

— 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

陶磁器産業を取り巻く環境の課題として、原料の枯渇化や焼成にかかる消費燃料の負担の増大、さらには安価な海外製品の流入等がある。これらの課題を解決するために、未利用の天草低火度陶石を活用した陶土を用いて、焼成温度を通常の1300℃から100℃低温の1200℃で焼成が可能な磁器の量産化製造技術の開発を目指した。低温焼成用の釉薬は、石灰釉を基礎釉としながらアルカリ成分を変化させる方法で行い目標とする熔融状態と表面光沢を兼ね備え持ち、素地との熱膨張係数もよく適合した釉薬を開発した。

各種成形法により成形した試作品は開発釉を施釉しローラーハースキルンで焼成した。そのキルンの焼成条件（昇温過程、投入時間等）を検討し、1200℃設定で試作品（総数90個）を焼成したとき、焼成歩留まりは88%であった。

上絵具の発色も最適な発色温度で焼成することで鮮やかに発色し、剥離や縮みもなく、開発釉と十分に適合した。

キーワード：天草低火度陶石、低温焼成、1200℃焼成磁器、ローラーハースキルン、上絵具の発色

1. はじめに

近年、陶磁器産業は市場規模の縮小、安価な外国製品の輸入に加え、不安定な石油価格による生産コストの増大などにより経営環境が厳しくなっている。このため、原材料費や燃料費などの生産コストの低減のための技術開発が陶磁器産業界から求められている。現在、陶石採掘場に放置されている天草低火度陶石を活用することにより原料費の低減が可能となる。さらには従来よりも低い焼成温度（1300℃→1200℃）による製品化は、二酸化炭素排出量を抑制することにつながり、環境に適した陶磁器が得られることが期待できる。このような取り組みを三県（長崎県、佐賀県、熊本県）の公設試験研究機関において共同研究を実施した。

長崎県では、低温焼成磁器の量産化製造技術の確立をH19-20年度で目指した。H20年度では、低温焼成に適した陶土に適合する釉薬原料の配合について検討し、焼成、加飾等のそれぞれの要素技術を構築した。通常よりも焼成温度が100℃下がることで焼成炉の焼成条件や下絵具の発色など従来の焼成炉で焼成可能であるか、また、低温焼成素地に上絵具で加色したときの焼成温度は従来の上絵具焼成温度で適切かどうか、窯元が保有する炉ではどのように変化するのかなど基

礎データを把握する必要がある。本研究では、1200℃焼成に適合する低温焼成釉薬の開発、種々の炉による焼成試験、加飾技術（上絵具の発色試験）を実施したので報告する。

2. 実験方法

2.1 低温焼成素地用釉薬の開発

低温焼成陶土¹⁾に適合する釉薬の開発を行った。

図1に示す化学組成をゼーゲル式に変換し、原料を配合した後、それぞれ適切な粒径になるまでボールミルで湿式粉碎した。施釉試験、ボタン試験及び熱膨張測定用に水分調整した後、施釉試験用はL型試験板に施釉し、ボタン試験用は直径20mmの円板上にプレス成形した。熱膨張測定用は円柱状成形体を作製した。なお、ボタン試験体は、直径および高さ、さらに円板からドーム型への変形状態により、釉薬の溶け具合を確認した。これらをシャトルキルン（均熱容積0.1m³）により、還元雰囲気下、焼成温度1200℃で焼成を行った。熱膨張測定試料は、直径5mm、長さ20mmに加工し熱膨張測定を行った。施釉試験体については外観観察を行い、ボタン試験体は熔融状態を観察した。

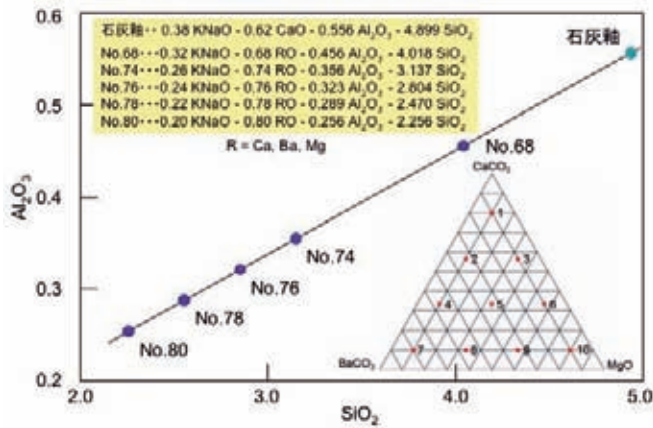


図1 配合を示すグラフ

2.2 焼成技術の検討

焼成は、窯元が保有するシャトルキルン、ローラーハースキルンにより行った。ローラーハースキルンの焼成温度を1200℃に設定し、焼成時間は4.5-5.5時間で焼成を行い、焼成条件を検討した。

2.3 加飾技術の検討（上絵具の発色試験）

低温焼成陶土および天草撰中陶土を用いて、板状(11cm×16.5cm)に鑄込み成形し、これを780℃、950℃で焼成し、素焼き試料を得た。低温焼成試料に既述の低温焼成釉を、また、天草撰上焼成試料には石灰釉を施し、1200℃及び1300℃で還元焼成を行った。このようにして得たそれぞれの焼成試料に無鉛上絵具を塗布し800℃で焼成を行い上絵具の発色状態を観察した。

3. 結果と考察

3.1 低温焼成素地用釉薬の開発

No.68の釉薬を用いた施釉試験およびボタン試験結果を図2に示す。

図2(a)に示すMgO、CaCO₃、BaCO₃の配合割合により、釉薬の熔融状態が異なることがわかった。図2(b)に示すL字型試料に呉須で線を引き施釉したものは、MgOが多いほど溶けが悪く、透明感がなかった。この表面状態とよく対応して呉須の発色も良くなかった。CaCO₃含有量の増加にともない溶け具合が改善され、BaCO₃含有量が増加するとさらに溶けが良くなり、透明感と表面光沢の向上が見られた。これは、他の配合グループについても同様の傾向であった。L字型試料の施釉試験と同様に釉薬そのものでボタン試験の結果を図2(c)に示す。MgO含有量が最も多い配合ではボタンが焼き締まる程度で溶けはほとんど見られなかった。

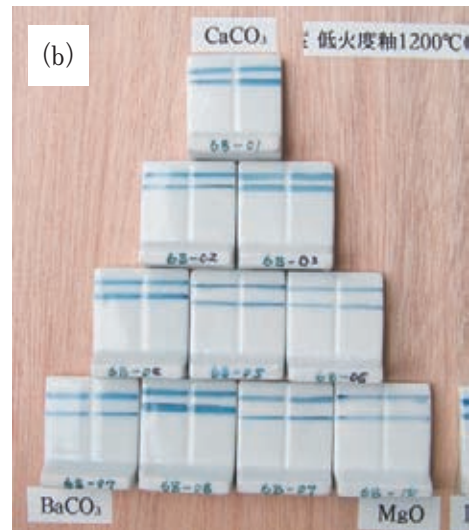
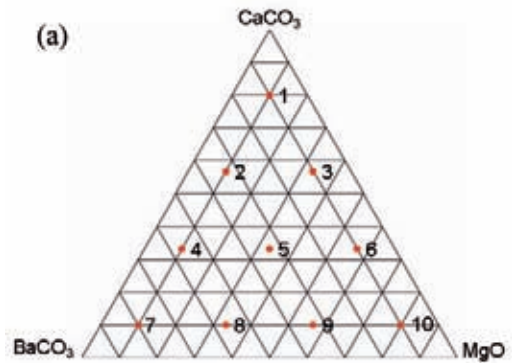


図2 アルカリ土類金属成分の割合(a)とNo.68で配合した施釉試験(b)およびボタン試験(c)の結果

CaCO₃含有量の増加に伴い円板の角が丸くなり、BaCO₃含有量が増加すると溶けが良くなり、ドーム型に変形することがわかった。ボタン試験で確認された熔融状態は、施釉試験結果とよく対応している。他の配合グループについても同様の傾向を示したが、ゼーゲル式でアルカリ、アルカリ土類成分が多くなるほどより溶けが促進していた。種々の配合で図2(b,c)と同様に釉薬試験を行った。

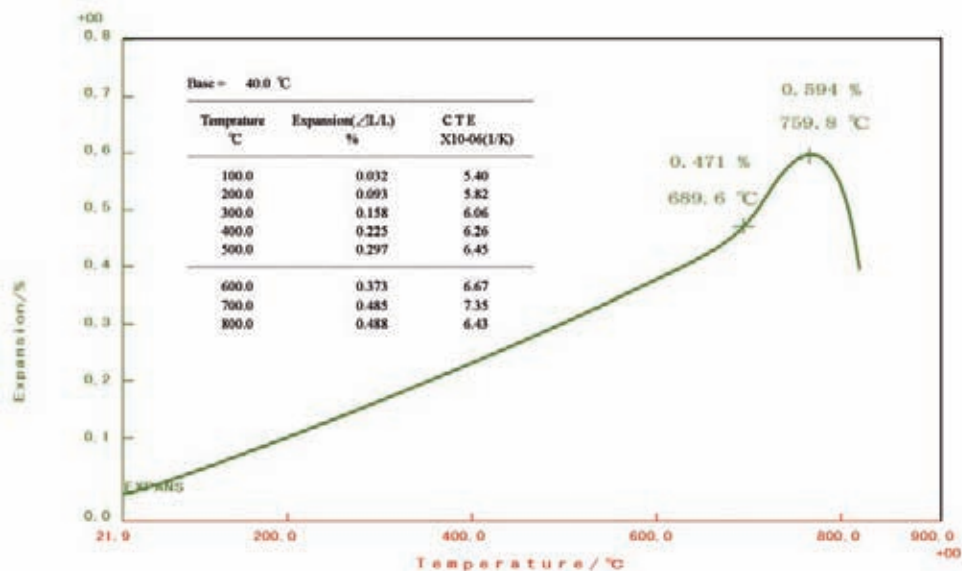


図3 No. 74-6の熱膨張測定結果

釉薬の熱膨張の一例としてNo.74-6で調合し得られた試料の結果を図3に示す。

図より、No. 74-6の40～600℃における熱膨張係数は $7.20 \times 10^{-6} \text{K}^{-1}$ であることがわかった。他の釉組成についても同様に解析し、代表的な釉組成の熱膨張係数を図4に示す。図1に示される配合割合により熱膨張係数は変化した。

施釉試験、ボタン試験および熱膨張係数の結果から最も低温焼成素地に最も適合する釉薬について検討した。1200℃焼成で十分に熔融し、釉表面に光沢があり、かつ低温焼成素地よりも $1.0 \times 10^{-6} \text{K}^{-1}$ 低いという条件から総合的に判断し、No. 76-5の釉組成を選定した。

上記釉薬を調製し、低温焼成陶土で作製した素焼製品に施釉して、焼成温度1200℃、還元雰囲気下でシャトルキルン(均熱容積0.1m³)で試験焼成をした。焼成後得られた試作品は、貫入やシバリングといった熱膨張係数の不整合による不良は見られず、表面光沢があり、溶け具合も問題なく、通常の1300℃焼成と比較して遜色がなかったことを確認した。

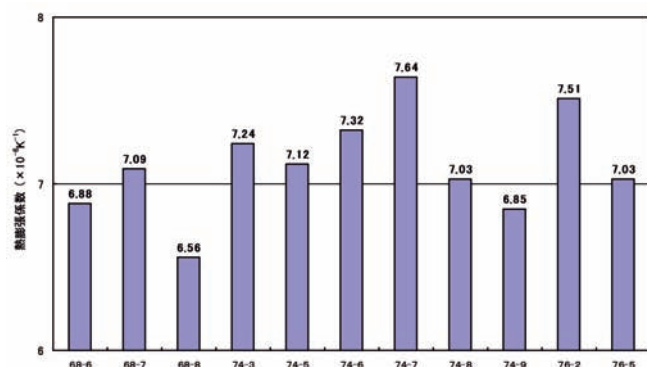


図4 釉薬および低温焼成素地の熱膨張係数

3.2 焼成技術の検討

3.2.1 ローラーハースキルンを利用した焼成の最適化

量産製造するための基礎データを得るために、窯元の協力を得てローラーハースキルンで焼成を行った。アイテムとして、湯飲み(2種)、茶付け(2種)、なぶり平鉢、刷毛目平鉢、3寸皿、7寸皿、グラタン皿(総数90個)を選び焼成した。ローラーハースキルンにおける焼成試験の様子を図5に示す。

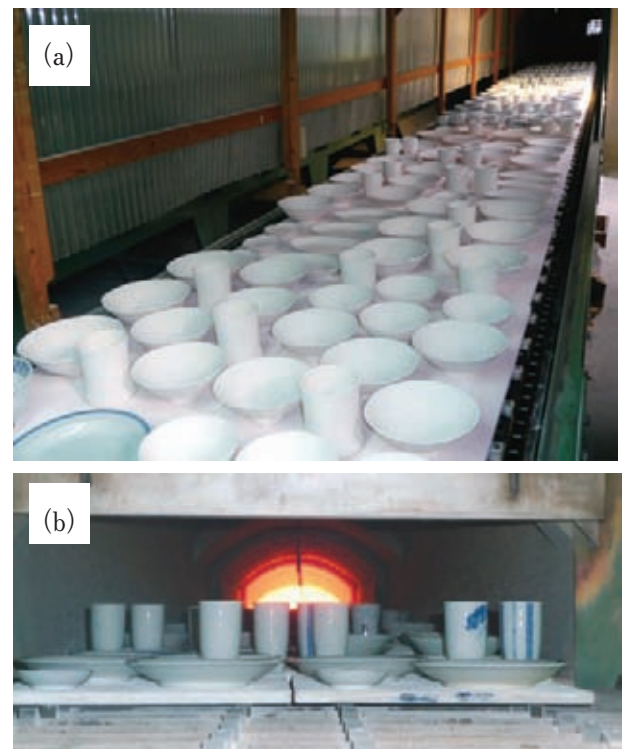


図5 ローラーハースキルンにおける実証試験 (a)焼成前の様子、(b)窯出し直後の試作品

今回使用したローラーハースキルンは、常用1300℃で焼成を行っている。この温度状態から、1200℃に温度を設定し、温度制御モニター値が1200℃を示してからキルンに試作品を投入した。試作品を載せた棚板には、熱履歴センサー（リファサーモ）を設置し焼成温度をチェックしたところ実際の焼成温度は1250℃であることがわかった。炉内表示温度が1200℃を示しても、炉内は蓄熱されており、炉内温度が均一に実際に1200℃になるまで、しばらく時間を置く必要があることを意味する。

室温から1200℃まで昇温し、その温度が表示されてすぐに試作品を投入したとき、焼成後の試作品の色は肌色であった。この陶土を酸化雰囲気および還元雰囲気で焼成すると肌色、白色であることから得られた試作品の焼成雰囲気は酸化雰囲気であったと考えられる。この結果から次に、室温から1200℃に到達後、30分、1時間と時間が経過した後、試作品を投入した。このとき得られた焼成後の試作品は白色であった。このことから所定の温度に達した直後に製品を投入するのではなく、1200℃に到達後、少なくとも30分以上経過した後に製品を投入し焼成する必要があることがわかった。

焼成温度1200℃、還元雰囲気下で焼成した試作品について、焼成工程に由来する欠点、変形、亀裂、貫入、呉須のにじみなどを目視で検査した。この検査から試作品の焼成歩留まりは88%であった（目標：80%）。この焼成による目視検査結果を表1に、欠点の一例の写真を図7に示す。

一般食器の焼成歩留まりを80%としたとき、これ以下の結果を△とした(表1)。この基準値は、亀裂や変形が起こりやすい形状や肉薄形状に取り組んだためこの数値を目標とした。これらの形状による欠点は従来の1300℃焼成でも起こる欠点であり、1200℃焼成をしたときにも考えられる問題であると考えた。

焼成歩留まりが80%を下回った試作品の欠点は変形が多かった。特に歩留まりが良くなかった肉薄形状の湯飲みの欠点は歪みで、真上から見ると真円になっていなかった(図7(a))。また、この湯飲みは、縁に棚板の表面が付着していたことから、水平な棚板を使用し、湯飲みの下に台座(ハマ)を敷いて焼成することで歩留まりは改善されると思われる。高台の高い茶付け(図7(b))の欠点は、変形が主であった。この欠点も肉薄形状と同様の改善で歩留まりを向上させることができるとされる。7寸皿(図7(c))に見られた欠点は、変形や切れであった。変形は焼成に由来するものであるが、切れは、

成形時の仕上げを十分に時間をかけることで改善できると考えている。

表1 各アイテムの目視結果

成形法	アイテム	歩留まり(%)	結果 ^{a)}
圧力鋳込み	グラタン皿	100	○
	刷毛目 ^{b)} 平鉢	100	○
機械ロクロ	湯飲み(肉厚)	100	○
	なぶり ^{c)} 平鉢	100	○
ローラーマシン	3寸皿	100	○
機械ロクロ	7寸皿	70	△
	茶付け	80	○
ローラーマシン	湯飲み(肉薄)	50	△
	高台の高い茶付け	90	○

a)結果：一般食器の歩留まり80%以上を○、それ以下を△として結果表示
 b)刷毛目：加飾方法の一つで刷毛で塗ったような跡のこと
 c)なぶり：手や指を押し当て形を変えること

図6 焼成後における試作品に見られた欠点の一例



(a)湯飲みの変形（真円になっていない(右側)）



(b)水平な台に置いたとき、変形のため隙間がみられる



(c)変形のため、重ねると縁の間隔が一定でない

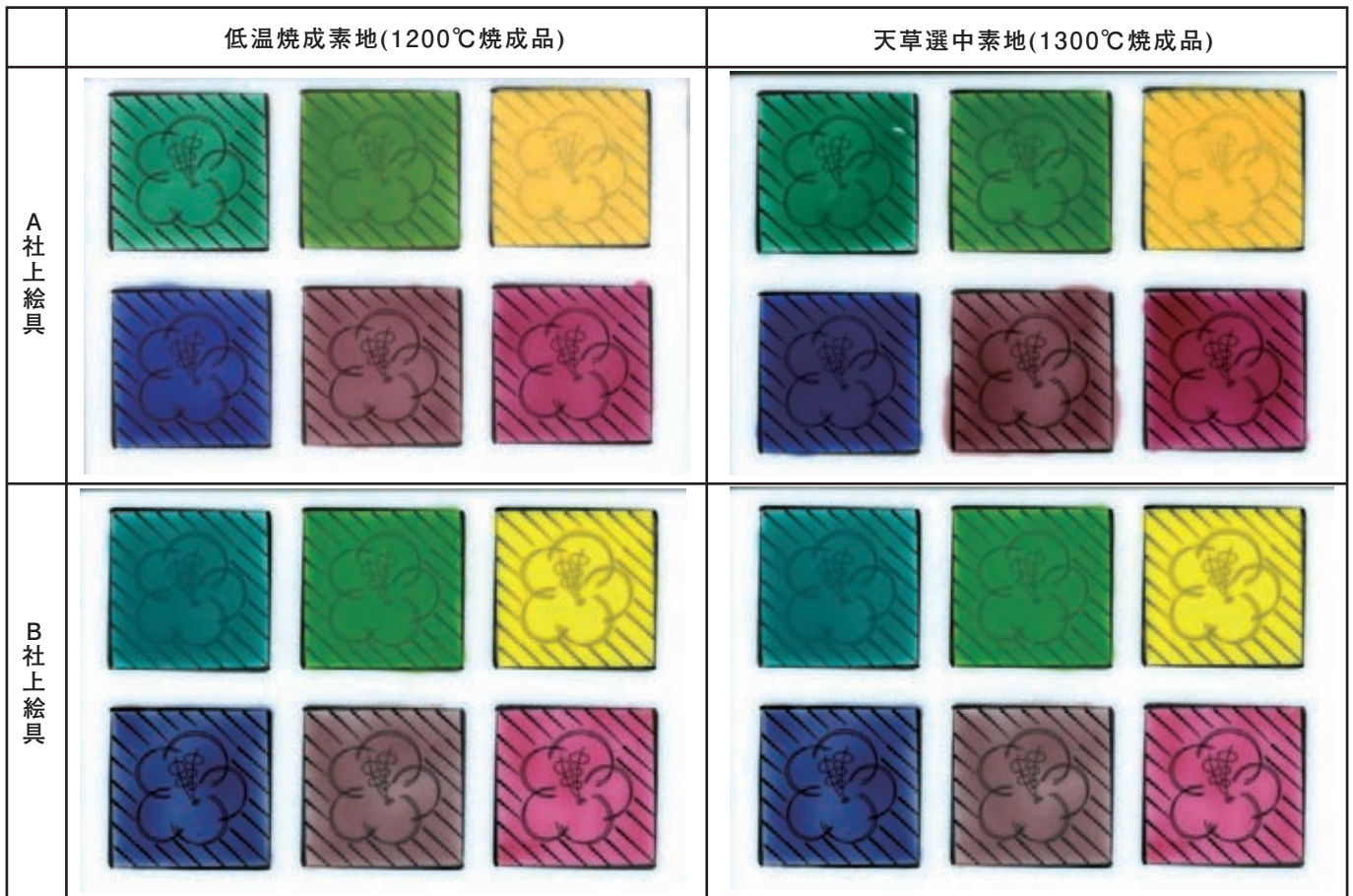


図7 低温焼成素地と天草撰中素地における上絵具の発色試験の結果

3.3 加飾技術の検討: 上絵具の発色試験

低温焼成素地および天草選中素地での上絵具の発色の様子を図7に示す。

素地上の上絵具の発色状態は、各色とも鮮やかに発色しており、色の濁りや上絵具の溶け残りは見られなかった。このことから市販の上絵具を施釉した低温焼成素地に加飾しても剥離や縮れも見られず釉薬との適合性は問題なく、十分に発色を確認した。

4. まとめ

低温焼成釉薬の開発では、用いた原料に加えてアルカリ土類金属含有原料の割合を変えることで釉薬の熔け具合や表面光沢に優れた釉薬が得られた。また、素地と釉薬の熱膨張係数の差を考慮することで素地に適合する釉薬を開発することができた。

低温焼成磁器の量産・普及のために、ローラーハー

スキルンによる試験を実施し、量産化への可能性を検討したところ、焼成温度1200℃に設定する条件、キルンに投入する時間等の焼成条件を見いだすことができた。焼成試験における最適な条件下での焼成歩留まりは88%であった。

素地に開発した釉薬を施釉し上絵具を描いたところ、筆の伸びも従来と変わらず、鮮やかな発色を示した。

文 献

- 1) 寺崎 信、平成13年度佐賀県窯業技術センター研究報告、44(2001)

謝 辞

試作品の焼成を行うにあたり、快く焼成炉を提供して頂きました波佐見町内の窯元にお世話になりました。この場を借りて厚く御礼申し上げます。