陶石利用技術支援事業

泉山陶石を使った製品制作の支援と酸処理天草陶石の品質調査

志波 雄三、嘉村 翔太郎、蒲地 伸明 佐賀県窯業技術センター

有田磁石場組合が主催する「泉山酒器展」の支援を行った。泉山陶土の特性に合わせて素焼及び本焼温度を調整する必要があったため、前回の「一輪花入れ展」で支援した内容をもとに焼成支援を行った。また、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昨年度から引き続き行った。その結果、昨年度と同様に塩素濃度について酸処理陶石は無処理物よりやや高く、pH も酸処理陶石は酸性側であることが分かった。

Support for The Porcelain stone utilization

Support for production of products using Izumiyama porcelain stone and Investigation of the quality of amakusa acid-treated stone

SHIWA Yuzo, KAMURA Shotaro, KAMOCHI Nobuaki Saga Ceramics Research Laboratory

We supported "Izumiyama porcelain Sake cup exhibition" held by Arita zisekiba kumiai. As it was necessary to adjust the biscuit firing and firing temperatures based on the characteristics of Izumiyama clay, we supported the firing based on the support we had provided for the previous " a single-flower vase exhibition". A quality investigation of the current acid-treated porcelain stone was conducted from the previous year in order to contribute to future support for the utilization of Amakusa stone. The results showed that, as in the previous year, the chlorine concentration of acid-treated porcelain stone tended to be slightly higher than that of the untreated material, and the pH value was also acid side.

1. 泉山陶石を使った製品製作支援

1.1 支援の背景

泉山陶石は日本初の磁器原料として佐賀県有田町で発見された。元和年間以降長年にわたり利用されてきたが、明治以降は良質な天草陶石の利用が増え、現在は肥前地区で流通している陶土はほぼ天草陶石を原料としている。泉山陶石は現在、ほとんど流通していないが数年前より泉山陶石を用いた陶土を産地の「ブランド土」として見直す機運が業界で高まり、製品開発がなされている。2020年には、泉山陶石のみを原料とする陶土を用いた「一輪花入れ展」が開催され、当センターは製作支援を行ったり。今年度も有田磁石場組合の主催により2022年11月19~23日以下のような趣旨で「泉山酒器展」が開催された。

「今回は【酒器】をテーマに製作し、より身近な生活のなかの器として作品展示をしております。この企画展を通し、有田焼の発展に寄与してきた先人達の偉業をたたえるとともに、製作・展示を経て得られた知識や経験を生かし、さらなる付加価値として、ブランド士『泉山陶石』の開発を行い、未来の有田焼の可能性を追求する事を目的としております。」

当センターではこれまで泉山陶石の特性調査を行うとともに、泉山陶石を用いた製品の製作支援を行ってきた ¹ ~3)。泉山陶石は結晶相や化学組成などを天草陶石と比較すると若干の違いがあり、焼成においては業界で通例的に行われている天草陶土に最適化された操作では作品に欠陥を発生させる恐れがある。2019年3月は泉山磁石場に設置された陶板モニュメントについて圧力鋳込成形

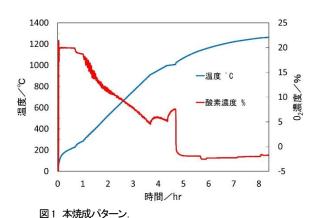
の支援 ⁴、2020 年の「一輪花入れ展」は素焼及び本焼成の支援を行った ¹⁾。本年度も有田磁石場組合より「泉山酒器展」への協力依頼があり支援を行った。

1.2 焼成支援

前回同様、泉山陶土を原料にした作品製作にあたり、当センターでは成形生地の素焼及び本焼成を行った。

泉山陶土生地は天草陶土生地よりかさ密度が低いため、 通常焼かれる天草生地の素焼温度の 900~950 ℃では 素焼強度不足が生じる恐れがある。そこで、焼成温度は、 既報 ¹にもとづき 1000 ℃ (昇温速度:100 ℃/hr)とした。

また、本焼成については、耐火度の低い泉山陶土を天草陶土と同じ 1300 ℃前後で焼成した場合、石英粒子の熔融が進み熱膨張が低くなるため、一般的な肥前地区の釉を用いると、貫入が生じる可能性がある。そこで、既報¹⁾を参考にして今回も通常より 30~40 ℃低い 1260~1270 ℃程度での本焼成を行った。実際の本焼成の温度・酸素濃度パターンを図1に示す。また、天草生地の焼成における還元焼成は900~950 ℃付近から移行するが、泉山陶土では、素地中に残留した硫黄成分が還元焼成開始時に煤を巻き込み易くなり本焼成後の素地が灰色となり易いため、1000 ℃に設定して還元焼成を行った。



1.3 作品展示会

有田町泉山の有田磁石場組合事務所において2022年 11月19~23日に開催された泉山酒器展の模様を図2及 び図3に示す。焼成された作品は変形や煤巻き込みの変 色等もなく良好な出来栄えであった。



図2 製品展示会のエントランス.



図3 展示場内概観

2. 酸処理天草陶石の品質調査

2.1 支援の背景

近年、天草陶石は採掘状況の悪化や採掘現場の人手不足から高品位陶石の入手が難しい状況が続いている。 天草特上陶土及び撰上陶土の安定した製造には、鉄分が少ない陶石が必要なため陶土製造業で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を目的に応じ配合することが行われている。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5されている化学処理法である。しかしながら、一時期、酸処理陶石の洗浄不足によると思われる陶土の性状変化が発生したことがあり、現在でも一部の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て、2017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6~8。

今後も肥前地区の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。本事業では昨年度(2021年)から酸処理陶石の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 の測定を実施している ⁹⁾。本年度もこれらの測定を実施したので、その結果について報告する。

2.2 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、現在流通している天草酸処理陶石を2022年12月にサンプリングして用いた。サンプリングしたのは皿山系の酸処理陶石と低火度酸処理陶石、海岸脈系の浜平酸処理陶石と木山酸処理陶石及び海岸脈系の共立マテリアル酸処理陶石と低火度酸処理陶石である。比較物の陶石として、酸処理を行っていない皿山系低火度4等陶石、海岸脈系の木山3等陶石及び共立マテリアル4等陶石を用いた。また、現在流通中の陶土として市販天草撰上陶土(細工用及び鋳込用)の性状も調べた。

2.3 調査項目

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)により測定した。化学組成は蛍光X線分析装置(Rigaku 製、ZSX PrimusII)を用い、ガラスビードによる検量線法で定量分析を行った。

また、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も行った。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、粒子径が1mm 以下になるまで粉砕し、粉砕粉末 30 g を測り採ってビーカーに入れ、300 g の蒸留水を加えて30 分間撹拌した後、一昼夜静置させて上澄み液を採取した。陶土についても粉末30 g 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200 mL 分取し、冷却高速遠心機(コクサン製、H-2000A2)により回転数10000 rpm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測定した。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。

2.4 天草酸処理陶石の性状結果について

表 1 に各原料上澄み液の塩素濃度及び pH の結果を示す。塩素濃度の比較用のサンプルとして当センターの水道水の結果も併せて示す。なお、一部昨年度(2021年)のデータ(イタリック体)も併記した。

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) | 昨年度 塩素濃度 (ppm) | рН | 昨年度 pH | |
|-------------|---------------|----------------------|-----|-----------|--|
| 皿山酸処理陶石 | 1.1 | 0.7 | 5.8 | 6.1 | |
| 皿山低火度酸処理陶石 | 0.7 | 0.7 | 6.3 | 6.4 | |
| 浜平酸処理陶石 | 2.0 | | 7.3 | | |
| 木山酸処理陶石 | 1.6 | 1.3 | 7.7 | 6.8 | |
| 共立酸処理陶石 | 1.7 | | 7.4 | | |
| 共立低火度酸処理 | 5.4 | | 6.7 | _ | |
| 皿山低火度 4 等陶石 | 0.9 | | 8.1 | | |
| 木山3等陶石 | 0.5 | | 8.1 | | |
| 共立4等陶石 | 0.5 | 0.2 | 7.2 | 7.8 | |
| 市販撰上陶土(細工用) | 1.9 | | 7.2 | | |
| 市販撰上陶土(鋳込用) | 0.7 | | 7.3 | | |
| 水道水 | 11.6 | 8.6 | 6.9 | | |

最も高い塩素濃度を示したのは今回も水道水で 11.6 ppm であった。各原料の値はこの値よりも低く 0.2~5.4 ppm であった。酸処理陶石では最も高かったのは共立マテリアル低火度酸処理陶石の 5.4 ppm であった。他は皿山低火度酸処理陶石を除いて 1~2 ppm の間で値を示した。酸処理無しの陶石の 3種はいずれも 1 ppm 未満の値であった。この傾向は昨年度と同等であった。陶土においても水道水よりも低い値ではあったが細工用で 1.9 ppm、鋳込用で 0.7 ppm とこれら 2種は多少値の開きがあった。昨年度同様、今回の調査分でも塩素濃度が極端に高い酸処理陶石はなく特徴的な傾向も見られなかった。いずれにしても水道水より低い濃度レベルで推移しており使用において問題はないが、今後も傾向を探るために一定期間ごとのサンプリング調査を継続していく予定である。

一方、酸処理した陶石のpHは5.8~7.7であり、無処理の陶石はややアルカリ性側の7.2~8.1 と昨年度と同様の傾向がみられた。現在市販されている陶土は7.2、7.3 と

| 表 2 原料陶石等の化学組成(mass%)及び耐火度. |
|-----------------------------|
|-----------------------------|

| 原料名 | LOI | SiO ₂ | Al ₂ O ₃ | Fe ₂ O ₃ | TiO ₂ | CaO | MgO | Na₂O | K₂O | 耐火度 | 昨年度 耐火度 |
|-------------|------|------------------|--------------------------------|--------------------------------|------------------|------|------|------|------|-------|------------|
| 皿山酸処理陶石 | 2.33 | 79.27 | 14.20 | 0.32 | 0.01 | 0.05 | 0.02 | 0.02 | 3.57 | SK20 | SK20⁻ |
| 皿山低火度酸処理陶石 | 2.51 | 78.50 | 14.70 | 0.37 | 0.01 | 0.04 | 0.03 | 0.46 | 3.20 | SK19⁺ | SK16⁺ |
| 浜平酸処理陶石 | 3.18 | 78.83 | 14.44 | 0.34 | 0.01 | 0.06 | 0.03 | 0.16 | 2.64 | SK20 | |
| 木山酸処理陶石 | 3.38 | 78.68 | 14.58 | 0.35 | 0.01 | 0.09 | 0.02 | 0.06 | 2.48 | SK20⁺ | SK20⁺ |
| 共立酸処理陶石 | 3.05 | 78.88 | 14.48 | 0.32 | 0.02 | 0.06 | 0.02 | 0.15 | 2.77 | SK19⁺ | |
| 共立低火度酸処理 | 2.58 | 77.97 | 14.75 | 0.28 | 0.02 | 0.03 | 0.03 | 0.87 | 3.31 | SK16 | |
| 市販撰上陶土(細工用) | 3.48 | 75.53 | 16.63 | 0.47 | 0.02 | 0.07 | 0.07 | 0.10 | 3.28 | SK27 | |
| 市販撰上陶土(鋳込用) | 4.25 | 73.53 | 18.17 | 0.48 | 0.01 | 0.08 | 0.04 | 0.11 | 3.00 | SK27 | |

ほぼ中性であった。

表 2 に酸処理陶石 6 種及び市販撰上陶土 2 種の化学組成値及び耐火度の結果を示す。低火度でない皿山酸処理陶石と木山酸処理陶石においては、耐火度が昨年度と同様 SK20 程度という結果であった。低火度でない酸処理陶石は耐火度が SK26 以上ではないかと業界では通常いわれているが、今年度もそれより低い耐火度であった。しかしながら、天草陶石性状データベース 10 に掲載されている陶石データによると、化学組成値で近いもので比較すると SK20 程度のデータもあり本データは特に問題ないと考えられる。

市販撰上陶土 2 種は SK27 と通常の耐火度であった。 これらの陶土は酸処理陶石を一定の割合で配合されているが、陶石から陶土へ精製した時点では問題ないレベルの耐火度になっている。

4. まとめ

今回の「泉山酒器展」の支援においては、2020年の「一輪花入れ」製作時に得られた泉山陶石の特性データをもとに、素焼及び本焼成の支援を行った。焼成についてはおおむね前回と同じ条件で問題なく対応することができた。今後も同様な案件については随時、支援していくことにしている。

また、天草陶石の利用技術の支援に資することを目的に、昨年度同様、現状の酸処理陶石の性状の調査を行った。その結果、酸処理陶石の塩素濃度は1ppm以下程度の無処理陶石よりもおおむね高く、それにともないpHも

5.8~7.7 程度と酸性側にシフトする傾向は昨年度とほぼ 同様である事が明らかとなった。現在流通している市販陶 土の特性は特に異常なく、現時点において、酸処理陶石 の塩素濃度及び pH のこのような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。しかし、今後も 定期的に調査を行い、陶石、陶土の性状の変化に注視し ながら、引き続き業界への支援を行っていく予定である。

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、並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

- 蒲地伸明,佐賀県窯業技術センター令和2年度研 究報告書・支援事業報告書,18-22(2021).
- 2) 寺﨑信,蒲地伸明,白石敦則,川原昭彦,釘島裕洋, 佐賀県窯業技術センター平成20年度研究報告書, 84-88(2009).
- 3) 寺﨑信, 蒲地伸明, 吉田秀治, 佐賀県窯業技術センター平成23年度研究報告書, 16-22 (2012).
- 4) 藤靖之,蒲地伸明,鮎川祐太,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, 23-25(2019).
- 5) 林文雄, 永田正典, セラミックス 14, No.4, 333-338 (1979).

- 6) 志波雄三, 寺﨑信, 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).
- 7) 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).
- 8) 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).
- 9) 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 3 年度研究報告書・支援事業報告書, 42-46 (2022).
- 10) 木村邦夫, 天草陶石の性状/データベース, 2016 年3月.

http://www.kumin.ne.jp/vsi/pspdb/.(参照 2023-03-31).