

## 環境配慮型陶磁器製造技術に関する研究

吉田 博和\* 南部比呂美\* 仁平 敬治\*

### 1. はじめに

省エネルギーや二酸化炭素排出量の抑制が求められている中、陶磁器製造業界でも他の産業分野と同様に低環境負荷型の製造技術開発が取り組むべき課題となっている。茨城県内の陶磁器業界においても、製造工程で発生する焼き損じの再利用に取り組む陶芸家有志のグループ「かさましこ再生土の会」の活動等、環境配慮型食器への関心や意識が高まっている。これらを踏まえ、本研究ではリサイクル原料として廃陶磁器と廃ガラスを利用し、一般的な笠間焼の焼成温度である1250℃前後より100℃程度低い1150℃で焼成可能な素地及び、これに適した釉薬の開発を目指す。これにより、「環境配慮」をキーワードとした笠間焼の新たな展開に繋げていきたいと考えている。

### 2. 目的

今年度は1150℃焼成用素地の目標値を設定するために、笠間産粘土（素地）だけでなく他産地の素地も含めて当産地で多用されている素地の物性を把握するための試験を行った。また、笠間産粘土に廃ガラスのみを配合することによる素地物性への影響を検討した。更には、1150℃で使用可能な釉薬を開発するための基礎的な研究も行ったので併せて報告する。

### 3. 研究内容

#### 3.1 市販素地の物性把握

笠間焼協同組合で販売されており、当産地の窯元にも多用される笠間産粘土や他産地素地について、乾燥収縮率・焼成収縮率・全体収縮率、煮沸吸水率、曲げ強度を測定し、開発する素地の目標値を設定した。なお、試験片の焼成は電気炉による酸化焼成で最高温度まで100℃/hで昇温し、1時間保持した後、自然冷却した。最高温度について、1100℃から1300℃まで20℃間隔で11条件で試験した。

#### 3.2 素地配合試験

笠間産粘土に廃陶磁器と廃ガラス粉の粉碎物を同時に配合して1150℃焼成が可能な素地を開発する予定であるが、今年度は廃ガラス（以下、ガラス粉）のみを配合した素地の収縮率、煮沸吸水率、曲げ強度を検討した。ここで笠間産粘土とは、笠間単味または笠間土（いずれも笠間焼協同組合より購入）を指し、笠間土は笠間単味に他産地の陶土を配合したものである。ガラス粉は0, 5, 10, 15%（乾燥重量比、内割）配合した。表1に用いた原料の蛍光X線（FP法）による元素分析値を示す。ガラス粉W, Bの元素組成はほぼ同一であったが、平均粒径はそれぞれ42, 32μmであった。焼成は3.1と同様に行ったが、最高温度は1110℃から1190℃までの20℃間隔で5条件とした。

表1 素地配合試験に用いた原料の元素組成（%）

	笠間土	笠間単味	ガラス粉W	ガラス粉B
LOI	6.7	6.7	0.4	0.4
SiO <sub>2</sub>	65.6	63.1	72.5	70.9
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	20.8	21.0	1.9	2.2
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.0	4.5	0.2	0.5
TiO <sub>2</sub>	0.6	0.7	-	tr.
CaO	0.4	0.5	8.9	9.2
MgO	0.3	0.4	4.5	4.7
K <sub>2</sub> O	1.9	1.8	0.7	0.8
Na <sub>2</sub> O	0.7	1.3	10.7	11.1

#### 3.3 釉薬組成の検討

表2に示す通り、1250℃焼成に使用されている一般的な石灰釉をベースとして熔融作用の強いB<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を導入し、0.06~0.25B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>と変化させて1150℃で熔融するにはどの程度のB<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が必要か検討を行った。なお、B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>源としてはAフリット（草葉化学製）を用いた。試験に用いた釉薬原料の元素組成を表3に示す。釉薬原料粉末を合計100g計量し、水80~90gとともに遊星回転ボールミルで3分間混合・磨砕し、この泥漿を素焼素地にディッピング法で施釉した。焼成は3.1と同様に行ったが、最高温度は1130, 1150, 1170℃の3条件で行なった。

表2 試験した釉薬のゼーゲル式

0.2KNaO	0.2~0.4Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.0~4.0SiO <sub>2</sub>
0.8CaO	0.06~0.25B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	

表3 釉薬配合試験に用いた原料の元素組成（%）

	釜戸長石	鼠石灰	蛙目粘土	珪石	Aフリット
LOI	0.2	43.2	13.8	0.04	-
SiO <sub>2</sub>	77.2	0.5	48.4	99.6	44.4
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	13.1	tr.	33.3	0.1	0.1
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.1	tr.	1.5	tr.	-
CaO	0.7	55.9	0.2	-	12.2
MgO	-	0.7	0.3	-	-
K <sub>2</sub> O	5.4	-	1.1	-	-
Na <sub>2</sub> O	3.3	-	0.1	-	13.4
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	-	-	29.9

\*材料技術部門

3.4 素地物性試験の方法

3.4.1 収縮率（乾燥・焼成・全体）

3.1, 3.2 における練り土を石膏型により、125mm×25mm×10mm 程度の板状の試験体を成型した。石膏型からの脱型直後にノギスで100mmの印をつけ、室温で乾燥した後のこの印の長さを乾燥長（mm）、各焼成温度での焼成後の長さを焼成長（mm）として、下記の式から乾燥・焼成・全体のそれぞれの収縮率（%）を算出した。

$$\text{乾燥収縮率} = \frac{100 - \text{乾燥長}}{100} \times 100$$

$$\text{焼成収縮率} = \frac{\text{乾燥長} - \text{焼成長}}{\text{乾燥長}} \times 100$$

$$\text{全体収縮率} = \frac{100 - \text{焼成長}}{100} \times 100$$

3.4.2 煮沸吸水率

収縮率の測定に用いた試験体を3時間以上煮沸吸水させて冷却した後、表面の水分を拭き取り測定した重量を吸水重量（g）とした。これを105℃の乾燥機内で一昼夜乾燥した時の重量を乾燥重量（g）として、下記の式から煮沸吸水率（%）を算出した。

$$\text{煮沸吸水率} = \frac{\text{吸水重量} - \text{乾燥重量}}{\text{乾燥重量}} \times 100$$

3.4.3 曲げ強度

曲げ試験用の試験片は、収縮率と煮沸吸水率を測定したものとは別に、金型を用いて加圧成形した。まず練り土を80mm×30mm×12mm程度に加工し、金型に入れ成形圧20kgf/cm<sup>2</sup>程度で成形した後、乾燥、焼成した試験片を試験に供した。

3点曲げ試験の条件は、支点間距離を45mm、荷重ロール径を10mmφ、荷重速度を2mm/minとした。偏荷重を防止するために試験片と荷重ロールの間にはゴム板を挟んだ。曲げ強度（MPa）は、破壊荷重（N）、試験片の幅（mm）、試験片の厚み（mm）により下記の式から算出した。

$$\text{曲げ強度} = \frac{3 \times \text{破壊荷重} \times 45}{2 \times \text{試験片幅} \times \text{試験片厚}^2}$$

4. 研究結果と考察

4.1 市販素地の物性と開発目標

市販素地のそれぞれの収縮率の結果を表4, 5, 6に示す。笠間単味は乾燥収縮率8.5%、当産地の焼成温度帯付近である1240~1260℃での焼成収縮率と全収縮率がそれぞれ7.1~7.5%、15.0~15.3%といずれも他産地の素地に比べて大きな値を示した。本研究では、収縮率についての目標値は特に設定しないが、これと同等程度か低い値の方が望ましいと考えている。

表7には煮沸吸水率の結果を示す。笠間単味につい

ては、1240~1280℃で0.3~0.6%と低い値を示し、よく焼き締まっていることが分かるが、1300℃では過焼による「ぶく」に起因する吸水率の上昇が見られた。他産地の素地でありながらも当産地で多用されている特漉は、1240℃で5.4%を示すなど、全体的に焼き締まりが弱い素地であることが分かった。

曲げ強度の結果は表8に示す。笠間単味、笠間土ともに当産地の標準的な焼成温度帯付近（1220~1280℃）で30MPa前後を示し、半磁器には若干劣るものの他産地の素地に遜色のない数値を示した。しかし、笠間単味における1300℃焼成では「ぶく」による強度低下が顕著に表れた。

以上の結果を踏まえ、1150℃焼成における目標値を設定した。吸水率は5%以下、曲げ強度は30MPa以上とする。また、リサイクル原料（ガラス粉、廃陶磁器）を配合することで可塑性（成形性）が下がることが予想されるが、当産地の特徴の一つである「手作りによるロクロ成型」に対応できる可塑性を持った素地を開発する必要がある。更には、目標温度である1150℃付近で素地性状が安定していること、つまり焼成温度幅が広い方が扱いやすいことは明らかであり、できるだけ焼成温度幅を広い素地を開発する必要がある。

表4 市販素地の乾燥収縮率（%）

笠間単味	8.5
笠間土	6.3
赤福	5.5
半磁器	5.0
特漉	6.0
並漉	5.9

表5 市販素地の焼成収縮率（%）

	笠間単味	笠間土	赤福	半磁器	特漉	並漉
1100℃	6.1	4.1	3.2	3.7	4.4	3.7
1120℃	6.3	4.5	4.0	4.0	4.8	4.1
1140℃	6.3	4.6	4.3	4.4	4.9	4.8
1160℃	6.6	5.1	4.4	5.0	5.0	5.2
1180℃	6.6	5.6	4.5	5.5	5.9	5.2
1200℃	6.8	5.9	5.0	5.6	6.1	5.4
1220℃	6.9	6.0	5.1	6.3	6.5	5.6
1240℃	7.1	6.3	5.7	6.4	6.6	5.9
1260℃	7.5	6.9	5.9	6.7	6.9	6.4
1280℃	6.2	6.6	6.2	6.8	7.1	6.9
1300℃	5.7	6.0	5.9	6.8	7.3	7.4

表6 市販素地の全体収縮率 (%)

	笠間 単味	笠間 土	赤福	半磁器	特漣	並漣
1100℃	14.1	10.1	8.5	8.6	10.1	9.4
1120℃	14.3	10.5	9.3	8.8	10.5	9.8
1140℃	14.3	10.6	9.6	9.2	10.6	10.5
1160℃	14.5	11.1	9.7	9.8	10.7	10.8
1180℃	14.5	11.5	9.8	10.2	11.5	10.8
1200℃	14.7	11.8	10.3	10.4	11.7	11.0
1220℃	14.8	11.9	10.4	11.0	12.1	11.2
1240℃	15.0	12.1	10.9	11.2	12.2	11.4
1260℃	15.3	12.7	11.1	11.4	12.5	11.9
1280℃	14.1	12.4	11.4	11.5	12.7	12.4
1300℃	13.7	11.9	11.1	11.5	12.8	12.9

表7 市販素地の煮沸吸水率 (%)

	笠間 単味	笠間 土	赤福	半磁器	特漣	並漣
1100℃	8.7	10.6	11.8	9.4	13.3	11.7
1120℃	7.9	9.7	10.7	8.5	12.8	10.8
1140℃	6.9	8.6	9.8	7.4	11.5	9.8
1160℃	6.4	7.7	9.1	6.4	11.2	9.0
1180℃	5.9	7.1	8.5	5.3	10.3	8.0
1200℃	4.7	6.0	7.3	3.5	9.1	6.2
1220℃	3.4	4.7	6.4	1.9	6.8	4.5
1240℃	0.6	3.1	5.2	1.0	5.4	3.4
1260℃	0.3	0.9	4.0	0.7	3.8	2.4
1280℃	0.6	0.5	1.7	0.5	3.1	2.6
1300℃	3.7	0.5	0.7	0.4	1.2	1.7

表8 市販素地の曲げ強度 (MPa)

	笠間 単味	笠間 土	赤福	半磁器	特漣	並漣
1100℃	26.4	23.1	20.5	27.1	23.6	24.6
1120℃	26.8	25.2	20.9	27.5	23.9	24.9
1140℃	27.0	25.7	23.5	28.4	24.0	25.7
1160℃	28.1	26.7	24.3	29.9	24.4	26.0
1180℃	29.0	27.1	24.6	31.2	25.6	26.1
1200℃	29.6	27.7	26.2	32.8	27.1	26.6
1220℃	29.9	28.3	27.5	33.0	27.8	27.7
1240℃	30.7	29.7	27.7	33.3	28.7	28.2
1260℃	31.6	32.2	29.3	34.6	29.1	28.5
1280℃	31.4	32.9	32.8	35.0	29.8	29.3
1300℃	25.1	31.7	31.8	34.2	30.9	31.9

## 4.2 素地配合試験

図1に笠間土をベースとしてガラス粉Wを配合した場合の焼成収縮率の結果を示す。この場合、ガラス粉Wの配合比が0, 5, 10%においては、ガラス粉Wの増加とともに同じ焼成温度での焼成収縮率が大きくなり、ガラス粉Wの寄与により素地の焼結が促進されることが分かる。ただし、ガラス粉Wの配合比が15%の場合はガラス粉が過剰となり、1170℃以上は過焼に起因する収縮率の低下を示している。ガラス粉Bを配合した場合も同様の挙動を示しており、笠間土にガラス粉W, Bの様なソーダ石灰ガラスを配合する場合は、15%では過剰であることが分かった。

図2には、笠間土をベースとしてガラス粉Wを配合した場合の煮沸吸水率の結果を示す。ガラス粉Wの配合比が0, 5, 10%の場合は、焼成温度が高くなる程またガラス粉W配合比が高くなる程、吸水率が低下し、素地の焼結が進んでいくことが分かる。しかし、ガラス粉Wを15%配合すると1150℃までは吸水率が下がり、1170℃でも1%以下を維持するものの、1190℃では「ぶく」によって吸水しやすくなるため急激な上昇を示した。煮沸吸水率の結果からもガラス粉15%以上は過剰であることが示された。1150℃焼成で吸水率5%以下という目標に対しては、ガラス粉W5%の場合は十分に焼結を促進できず、目標は達成できていない。ガラス粉Wを10%配合したのもでも5.4%と目標値を達成できなかったものの、目標に近い数値を示すことが分かった。しかしながら、いずれの場合もグラフの傾きが大きいことを見ても分かる通り、1130~1170℃での吸水率の差が大きいこと、これを小さくすることが今後の重要な課題である。なお、笠間単味をベースとした場合もほぼ同様の挙動を示したが、ガラス粉を15%配合した場合は、1150℃で吸水率が1%以下まで低下したが、笠間土ベースの場合よりも低い1170℃で吸水率の急上昇が見られた。つまり、過焼による「ぶく」について笠間単味の方が低温で発生することが分かった。これはベースとした素地である笠間単味の方が笠間土より焼結が進みやすいことを反映した結果である。

図3には、笠間土をベースとしてガラス粉Wを配合した場合の曲げ強度 (MPa) の結果を示す。ガラス粉W配合比が10%までは、焼成温度の上昇やガラス粉配合比の増加に伴い曲げ強度が大きくなった。ガラス粉W10%配合では1130℃から1190℃の範囲で目標値30MPaを上回った。しかし、15%配合したものでは、目標である1150℃焼成で30MPa以上の強度を示したものの、1130℃よりも若干ながら強度が低下しているだけでなく1170℃では著しい強度低下が見られた。曲げ強度からもガラス粉は15%では過剰であり、10%程度までが適当と判断できる。

今後、ガラス粉と同時に廃陶磁器を笠間産粘土に加えた素地の物性を検討する予定であるが、ガラス粉添加量を10%程度として、曲げ強度30MPa以上を維持しながら、1150℃周辺での吸水率を全体的に下げる事と、1130~1170℃での吸水率の差を出来るだけ小さくする様に配合調整を進める。

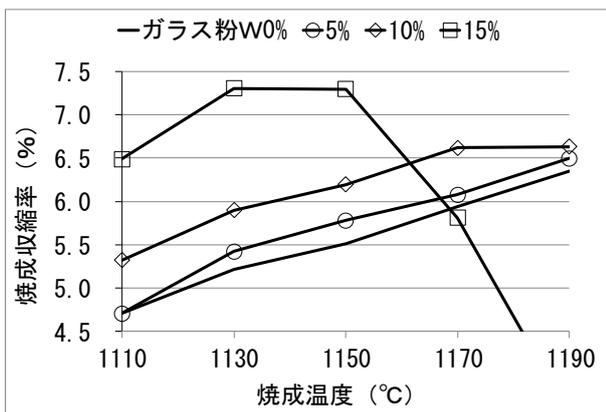


図1 笠間土+ガラス粉Wの焼成収縮率

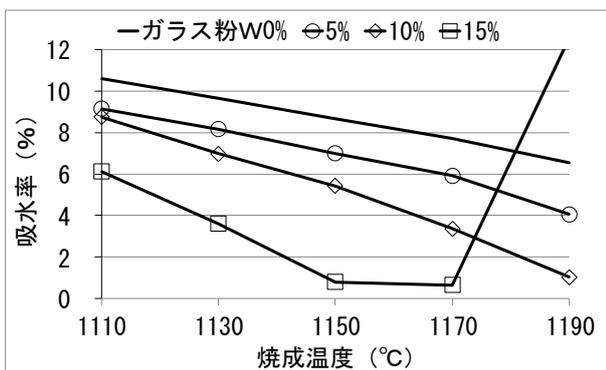


図2 笠間土+ガラス粉Wの吸水率

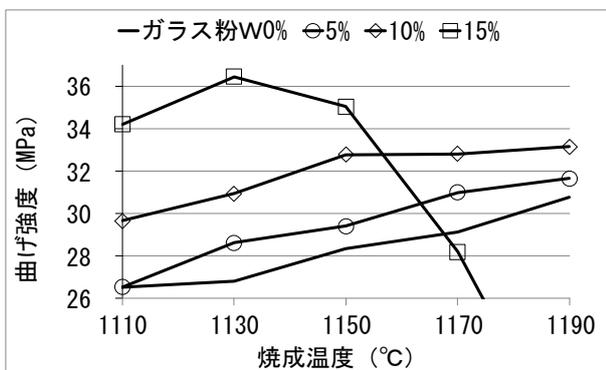


図3 笠間土+ガラス粉Wの曲げ強度

### 4.3 釉薬組成の検討

3.3 に示した釉薬試験片の目視による釉性状を図4に示す。表2のゼーゲル式において  $B_2O_3$  のモル比が0.06の場合、ほとんどの試験片が熱量不足による不溶性のマット調であった。0.12 $B_2O_3$ の場合は1130°Cで明らかに溶融不足であったが、1150°C以上では溶融が進み全体的に乳濁感のある釉調を示した。0.18 $B_2O_3$ の場合は、1130°Cでも溶融し全温度帯の広い範囲で乳濁調の釉が得られた。ただし、今回実験を行ったゼーゲル式のアルカリ成分の系（石灰釉；0.2KNaO/0.8CaO）では、0.06~0.18 $B_2O_3$ の範囲で十分な透明感のある良い透明釉を得られないことが分かった。 $B_2O_3$ を0.20モルとした場合は、釉層の厚みによる影響も大きいと考えられるものの、わずかに乳濁の見られる透明釉が多く見られた。0.25 $B_2O_3$ の場合では、透明釉領域が広くなり、0.30 $Al_2O_3/2.0\sim 2.5SiO_2$ 周辺で透明感・光沢感と

もに良好な透明釉が得られた。また、0.40 $Al_2O_3/2.0SiO_2$ の1点で外観上は使用に耐えうるマット釉を得ることができた。更に、これらは1130~1170°Cの範囲で釉調が大きく異なることもなく、外見上は1150±20°Cの温度幅で使用可能であると考えられる。ただし、素地と釉薬の熱膨張の差が大きいことに起因する貫入の発生も多く試験片で見られた。今後は釉薬の溶解性、発色だけでなく、熱膨張係数の素地との適合も意識した開発を進める必要があると考えている。

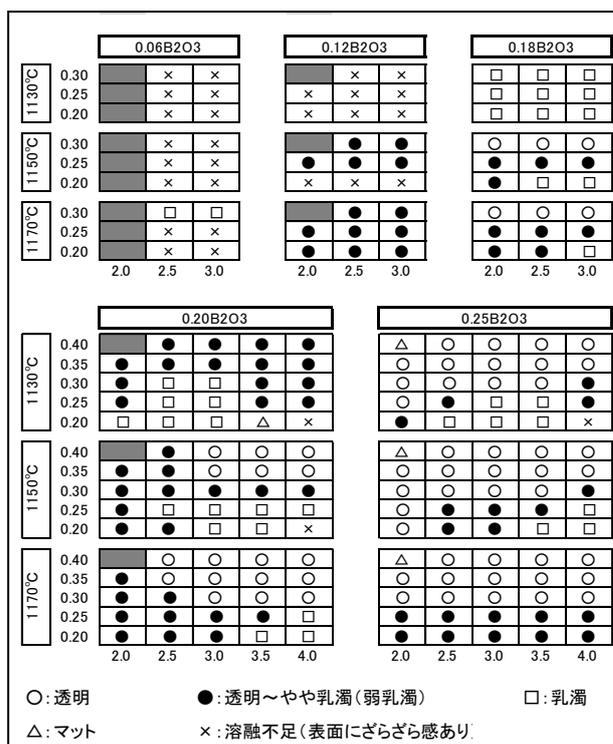


図4 釉薬の性状

### 5. まとめ

笠間地域独自の低温焼結技術を開発するため、笠間産粘土にガラス粉（ソーダ石灰ガラス）を配合した素地について物性試験を行い、ガラス粉を10%程度配合することにより1150°C酸化焼成で吸水率5%以下、曲げ強度30MPa以上という目標値に近づけられることが分かった。しかし、特に煮沸吸水率の観点から焼成温度幅が狭い等の課題も残った。

一般的な石灰釉に $B_2O_3$ を導入し、1150°C焼成可能な釉薬の基礎的な実験を行った。1150±20°C焼成における溶解性について有用な知見を得た。

### 6. 今後の課題

笠間産粘土をベースとしてガラス粉と廃陶磁器を同時に添加し、ろくろ成形に耐えうる可塑性を持ちながら、吸水率と曲げ強度の目標値を達成する素地を開発する。

釉薬開発については、釉調の制御に注目した試験のみを行ったに過ぎない。今後は、素地との相性（釉薬と素地との熱膨張率の差、施釉素地の曲げ強度、釉薬の発色等）も検討しながら、当産地で多用されている鉄釉を中心に釉薬の幅を広げる予定である。