

-FS研究-

# 陶磁器製造工程の品質管理 -天草陶土の性状及び窯内部の温度分布の把握-

陶磁器科 河野 将明、吉田 英樹、岩永 省吾、山口 英次

## 要約

陶磁器製造工程の品質管理として、天草陶土の性状把握と窯内部の温度分布測定を行った。天草陶土の品質区分には選上、選中、選下の各陶土があり、各陶土の化学分析値から陶土に含まれる  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  と  $\text{TiO}_2$  量は、それぞれ 0.38~0.60mass%、0.61~0.91mas%、0.95~0.97mas%であった。各陶土を焼成した素地の白色度は、選上陶土>選中陶土>選下陶土の順で高い値を示しそれぞれを数値化した。窯内部の温度分布測定は、共通熱履歴センサーにより炉内各所の温度を計測することで窯内部温度の可視化(見える化)を行い、正常な操業状態の情報を収集できた。

キーワード：天草陶土、白色度、熱膨張係数、耐火度

## 1. はじめに

陶磁器産業における和飲食器の全国出荷額は令和5年において278億円であり、都道府県別では長崎県は岐阜県に次いで47億円と国内出荷額では第2位である<sup>1)</sup>。長崎県を含む肥前地域における陶磁器の製造は分業体制(天草陶石の採石業、陶土製造業、石こう型成形業、生地製造業、窯元、商社)により行われているが、市場規模の縮小に伴い各工程を支える技術者が減少し製品品質の維持が困難になりつつある。

そこで各工程で行われている品質管理を定量化することで製造上の問題を共有し、各工程ごとの歩留まりを向上できるとともに最終製品の歩留まり向上につなげることが期待できる。

本研究では、陶磁器製造工程における品質管理の指標を構築するため、(1)陶土製造工程における陶土特性及び(2)焼成工程の窯温度分布の測定を行い、各項目の定性・定量評価を行った。

## 2. 研究内容

### 2.1 陶土試料

陶磁器製造に用いられている各種天草陶土試料は、肥前陶土工業協同組合(佐賀県嬉野市)に所属する企業7社から入手した。天草陶土の品質と種類、試料記号を表1に示す。

表1 陶土品質区分と試料記号

品質	試料記号	種
選上	A1~9	9
選中	B1~9	9
選下	C1~2	2

### 2.2 天草陶土の諸物性

各種天草陶土試料の化学組成分析は蛍光X線分析装置(マルバーンパナリティカル製、ZETIUM)により、JIS R2001に基づく耐火度試験を行った。また、各種試料の泥しようから円盤型試料を作製し、それを焼成温度920℃で素焼き後、SK8(1250℃)、SK9(1280℃)、SK10(1300℃)の焼成温度で還元焼成を行い、得られた各試料についてJIS R2001に基づく耐火度、分光測色計(コニカミノルタ製 CM-3700A)による白色度、熱機械分析装置(リガク製、Thermo Plus Evo2)による熱膨張係数を

それぞれ測定した。

### 2.3 窯温度測定<sup>2)</sup>

波佐見陶磁器工業協同組合の協力のもと、組合員窯元が窯により窯内部の温度分布測定は、焼成終了後に回収した共通熱履歴センサー(リファサーモ)を所定の位置に配置し、リファサーモの寸法測定により窯の内部温度を見積もった。

## 3. 結果と考察

### 3.1 陶磁器原料の特性把握

入手した市販の天草陶土(品質:選上、選中、選下)の化学成分値と耐火度の結果を表2~4に示す。

表2に示す9種の天草選上陶土では、主成分であるSiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>のほかの成分としてFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Na<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>Oといった微量成分が見られる。それぞれの成分は、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が0.37~0.59mass%、Na<sub>2</sub>Oが0.18~0.48mass%、K<sub>2</sub>Oが3.18~3.70mass%の範囲であった。これらの範囲は陶土企業が陶土製造に用いる出発原料である天草陶石の採掘場所に応じた化学成分に由来するものと推察される。

同様に表3及び表4に示す天草選中陶土、天草選下陶土において、主成分とその他成分に分けてみるとNa<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>Oは選上陶土と比べて差はあまり見られなかったが、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の割合には違いが見られ、その値は選下陶土>選中陶土>選上陶土の順で大きかった。

これらの結果から、天草陶土の品質をそれぞれの試料で得られた化学分析値のFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>とTiO<sub>2</sub>を合算した含有量で比較すると、選上陶土は0.38~0.60mass%、選中陶土は0.61~0.91mass%、選下陶土は0.95~0.97mass%となった。

各天草陶土の耐火度の測定結果について表2~4にあわせて示す。天草陶土品質区分による耐火度は、選上陶土ではSK28、選中陶土ではSK26~28、選下陶土ではSK26、27であった。

表2 天草選上陶土の化学成分値と耐火度

試料	化学成分/mass%									耐火度
	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	CaO	MgO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	合計	
A1	78.57	17.36	0.37	0.02	0.07	0.06	0.19	3.34	99.98	SK28
A2	77.20	18.54	0.38	0.04	0.08	0.07	0.36	3.27	99.95	SK28
A3	76.65	19.00	0.48	0.02	0.08	0.05	0.17	3.40	99.84	SK28
A4	74.10	21.12	0.59	0.01	0.10	0.06	0.48	3.50	99.97	SK28
A5	76.52	19.07	0.52	0.01	0.09	0.07	0.23	3.47	99.99	SK28
A6	78.66	17.27	0.52	0.02	0.07	0.06	0.18	3.18	99.96	SK28
A7	78.08	17.55	0.51	0.01	0.09	0.05	0.18	3.50	99.97	SK28
A8	76.00	19.10	0.53	0.02	0.09	0.06	0.12	3.70	99.64	SK28
A9	76.80	18.60	0.53	0.02	0.08	0.10	0.21	3.39	99.74	SK28

表3 天草選中陶土の化学成分値と耐火度

試料	化学成分/mass%									耐火度
	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	CaO	MgO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	合計	
B1	79.80	16.39	0.61	0.03	0.08	0.05	0.16	2.81	99.94	SK26
B2	76.80	18.90	0.56	0.05	0.09	0.08	0.18	3.29	99.97	SK28
B3	78.52	17.21	0.92	0.03	0.08	0.06	0.09	3.06	99.99	SK26
B4	78.66	17.27	0.62	0.02	0.11	0.04	0.34	2.90	99.97	SK27
B5	75.54	19.36	0.65	0.02	0.11	0.08	0.33	3.91	100.01	SK27
B6	76.40	18.80	0.80	0.02	0.11	0.08	0.15	3.56	99.93	SK27
B7	76.80	18.50	0.76	0.02	0.09	0.09	0.14	3.32	99.73	SK27
B8	76.50	18.70	0.77	0.03	0.08	0.07	0.06	3.59	99.81	SK28
B9	75.70	19.40	0.82	0.02	0.09	0.10	0.11	3.62	99.89	SK28

表4 天草選下陶土の化学成分値と耐火度

試料	化学成分/mass%									耐火度
	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	CaO	MgO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	合計	
C1	74.83	20.16	0.88	0.09	0.14	0.10	0.35	3.39	99.94	SK28
C2	76.85	18.35	0.91	0.04	0.11	0.08	0.13	3.40	99.87	SK27

SK26 とSK28 では熔倒温度が1580℃、1630℃であることから使用する原料の適正な焼成温度を見極める必要であることが示唆される。

### 3.2 各素地の焼成特性

表2~4の各陶土試料を焼成温度SK8(1250℃)、SK9(1280℃)、SK10(1300℃)の各温度で、還元雰囲気下で焼成したときの各素地試料の焼成呈色をL\*値で評価した。Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+TiO<sub>2</sub>の値の関係を図1(a, b, c)に示す。

各素地試料のL\*値は、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+TiO<sub>2</sub>の値の大小によらず、選上素地(図1(a))は87~91%、選中素地(図1(b))は85~88%、選下陶土(図1(c))は79~84%を示した。

各選上、選中、選下素地試料の焼成呈色をL\*値で比較すると選上素地>選中素地>選下素地の順と

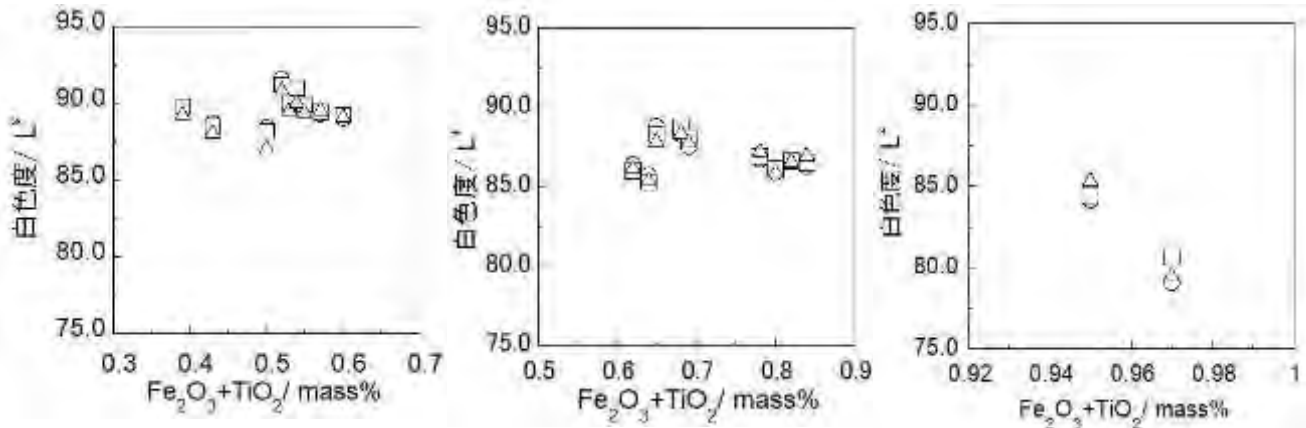


図1 各焼成温度で焼成した試料の白色度((a)選上素地、(b)選中素地、(c)選下素地、○:SK8 焼成、□:SK9 焼成、△:SK10 焼成)

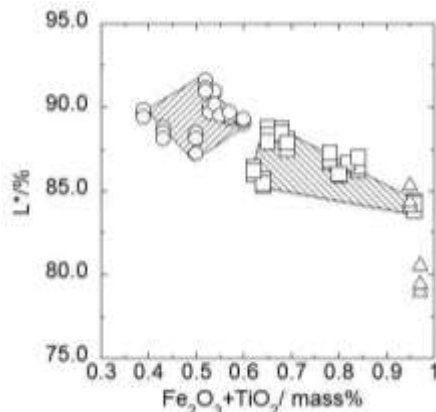


図2 各焼成温度で焼成した白色度の分布 (○:選上素地、□:選中素地、△:選下素地)

なった。このことから選上素地試料では、素地の  $\text{Fe}_2\text{O}_3+\text{TiO}_2$  値は  $0.37\sim 0.60\text{mass}\%$  の範囲でそのときの  $L^*$  値は  $87\sim 91\%$  となった。これは陶土中に含まれる  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  と  $\text{TiO}_2$  含有量に影響されていることが明らかとなった。

図1に各焼成温度で焼成した選上素地、選中素地、選下素地の  $L^*$  値と  $\text{Fe}_2\text{O}_3+\text{TiO}_2$  の値の関係を示す。

選上素地、選中素地の範囲(図中の斜線部)から選上素地では  $L^*$  値及び  $\text{Fe}_2\text{O}_3+\text{TiO}_2$  値の範囲が選中素地と比較して小さく、選中素地のそれは範囲が広いことがわかった。本研究において用いた選下素地は2種類と少ないが選中素地のなかには選下素地に近い  $L^*$  値や  $\text{Fe}_2\text{O}_3+\text{TiO}_2$  値を有するものがあることがわかった。

以上のことから陶土の化学成分の  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  と  $\text{TiO}_2$  含有量からある程度の  $L^*$  値を推定することができた。

次に各選上、選中、選下素地をSK8、SK9、SK10 焼成したときのそれぞれ温度における熱膨張係数を図2に示す。選上、選中及び選下素地は、焼成温度が高くなると熱膨張係数は小さくなる傾向を示すことが分かった。このことから各企業の窯の焼成温度と使用している陶土の種類が把握できれば図2のグラフから製品素地のおおよその熱膨張係数を予想することができる。さらに製品に使用している釉薬の熱膨張係数を測定することで製品素地及び釉薬の適正值の判断にも活用できる。

### 3.3 窯の温度分布測定

陶磁器製造における焼成工程での焼成温度が製品の品質(寸法精度、磁器化、焼成呈色、釉薬の熔融状態)に影響する。各窯元ではあらかじめ設定された手法(例えば自動制御装置や焼成プログラム)により焼成が行われ、自社の窯内部の温度高低差を経験的に把握している。しかし、少量多品種の製造をしている窯元では毎回同じ製品が焼成されるとは限らないため経験則が当てはまらない場合もある。そこで、波佐見陶磁器工業協同組合に所属する窯元の協力を得て、窯元の共通熱履歴センサー(リファサーモ)を用いて、窯内部の温度分布測定を行った。図3にリファサーモの配置図を、図4には結果表の例を示しており、その結果を図5に窯の温度分布として視覚的に示した。

図5に示される窯では、窯の上段、中段、下段の

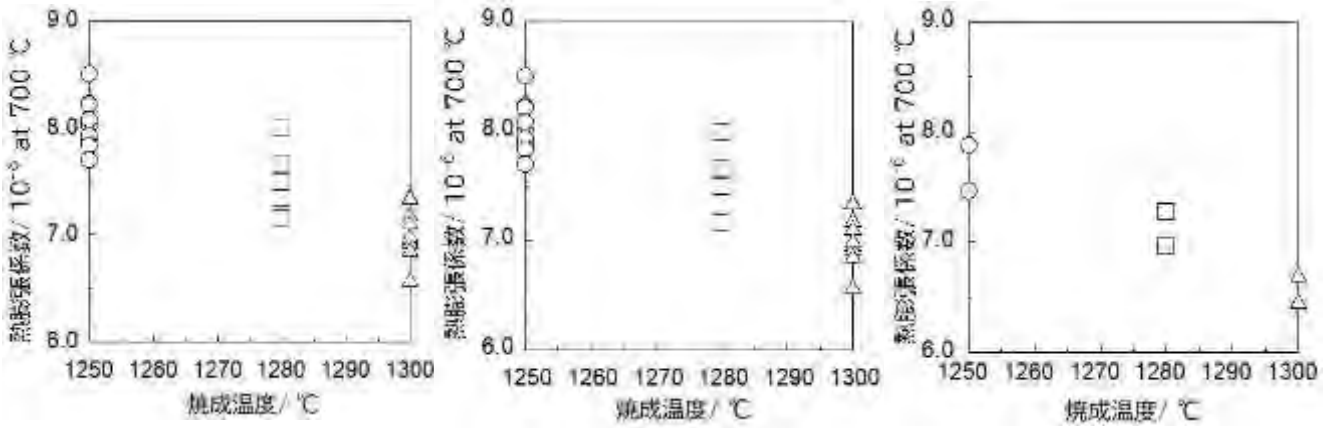


図3 焼成温度に対する各試料の熱膨張係数値((a)選上素地、(b)選中素地、(c)選下素地、○:SK8 焼成、□:SK9 焼成、△:SK10 焼成)

温度分布はほぼ均一であり、大きな温度差は見られなかった。このことからこの窯元では現在の窯の操業を維持していくことが望ましいことがわかる。一方で窯内部の温度分布に差があるような場合は、温度が低い位置を明示することで、窯詰め

の際にどのような製品を配置するか判断材料とする。また、製品の不具合が発生したときに窯の温度分布を測定し過去のデータと比較することで、その窯元での正常な操業かを推測することが可能になり、不具合の要因特定ツールとなる。この

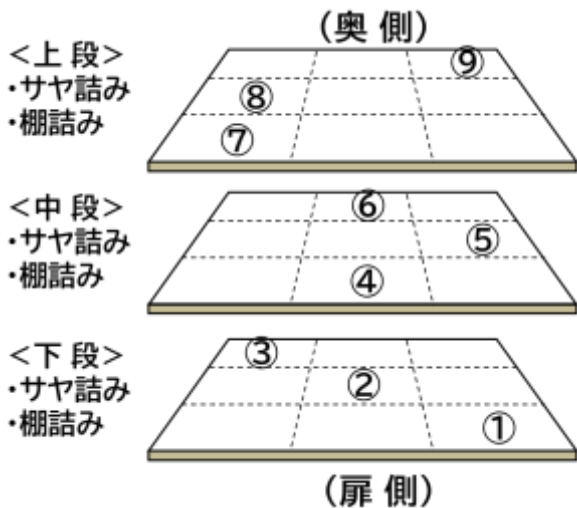


図4 窯内に配置するリファサーモの位置図

測定結果							
窯元名		台車NO1				台車NO2	
NO	寸法(mm)	指示温度(°C)	NO	寸法(mm)	指示温度(°C)		
1-1	21.41	1,266	2-1	21.33	1,274		
1-2	21.42	1,265	2-2	21.39	1,268		
1-3	21.41	1,266	2-3	21.33	1,274		
1-4	21.34	1,273	2-4	21.28	1,278		
1-5	21.32	1,274	2-5	21.30	1,276		
1-6	21.29	1,277	2-6	21.33	1,274		
1-7	21.32	1,274	2-7	21.19	1,287		
1-8	21.32	1,274	2-8	21.29	1,277		
1-9	21.30	1,276	2-9	21.30	1,276		

窯の容積	5 m <sup>3</sup>	ガス仕入れ会社
自動制御の有・無	有	タンク又はポンプ
窯入れの温度	26 °C	陶土メーカー
攻め温度	950 °C	陶土の種類
昇温時間	11 時間	
最高温度	1280 °C	
キープ時間	20 分	
窯出し温度	80 °C	測定日

図5 窯温度分布の測定結果表の例

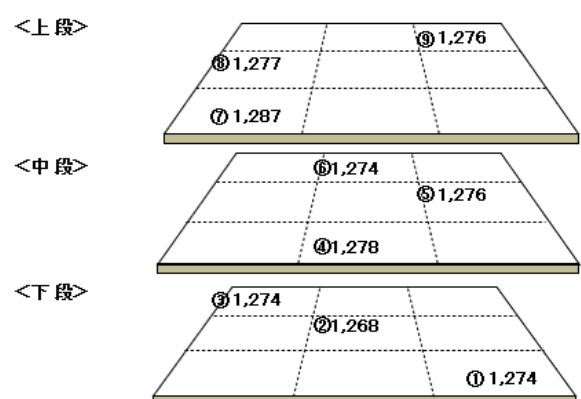
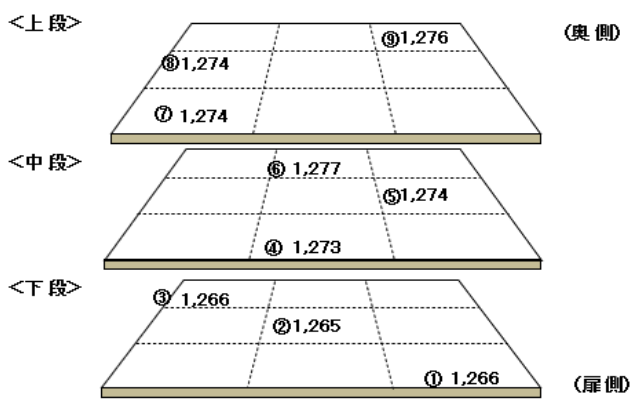


図6 窯の温度分布の可視化例(左:台車 no,1、右:台車 No,2)

ように窯内部の温度分布を可視化することで操業している窯の焼成温度の特性をつかむことができ、焼成品の形状、サイズ、厚みを考慮した配置場所を決めることが容易になり、焼成歩留まりの向上につなげることができる。

これらの結果を基に、構築したデータベースに各窯元の結果を蓄積し技術支援に役立てるとともに今後も継続して行う予定である。

#### 4. まとめ

陶磁器製造における出発原料である天草陶土の品質ごと(選上、選中、選下)の特性を焼成温度ごとに調査することで把握することができた。天草陶土の品質は、陶土に含まれる主成分以外の $\text{Fe}_2\text{O}_3$ と $\text{TiO}_2$ 量から品質の範囲を知ることができる。また、3水準の焼成温度の白色度や熱膨張係数を定量化することで基準を持つことができた。さらに、企業の窯の温度分布を把握できたことにより定量化したデータとの比較が容易に行えるため技術支援ツールとして役立てることが可能である。

陶磁器製品は各製造工程での品質管理が重要であり、その情報・状態を横断的に把握し活用していくことが各工程の製造歩留まりを上げることになる。今後も引き続きデータを蓄積し技術支援体制を強固にしていきたい。

#### 文献

- 1) 経済産業省 経済構造実態調査  
([https://www.meti.go.jp/statistics/tyo/kkj/seizo\\_result.html](https://www.meti.go.jp/statistics/tyo/kkj/seizo_result.html))
- 2) 河野将明、吉田英樹、セラミックス,59,839 (2024).

#### 謝辞

本研究の一部は(公財)大倉和親記念財団研究助成により行われました。ここに記して関係各位に厚く御礼申し上げます。