは、常態的に今回の詳細な工程展示が産地内で見られることを望む声や、持続可能な産業とするために、販売を担う立場として何ができるか考えたいという前向きな意見も聞こえた。

このイベントは、今回限りに終わらせず、ブラッシュアップしながら継続的に毎年実施していくことを検討しており、産地への来訪動機となる新しいコンテンツに育てていきたい。400 年続いてきた伊万里・有田の磁器のものづくりを次世代へ継承していくため、NEXTRAD の“13P”の挑戦はこれからも続く。

#### 5. 特筆すべき成果

- 同業者が集まり、産地の課題や今後の取り組みに関して、意見交換や情報共有する場の創出
- 産地だからこそできるイベント企画により、産地に訪問する機会と目的の創出
- 展示を通じた情報発信と体験による実感を伴う理解の促進
- 製造から販売に至る様々な事業者および同業者組合、有田町他支援組織などを横断した連携構築

#### 脚注

※1 林野庁 HP「地球温暖化防止に向けて」、国立研究開発法人 森林研究・整備機構 森林総合研究所 HP「森林による炭素吸収量をどのように捉えるか」を参考に算出

#### 参考資料

「NEXTRAD」公式WEB サイト  
<https://nexttrad.jp/>

## その他 令和3年度に取り組んだ事業の概要

### 経常研究

#### ① 複雑形状陶磁器成形技術の開発(令和元年度～令和4年度)

事業デザイン課 副島 潔、江口 佳孝

中子を利用した袋形状生地 of 成型法について、前年度の研究でパラフィンワックスによる中子を利用した石膏型による圧力鋳込成型に成功したが、中子の離型と表面の気泡が問題であり、添加剤を利用することで改善がみられた。

#### ② 転写技術を用いた質感表現技法の研究(令和元年度～令和3年度)

事業デザイン課 松本 奈緒子

濃淡表現や厚盛のスクリーン印刷のための版加工方法について、加工条件をまとめた。また、濃淡のある実際のパターンデータを作成、印刷し、サンプルの作成を行った。技法の内容について、特許出願の準備を行っている。

#### ③ 異素材を組み合わせた食器外製品の研究(令和2年度～令和4年度)

事業デザイン課 江口 佳孝

異素材と陶磁器の接合方法、接着剤の調査を行い、主に木材について塗装方法等の調査を行った。木材との接合試作のためのサンプル製作において、CADによりデジタルの型データ作製を行った。また、エクステリア製品への展開のため研究会をとおり、アイテムの検証を行った。

#### ④ 上絵の耐アルカリ性に関する研究(令和3年度)

技術開発課 中溝 祐志

JIS S 2403「ボーンチャイナ製食器の洗浄に対する化学的耐久性試験」が制定されたことを踏まえ、当センターでも安定的に結果を得るための環境整備を行った。これにより従来の食器洗浄機を用いた耐アルカリ性試験に比べ、より簡便にかつ迅速に試験が行えるようになった。

#### ⑤ 高機能性光触媒シートの研究(令和3年度～令和5年度)

技術開発課 大竹 亜紗美

無機 EL を実際に作成し、単純な蛍光体が光ったことを確認した。一方で、エネルギーがより必要な色(紫、紫外)は確認できなかった。現在、有機 EL を専門とする大学の先生とのアドバイスをもらいながら、紫外線放射無機 EL の作製を行っている。酸化チタンの塗布については、無機 EL の進展が見え始めてから検討予定である。

## その他 令和3年度に取り組んだ事業の概要

### 共同研究

#### ⑥ SOFC 型ポータブル発電機用セルの開発(令和元年度～令和4年度)

古田 祥知子

技術開発課 釘島 裕洋、秋山 将人

県内事業者(1社)及び県外事業者(1社)と共同で、アウトドア電源、災害等非常時電源として有用な、ポータブル発電機に適した燃料電池セル開発を目指した。市販カセットボンベを燃料源として迅速な発電を可能にするためのセル構造の構築を目標に、電極及び電解質材料の選定、製造プロセスの検討とセルの試作・物性評価を行った。

#### ⑦ セラミックスを基材とした次世代二次電池の開発(令和3年度～令和5年度)

技術開発課 釘島 裕洋、志波 雄三

次世代二次電池として高性能な全固体リチウムイオン電池の開発が望まれているが、実用化のためには固体電解質のイオン導電率向上、電極活物質/固体電解質界面におけるイオン・電子輸送特性の改善などが必要とされている。本研究では、九州大学と共同で、優れた電池特性を有する酸化物系全固体二次電池の開発を目指した。イオン導電率向上のため、固体電解質粉末の調製条件について検討するとともに、得られた粉末を用いた焼結体の作製と評価を行った。検討の結果、相対密度90%以上の焼結体の作製が可能となり、 $10^{-4}$  S/cm オーダーのイオン導電率が得られた。

### 支援事業

#### ⑧ 現代の磁器製造工程における技術・技能の集積事業(令和3年度)

事業デザイン課 江口 佳孝

有田焼産地での分業化された業種の中には、後継者不在、就業者不足等により現世代で廃業を決めている事業者が現在も増えつつある。佐賀県内で消滅を危惧する業種も視られ、これらが有する技術・技能を継承することが困難になっている。

このことにより動画を伴う技術・技能資料の編纂が必要であり、令和3年度は、機械ろくろ内ゴテ成形用の型製作の資料の構築に取り組んだ。

佐賀県窯業技術センター  
令和3年度 研究報告書・支援事業報告書  
令和4年(2022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 : <https://www.scri.gr.jp/>  
印刷：株式会社 三光