

— 経常研究 —

低温焼成磁器の量産化製造技術開発に関する研究

陶磁器科 河野将明・吉田英樹・山口英次
小林孝幸・兼石哲也

要 約

天草陶石を採掘の際に天草低火度陶石も採掘され、その大部分は未利用のまま鉱山に放置されている。この低火度陶石は耐火度が低いことや鉄分を多く含むことから、これまで陶磁器原料として用いられなかった。本研究では、低火度陶石や長石やカオリン、粘土を配合した低温焼成用陶土の成形性について、鑄込み成形、機械ろくろ成形、ローラーマシン成形、圧力鑄込み成形により比較検討した。それぞれの試作したアイテムにおいて、割れ、歪み、垂れなどの欠点もなく、それぞれの成形歩留まりはほぼ100%であった。呉須の発色は、釉薬が溶け始めるとともに発色し始め1200℃焼成では明瞭に発色した。また、下絵具の発色試験においても1200℃で十分に発色することが認められた。

キーワード：低温焼成陶土、成形性、1200℃焼成、呉須・下絵具の発色

1. はじめに

近年、陶磁器産業は市場規模の縮小、海外窯業原料の価格上昇、安価な外国製品の輸入などに加え、石油価格の高騰により生産コストが増大している。このため、原材料費や燃料費などの生産コスト低減のための技術開発が陶磁器業界から求められている。これらを解決する手段として、陶石採掘場に放置されている天草低火度陶石の活用による原料費の低減が考えられる。さらには従来よりも低い温度(1300℃→1200℃)による焼成を実現することで、燃料費の低減および二酸化炭素排出量を抑制し、環境にやさしい陶磁器の製造が行われることが期待できる。このような取り組みを三県の公設試験研究機関(長崎県、佐賀県、熊本県)で共同研究を行っている。

本研究の目的は、低温で陶磁器の生産が可能な製造技術を確認することである。そのためには、低温焼成温度に適した陶土および釉薬原料の配合を検討し、成形、加飾等のそれぞれの要素技術を構築しなければならない。これは、従来よりも焼成温度が100℃下がることで陶磁器製造過程やその製品に及ぼす影響、たとえば、素地の磁器化、釉薬の適合性および熔融性等、呉須や下絵具の発色など従来の焼成温度では満たされてきたことが、どのように変化

するのか基礎データを把握する必要がある。本研究では、成形技術の検討(各成形手法による歩留まりや成形性の評価)、陶土に適合する釉薬配合の検討、加飾(下絵具の評価)の検討を行った。

2. 実 験

2.1 焼成による吸水率・鉱物相の変化

低温焼成用陶土¹⁾は陶土メーカーで作製したものをを用いた。この陶土を適量秤量し、L字型に成形したものを試料として用いた。焼成はガス炉(内容積0.1m³)で行い、所定の温度(800~1250℃)で試料を取り出した。吸水率はJIS R2205-1992に準拠した。鉱物相は粉末X線回折装置にて同定した。

2.2 成形技術の検討

成形は、排泥鑄込み成形、圧力鑄込み成形、機械ろくろ成形、ローラーマシン成形について検討した。各成形は、生地メーカーの製造現場でそれぞれのメーカーが保有している型を利用して成形を実施し、試作品を作製した。このとき、陶土の硬さは成形法に応じて調節した。

表1 釉薬の組成

釉薬A：0.26KNaO	0.74RO ^{*)}	0.36Al ₂ O ₃	4.02SiO ₂
釉薬B：0.24KNaO	0.76RO ^{*)}	0.32Al ₂ O ₃	2.80SiO ₂

*) RO:アルカリ土類金属酸化物

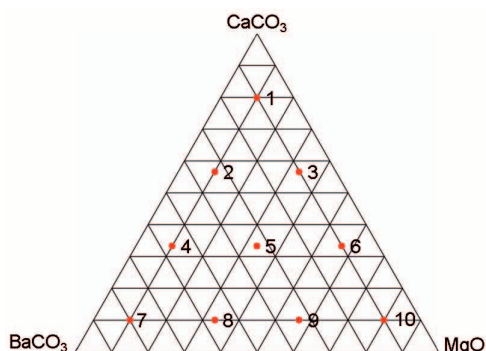


図1 CaCO₃-BaCO₃-MgO系におけるRO成分の割合

2.3 低温焼成用釉薬の開発

釉薬原料は、長石、カオリン、石灰、タルク、珪石、酸化マグネシウム、炭酸バリウムを用いて表1に示す組成になるように調合した。このとき、アルカリ土類金属酸化物(RO)は図1の割合で変化させた。調合した釉薬の熔融状態は、焼成温度1200℃でポタン試験により評価した。

3. 結果と考察

3.1 各焼成温度における低温焼成陶土の吸水率および鉱物相の変化

各温度でガス炉より抜き出した試料の吸水率の変化と鉱物相の変化をそれぞれ図2、表2に示す。

800～950℃の焼成温度域の吸水率は、20%以上であった。950℃以上の焼成温度では吸水率は急激に減少し始め、1150℃でほぼ0%となった。

鉱物相は、焼成温度950℃域までは用いた原料に由来するセリサイト、長石類、石英であった。950℃以上では、セリサイトのXRDピークは消滅し、長石類のピーク強度は弱くなり、この鉱物は1150℃で消失した。また、この温度域から新たにムライト相の生成が認められた。これらのことから焼成温度の増加により、用いた原料が各焼成温度で相転移、固相反応、固液反応などをともないながら、1200℃の温度域で安定なムライト相へ鉱物相が変化し磁器化したものと考えられる。

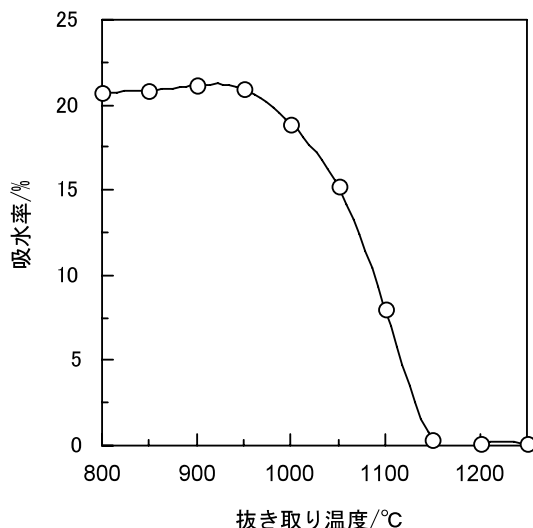


図2 各焼成温度における吸水率の変化

表2 各焼成温度における鉱物組成の変化

焼成温度/℃	同定された鉱物相		
800	セリサイト	長石類	石英
1050	長石類	石英	ムライト
1100	長石類	石英	ムライト
1150		石英	ムライト
>1200		石英	ムライト

3.2 成形方法の検討

各成形方法により試作したアイテムの外観写真と成形現場における成形性の評価を表3に示す。

各成形方法を検討した結果、低温焼成用陶土の成形性は、天草陶土よりも陶土の粘りが少ないこと、鑄込み用泥漿の調製において、水分量が従来よりも多く必要であった。4つの成形方法で作製した試作品の成形歩留まりはほぼ100%であった。試作するアイテムに応じて陶土の水分量や硬さなどの微調整は必要であるが、成成品の型離れも良いこと、また、成形乾燥後の割れ、歪みも見られなかった。

3.2 釉薬・加飾技術等の検討

3.2.1 低温焼成用釉薬の開発

釉薬A、Bの熔融状態の外観写真を図3に示す。低温焼成用釉薬を調合し1200℃で焼成した結果、どちらの釉薬もRO成分を変化させたとき、図3に示す熔融状態のなかで5番が良好であった。

表3 各成形法により試作したアイテムと成形性の評価











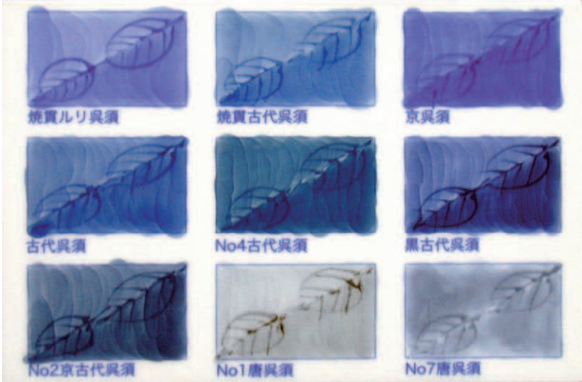
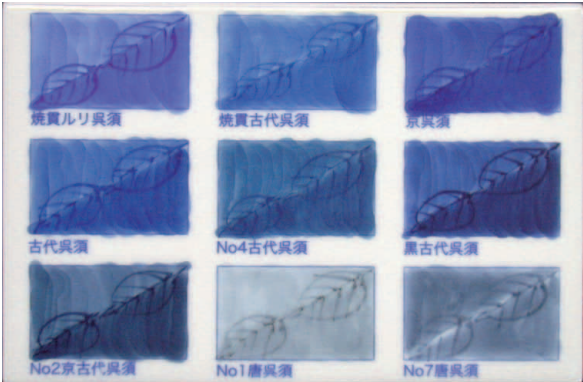
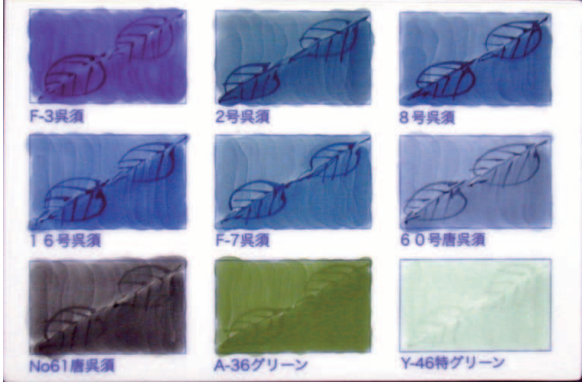
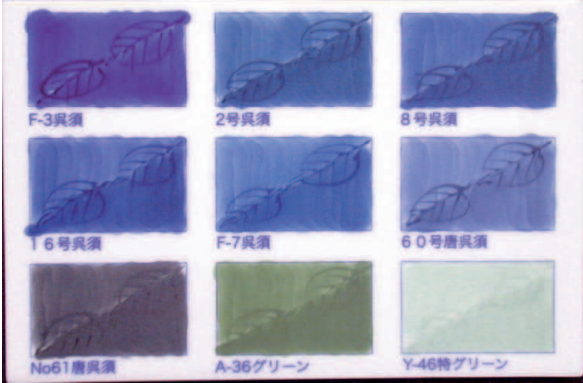
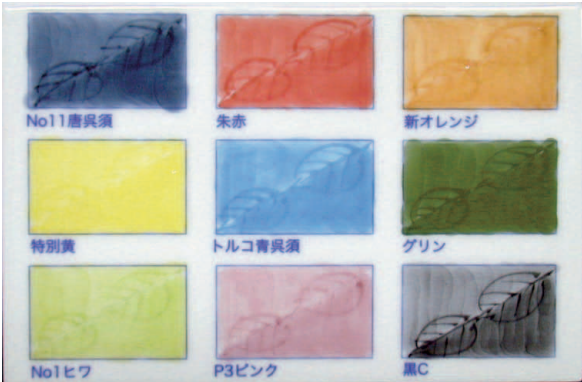

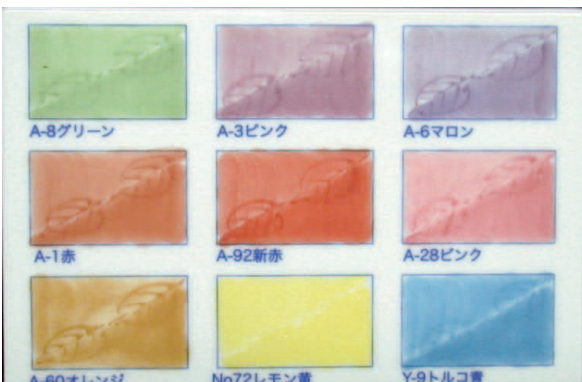
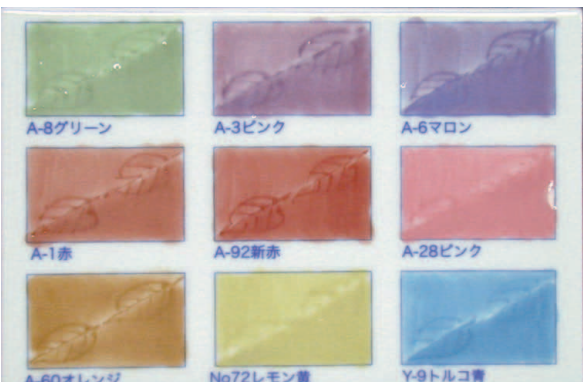
成形方法	アイテムの外観写真		評価	
排泥鑄込み	急須（上面と側面） 		<ul style="list-style-type: none"> ・泥漿水分：約 32% （天草選中陶土では約 30%） ・着肉時間：約 18 分 （天草選中陶土では約 15 分） 	
圧力鑄込み成形	ハケ目 6 寸皿 	グラタン皿 	<ul style="list-style-type: none"> ・天草陶土と同等 	
機械ロクロ成形	外ゴテ	茶付け 	7 寸皿 	<ul style="list-style-type: none"> ・天草陶土より柔らかい ・粘りが少し足りない
	内ゴテ	平鉢なぶり 	湯飲み 	<ul style="list-style-type: none"> ・天草陶土と同等
ローラーマシン成形	外ゴテ	3 寸, 5 寸キキョウ縁平皿 		<ul style="list-style-type: none"> ・天草陶土と同等 ・陶土の伸びはよい
	内ゴテ	茶付け 	湯飲み 	

表4 天草選中素地と低温焼成用素地による下絵具の発色写真

天草選中素地(1300℃還元焼成)	低温焼成素地(1200℃還元焼成)
 <p>焼貫ルリ呉須 焼貫古代呉須 京呉須 古代呉須 No4古代呉須 黒古代呉須 No2京古代呉須 No1唐呉須 No7唐呉須</p>	 <p>焼貫ルリ呉須 焼貫古代呉須 京呉須 古代呉須 No4古代呉須 黒古代呉須 No2京古代呉須 No1唐呉須 No7唐呉須</p>
 <p>F-3呉須 2号呉須 8号呉須 16号呉須 F-7呉須 60号唐呉須 No61唐呉須 A-36グリーン Y-46特グリーン</p>	 <p>F-3呉須 2号呉須 8号呉須 16号呉須 F-7呉須 60号唐呉須 No61唐呉須 A-36グリーン Y-46特グリーン</p>
 <p>No11唐呉須 朱赤 新オレンジ 特別黄 トルコ青呉須 グリーン No1ヒワ P3ピンク 黒C</p>	 <p>No11唐呉須 朱赤 新オレンジ 特別黄 トルコ青呉須 グリーン No1ヒワ P3ピンク 黒C</p>
 <p>A-8グリーン A-3ピンク A-6マロン A-1赤 A-92新赤 A-28ピンク A-60オレンジ No72レモン黄 Y-9トルコ青</p>	 <p>A-8グリーン A-3ピンク A-6マロン A-1赤 A-92新赤 A-28ピンク A-60オレンジ No72レモン黄 Y-9トルコ青</p>

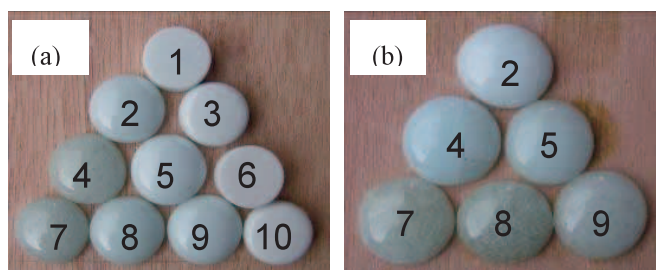


図3 (a)釉薬Aと(b)釉薬Bの熔融状態の外観写真ボタン試験結果

その釉薬を低温焼成用釉薬として選定した。

次に、選定した釉薬(A-5およびB-5)が低温焼成用素地との適合性を検討するため熱膨張測定を行った。釉薬A、Bと低温焼成用素地の650℃における熱膨張係数はそれぞれ 7.12×10^{-6} 、 7.03×10^{-6} 、 6.97×10^{-6} ¹⁾とその差は小さかった。このことから貫入あるいはシバリングのようなそれぞれの熱膨張差に起因する欠点は起こりにくいと判断された。

3.2.2 下絵具の評価

市販下絵具による線画とダミによる濃淡を低温焼成用素地と天草選中素地上に描いた。これに天草選中陶土は市販石灰釉を、低温焼成用陶土には、上述の釉薬Bを用いて、それぞれ1300℃、1200℃で還元焼成を行い、目視による発色状態を評価した(表4)。

天草選中素地と低温焼成用素地上に下絵付したものを比較すると、低温焼成用素地上では、呉須系の色の発色は、ほぼ問題なかったが、他の色の発色は

鮮やかさ、透明感に劣るものも見られた。また、釉薬の表面に、いくつか気泡がはじけたような欠点が見られた。しかし、従来の焼成温度より100℃下げても色合いに大きな差は見られなかったため、下絵具は市販のもので十分に対応できると思われる。

4. まとめ

低温焼成用素地は従来の天草陶土と同様にいずれの成形方法においても試作品を成形することができた。従来よりも100℃低い1200℃までの種々の温度で焼成した素地の吸水率の変化から1150℃以上の温度で低温焼成陶土は磁器化することが明らかとなった。1200℃に適應する釉薬についてスクリーニングを実施し、素地との熱膨張差が小さい釉薬組成を2種類見いだした。さらに加飾技術では、呉須の発色も明瞭であり、下絵の具は1200℃でも発色することが認められた。

謝 辞

本研究を遂行するに当たり、成形性の評価は、長崎県陶磁器生地工業協同組合（馬場正明代表理事）にご協力を賜った。各成形法を担当して戴いた組合員の方々に、ここに記して感謝する。

文 献

- 1) 寺崎 信, 佐賀県窯業技術センター研究報告, 44(2001).