

# 京都陶磁器業界における坏土課題に対する原料調製の研究

窯業系チーム 田口 肇, 鈴木 芳直, 岡崎 友紀,  
荒川 裕也, 稲田 博文, 高石 大吾

## 要 旨

現在、全国的に窯業原料に関する枯渇化や供給の停止、品質の不安定化等が問題となっている。京都陶磁器業界でも例外ではなく、原料である陶土の製造企業が廃業する事態が起きている。地域における持続可能な陶磁器製造に向け、原料の確保と品質管理は重要課題となっていることから、地場で使用されている坏土の基礎データならびに代替に向けた技術の構築は必要不可欠と言える。

今回我々は、廃業した企業の陶土について、化学成分分析を行い、その結果を基に入手可能な粘土原料を選定し、長石や珪石を加え、試作坏土の検討を行った。試作坏土の評価については、前報で報告した物性値を基に比較を行い、廃業した企業の坏土に近い物性値を得ることができた。また、釉薬との適合性を確認するため、市販の透明釉との適合性評価を行った結果、剥離や縮れといった欠陥も認められず、良好な結果を得ることができ、代替品となりうる試作坏土の作製と基礎データの構築ができた。

## 1. 緒言

現在、全国的に窯業原料に関する枯渇化や供給の停止、品質の不安定化等が問題となっている中、京都業界でも、陶土の製造企業が廃業する事態となった。持続可能な製造に向け、原料の確保と品質管理は重要課題となっていることから、地場で使用されている坏土の基礎データならびに代替に向けた技術の構築は必要不可欠と言える。

そこで、前報<sup>1)</sup>において、京都業界で長く使用されながらも廃業した企業の陶土について、基礎物性を測定し、今後の坏土設計における基礎データの構築を行った。

今回は、坏土設計として、入手可能な粘土原料の分析を行い、その結果を基に、長石や珪石を加えた試作坏土の検討を行った。

試作坏土の評価として、寸法特性、曲げ強さ、熱膨張特性について比較検討を行った。

さらに、釉薬との適合性を確認するため、市販の透明な石灰釉との適合性についても検討を行った。

## 2. 実験方法

### 2.1 坏土設計について

廃業した企業の陶土の内、廃業前の陶土（以下現行品）については、市販釉等の適合性において剥離等の問題が生じていたことから、30年前に業界で使用されていた陶土（上信楽土）を参考坏土（以下過去品）とし、成分分析等を行った。これらの坏土の成分分析値を基にノルム計

算により求めた粘土、長石、珪石の各成分の割合を参考に、入手可能な粘土原料として蛙目粘土を中心に分析を行い、長石や珪石の配合が可能な原料を選定し、坏土設計を行った。

今回使用した蛙目粘土の化学分析値とノルム計算の結果を表1-1と表1-2に示す。なお、原料の化学分析およびノルム計算については、前報と同様の方法により行った<sup>1)</sup>。

表1-1 蛙目粘土の化学成分値

		化学分析値 (単位: mass%)								
		SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	CaO	MgO	TiO <sub>2</sub>	lg-loss
一級	原蛙目粘土	50.00	32.70	1.33	1.11	0.33	0.22	0.18	0.87	11.70

表1-2 ノルム計算による成分割合

粘土成分	長石成分	珪石成分
81.0	11.0	8.0

過去品の成分割合を基に、蛙目粘土に福島長石と珪石を添加し、試作坏土を調製した。

その配合表を表2に示す。

表2のA, B, Cの3種類の試料について、各原料を総量2kgになるよう調製し、水1.6kgと玉石2kgを加え、ポットミルにて、1時間混合粉砕した。得られた坏土の泥漿を成形可能な状態まで水分を除去し、坏土とした。

表2 設計した坯土の成分割合と原料の配合割合

試料名	設計した成分割合			実際の原料配合		
	粘土成分	長石成分	珪石成分	一級原蛙目	福島長石	珪石
A	40	15	45	49	10	41
B	48	15	37	59	8	32
C	55	15	30	68	8	25
参考坯土	過去品	51	16	33	—	—
	現行品	45	11	44	—	—

得られた試作坯土について、表3に示す焼成パターンにより酸化雰囲気による焼成を行い、前報と同様の方法により、寸法特性、曲げ強さ、熱膨張特性について測定を行い、過去品と現行品との比較を行った。

表3 焼成パターン

ステップ	温度	時間
1	室温 ~ 1000℃	10時間
2	1000℃ ~ 1000℃	1時間
3	1000℃ ~ 1200℃	3時間
4	1200℃ ~ 1200℃	1時間
5	1200℃ ~ 1220℃	1時間
6	1220℃ ~ 1220℃	15分

## 2.2 寸法特性について

前報と同様の方法により、四角錐台の試験体を作製し、ノギスで50mmの印を入れたのち、焼成後における長さを測定した。得られた長さから式(1)による全収縮率を求めた。

$$\text{全収縮率} = \frac{50 - \text{焼成後の長さ}}{50} \times 100 \quad \dots\dots (1)$$

## 2.3 曲げ強さについて

曲げ強さは、前報と同様の方法により12mmφ×120mmの試験体を作製し、(株)島津製作所製オートグラフAG-Xplusを用い、スパン50mm、荷重速度0.5mm/min、3点曲げ法により測定した。

## 2.4 熱膨張特性について

熱膨張測定は、試験体を直径約5mmφ、長さ約20mmの円柱状に作製し、(株)リガク製TMA8310により昇温速度10℃/minで700℃まで測定した。得られた熱膨張率より熱膨張係数を算出した。

## 2.5 市販釉薬との適合性について

試作坯土と釉薬の適合性を評価するため、市販の透明釉である日本陶料(株)製土灰釉と3号釉及び、各釉薬にマグネサイト原料を15%添加した艶消し釉を800℃で素焼きした試作坯土に施釉し、図1に示す焼成条件により焼成を行い、剥離や縮れ等について目視による評価を行った。

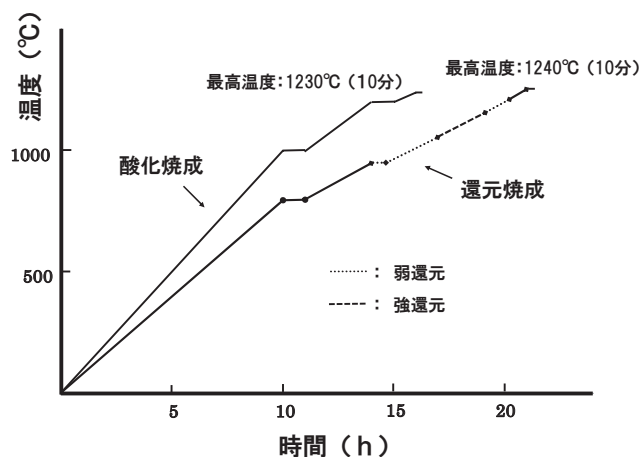


図1 焼成パターン

## 3. 実験結果と考察

### 3.1 寸法特性、曲げ強度、熱膨張特性について

試作坯土及び過去品と現行品における全収縮率に関する結果を図2に、曲げ強さに関する結果を図3にそれぞれ示す。また、室温から700℃までの熱膨張係数の値を表4に、熱膨張曲線を図4に示す。

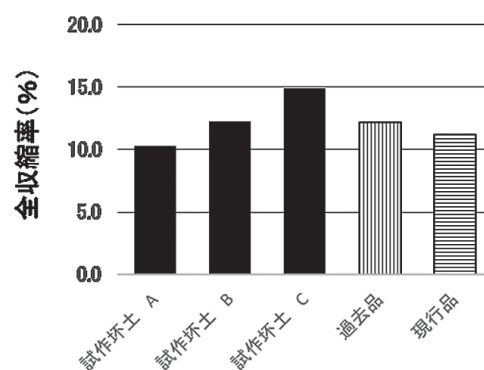


図2 各坯土の全収縮率の比較

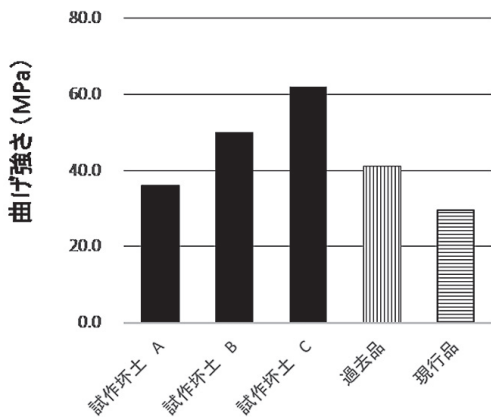


図3 各坏土の曲げ強さの比較

表4 各坏土における熱膨張係数

(単位:  $\times 10^{-6}$ )

試作坏土			過去品	現行品
A	B	C		
6.9	5.9	5.6	5.1	7.5

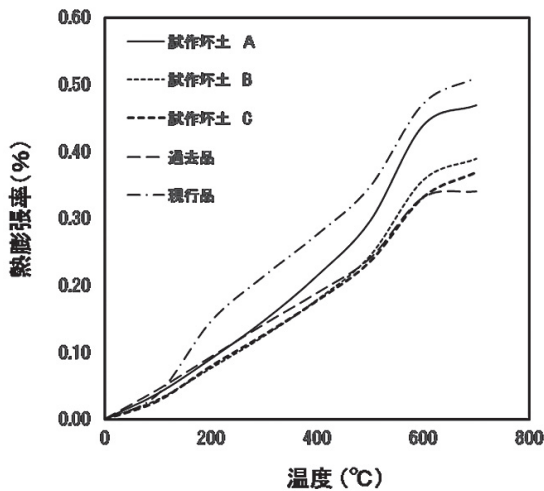


図4 各坏土の熱膨張曲線

寸法特性については、目標とする過去品との全収縮率を比較した場合、試作坏土Bにおいて近似した結果を得ることができた。

試作坏土で比較検討した場合、粘土成分の割合が多く、珪石成分の割合が少なくなるに従い、全体収縮率が大きくなる傾向を示した。長石成分が一定の条件のもと、珪石成分も少ない事から、熔融に伴う収縮への影響は少ないと考えられるため、粘土成分による乾燥での収縮が大きく寄与しているものと推察される。

曲げ強さについては試作坏土AとBにおいて過去品に

近似した値を得ることができ、実用強度を有していることが確認できた。

試作坏土で比較検討した場合、全体収縮率の結果同様、粘土成分の割合が多く、珪石成分の割合が少なくなるに従い、曲げ強度は増大する傾向を示した。これは、粘土成分に含まれるカオリナイト ( $Al_2O_3 \cdot 2SiO_2 \cdot 2H_2O$ ) の加熱変化に伴うムライト ( $3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$ ) の生成が、粘土成分の増加に従い、その量も多く生成することに原因があると推察される。

表4より、熱膨張係数については試作坏土BとCにおいてそれぞれ近似した値を得ることができた。

図4より、試作坏土A, B, Cにおいては、現行品に見られる200°C付近のクリストバライトの $\alpha/\beta$ 転移による急激な熱膨張率の変化もなく、過去品と近い熱膨張曲線が得られた。なお、全ての坏土に共通して見られる600°C付近の急激な熱膨張率の変化は、石英の $\alpha/\beta$ 転移によるものであり、その変化は $A > B > C$ となり、これは珪石の成分割合とそれに伴う石英の含有が多くなることと一致している。その結果、熱膨張係数の値にも反映されたものと推察できる。

今回、過去品の化学成分分析値を基にノルム計算による粘土成分、長石成分、珪石成分の成分割合を算出し、その値を参考に試作坏土の調製を行った結果、得られた物性値が目標とする値に近似した結果が得られたことから、この手法の有効性が示唆される結果となった。

### 3.2 市販釉との適合性について

試作坏土に市販の石灰透明釉薬を施釉し、焼成した結果の写真を写真1-1と写真1-2に示す。

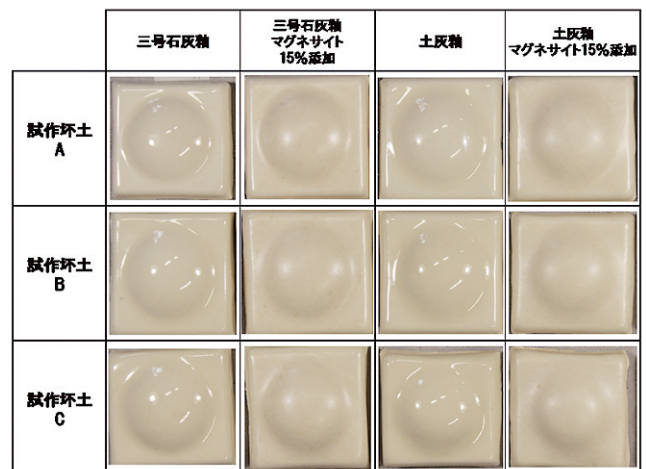


写真1-1 酸化雰囲気焼成による試作坏土と市販釉との適合性について

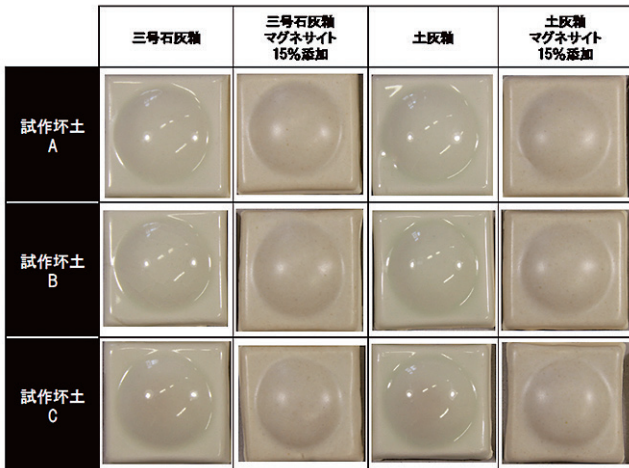


写真 1-2 還元雰囲気焼成による試作坏土と市販釉との適合性について

写真 1-1 と 1-2 より酸化雰囲気焼成と還元雰囲気焼成において、試作坏土 A, B, C とも釉葉の剥離や縮れの欠陥は認められず、良好な結果が得られた。

特に、試作坏土 A においては、現行品に近い熱膨張係数の値を示していたことから剥離が予想されたが、その欠陥は認められなかった。その原因については、今後検討が必要となった。

#### 4. まとめ

廃業した企業の陶土（上信楽土）について、化学成分分析値を基に 3 種類の試作坏土を設計検討し、寸法特性、曲げ強度、熱膨張特性の各物性値を過去品と比較した結果、粘土成分、長石成分、珪石成分の割合が試作坏土 B の割合（48：15：37）において類似した結果を得ることができた。

また、化学成分分析値によるノルム計算を使用した坏土設計の手法については、得られた物性値が目標値に近い値を示したことからその有効性が示唆された。

試作した坏土と市販釉との適合性について検討した結果、剥離や縮れといった欠陥もなく、良好な結果を得ることができた。

#### 参考文献

- 1) 田口 肇, 鈴木芳直 他, 京都市産業技術研究所研究報告, No.10, 36 (2020).