

ISSN 1882-0050 (Print)
ISSN 2759-7962 (Online)

岐阜県セラミックス研究所研究報告

REPORTS OF THE GIFU PREFECTURAL
CERAMICS RESEARCH INSTITUTE
2026

岐阜県セラミックス研究所

目 次

1. 助剤としてマグネシアを添加した窒化アルミニウムの作製	・・・ 1
2. CAE を用いた碗の応力解析事例 ーシミュレーションを活用したセラミックスの設計・評価技術に関する研究(第4報)ー	・・・ 4
3. タイルの新しい製造技術及び製品検査の自動化に関する研究開発 ータイルの外観検査システムの開発ー	・・・ 8
4. タイルの新しい製造技術に関する研究(第1報)	・・・14
5. レオメータを用いた陶磁器リサイクル粉末の分散性評価	・・・18
6. 陶磁器製品の低温焼成に関する研究(第1報)	・・・21
7. 新装飾を活用した美濃焼伝統工芸による新規製品の開発(第1報)	・・・26

助剤としてマグネシアを添加した窒化アルミニウムの作製

尾畑成造・林亜希美

Fabrication of Aluminum Nitride with Magnesia as a Sintering Aid

Seizo OBATA and Akemi HAYASHI

5℃の環境下で水系窒化アルミニウムスラリーを調製した結果、固体濃度 78mass%のスラリーを得ることができた。また焼結助剤として使用したマグネシアを 1mol%添加した窒化アルミニウムスラリーを用いて、石膏型に鋳込み成形したところ良好な成形体を得ることができた。得られた成形体を焼成した結果、相対密度 99%の緻密な焼結体を得ることができた。得られた焼結体の熱伝導率は 72W/mK であった。

1. はじめに

窒化アルミニウムは、耐熱性、耐食性、熱伝導性及び電気絶縁性に優れたセラミックスとして知られている。特に、熱伝導率がアルミナに比べ約 5～7 倍高いことや熱膨張係数がシリコンとほぼ同じであることから、半導体の絶縁放熱基板や半導体製造用部材として利用されている¹⁻³⁾。

窒化アルミニウム製品は、粉末と水との反応性が高いことから、主に有機溶媒を使用して造粒された窒化アルミニウム顆粒を用いてプレス成形や CIP 成形などの加圧成形法で成形し、焼成することにより製造されている⁴⁾。しかし、半導体製造部材の大型化や複雑化に伴って、比較的単純形状でなければ製造できない加圧成形では成形、焼成後の研削加工が必要となるため、製造コストが高くなるとともに、多量の研削廃棄物が産出されることが問題となっている。

また、有機溶媒は発火や爆発の危険があると同時に、人体や環境に悪影響を及ぼすことが危惧されている。そのため、水系プロセスを用いた製造技術、特に複雑形状や厚物形状にも対応可能な鋳込み成形を用いた製造プロセスの実用化が求められている。

一般的に窒化物は水や空気中の水蒸気と反応して酸化されやすいため、水系プロセスによる成形が難しいが、窒化珪素や窒化チタンについては水系による鋳込み成形や加圧成形用顆粒の作製が試みられている。しかし、窒化アルミニウムは水に対して極めて反応性が高いことから、水系スラリ

ー調製に関する多くの報告は、窒化アルミニウム粉末を表面処理して反応抑制させた粉末を使用したものとなっている。

窒化アルミニウムの鋳込み成形については、表面処理を施した窒化アルミニウム粉末を 5℃で低温混合することによって、水系窒化アルミニウムスラリーを調製し鋳込み成形した事例が報告されている⁵⁾。さらに、窒化アルミニウムの水系プロセスによる顆粒製造において、分散剤添加及び 5～15℃の低温混合が窒化アルミニウムの水和反応の抑制に寄与することが報告されている^{6, 7)}。本研究ではそれらの知見を用いて水系窒化アルミニウムスラリーを調製する条件を検討するとともに、焼成して得られた焼結体の特性を評価した。

2. 実験方法

原料は(株)トクヤマ製窒化アルミニウム TYPE-H、焼結助剤として(株)高純度化学研究所製マグネシアを用いた。分散剤はポリアクリル酸アンモニウム塩(サンノブコ(株)製 RFA、固形分 40%)を使用した。

ポリエチレン製容器に、イオン交換水、φ 5～20mm のジルコニアボール、窒化アルミニウム、マグネシアを加えて、固体濃度 78mass%のスラリーを調製しボールミル混合を行った。マグネシアについては窒化アルミニウム粉末に対して 1mol%添加した。ボールミル混合は、5℃に保った恒温恒湿室(日立アプライアンス(株)製 ER-55NHP-R)中に設置したミル架台により、10 時

間行った。スラリーの見かけ粘度については回転粘度計(東機(株)産業製 B 型粘度計)を用いて測定した。

調製したスラリーについては真空脱泡した後、 $50 \times 50 \times 6\text{mm}$ の石膏型を用いて 15°C にて固形鋳込み成形を行った。成形体は 15°C 以下の恒温恒湿器にて 48 時間乾燥した。得られた成形体を窒素雰囲気中常圧にて 1900°C 、4 時間保持の条件で焼成(富士電波工業(株)製ハイマルチ 5000)した。焼結体密度をアルキメデス法で、熱伝導率はフラッシュ法(NETZSCH 製 LFA467HT Hyper Flash)により測定した。焼成後の鉱物組成については X 線回折((株)リガク製 UltimaIV) で評価した。焼成体の微細構造観察は切断後研磨した面を走査型電子顕微鏡(日本電子(株)製 JSM-7001GC)及びエネルギー分散型 X 線分析(EDS)(日本電子(株)製 JED-2300)を使用して評価した。

3. 結果

図 1 に分散剤添加量を変化させ、固体濃度 78% に調製した窒化アルミニウムスラリーの見かけ粘度を示す。分散剤 0.1mass% においては約 1500mPas と見かけ粘度が高い値を示しているが、0.2～0.3mass% 添加することで見かけ粘度は急激に減少し、見かけ粘度は約 300mPas の良好な流動性を示すスラリーとなった。その後さらに分散剤を添加すると徐々に見かけ粘度が増大していることから、分散剤の最適添加量は 0.3mass% とした。

表に鋳込み成形により作製した成形体及び焼成体の密度を示す。成形体密度は $2.11\text{g}/\text{cm}^3$ (相対密度約 65%) であり、比較的高い成形体密度の成形体を得られていることを確認した。また焼成体の密度は $3.23\text{g}/\text{cm}^3$ 、相対密度約 99% であった。

図 2 に窒化アルミニウム焼結体の微細構造及び EDS 分析を示す。窒化アルミニウムは焼成過程で助剤として添加するマグネシアと液相を形成し、液相焼結することが知られている。EDS 分析結果から、窒化アルミニウムの粒子界面にマグネシウム、アルミニウム、酸素を検出する粒界が確認できる。このことから、マグネシアアルミナ系の粒

子が形成されていると思われる。さらに、この焼結体について X 線回折測定を行った結果、図 3 に示すとおり AlN 以外にマグネシアアルミナスピネルとみられるピークを確認した。これらのことからマグネシアアルミナスピネル固溶体が形成していると考えられる。一方、X 線回折に付属する解析ソフトを使用し、WPPF(Whole Powder Pattern Fitting)法にて定量分析を行った結果、窒化アルミニウムとマグネシアアルミナスピネルの組成比はモル比にて 99.5 : 0.5 であった。マグネシア 1mol% 添加しているのに対してマグネシアアルミナスピネルの生成が 0.5mol% であることから、添加したマグネシアの一部は窒化アルミニウムの粒界又は粒内に拡散している可能性があることが示唆される。得られた焼結体の熱伝導率を測定した結果、 $72\text{W}/\text{mK}$ であり、文献⁸⁾で報告される結果とほぼ同じ値を示した。今後、室温及び高温領域での体積抵抗率を評価していく予定である。

4. まとめ

5°C の環境下で水系窒化アルミニウムスラリーを調製した結果、分散剤を 0.3mass% 添加することで 78mass% のスラリーを得ることができた。

焼結助剤として使用したマグネシアを 1mol% 添

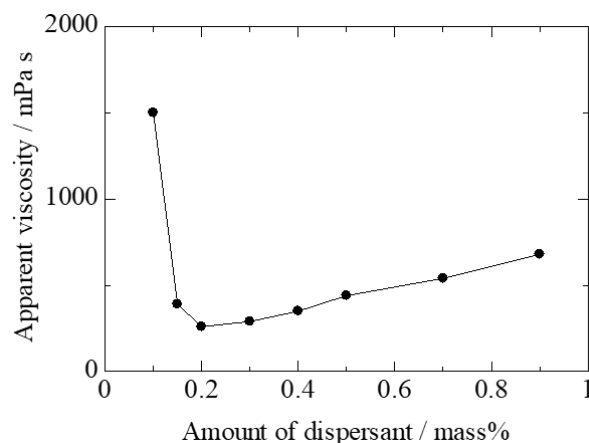


図1 所定量分散剤を添加した 78mass%窒化アルミニウムスラリーの見かけ粘度

表 鋳込み成形して作製した成形体、焼成体の密度

	成形体密度	焼成体密度
窒化アルミニウム(1mol%マグネシア添加)	$2.11\text{ g}/\text{cm}^3$	$3.23\text{ g}/\text{cm}^3$

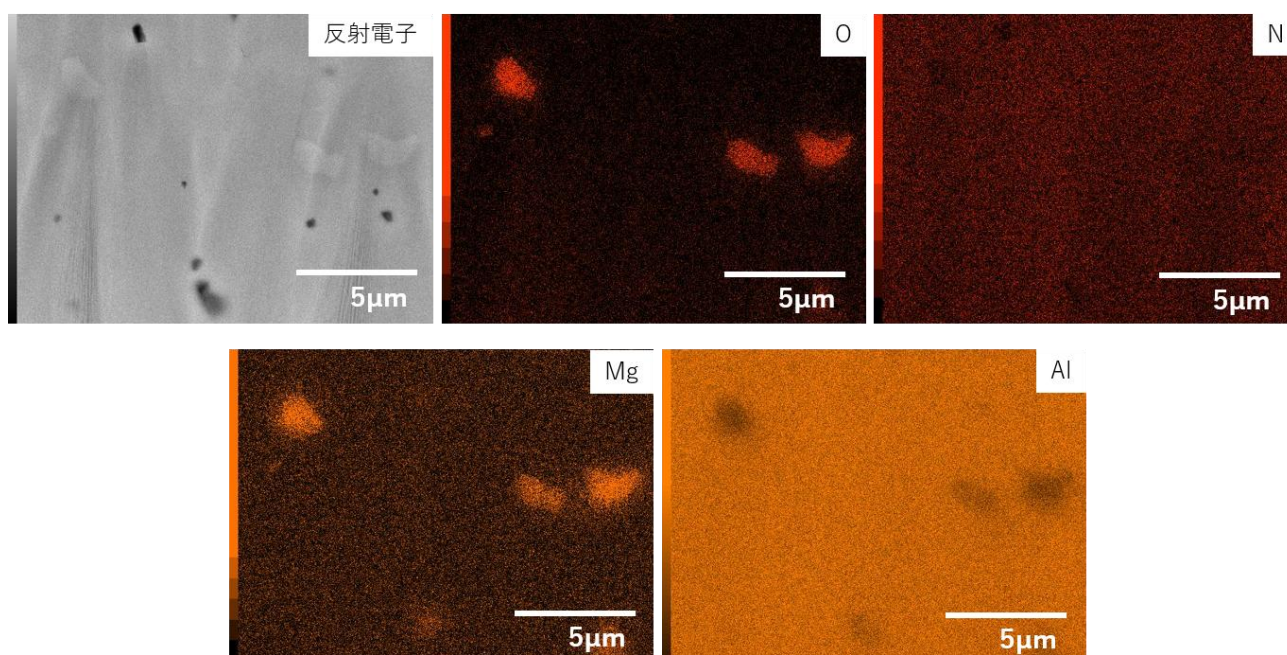


図2 マグネシア 1mol%添加窒化アルミニウム焼結体の電子顕微鏡観察及び EDS 分析結果

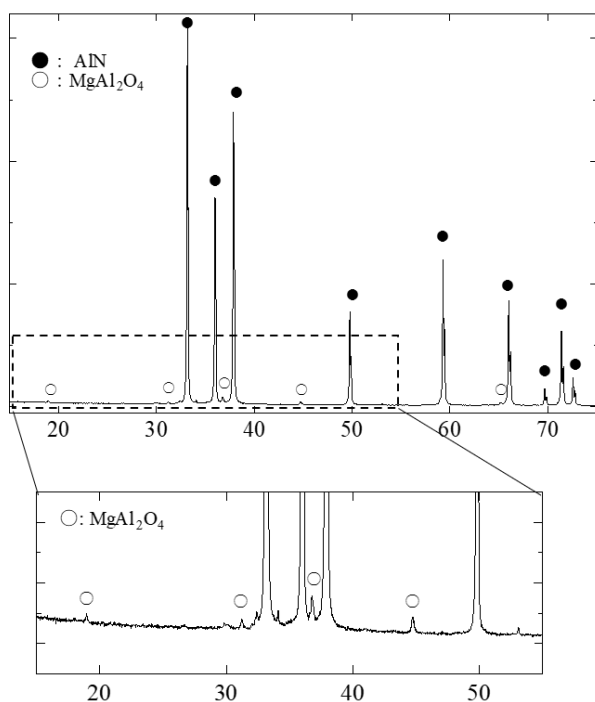


図3 マグネシア 1mol%添加窒化アルミニウム焼結体の X 線回折結果

加した水系窒化アルミニウムスラリーを用いて、石膏型に鋳込み成形したところ、良好な成形体を得ることができた。得られた成形体を 1900℃で常圧焼成した結果、相対密度 99%の緻密な焼結体を得ることができた。焼結体は窒化アルミニウムの

他にマグネシアアルミナスピネルを検出した。得られた焼結体の熱伝導率は 72W/mK であった。

【参考文献】

- 1) 米屋勝利: セラミックス, 26, 725 (1991).
- 2) 渡利広司, 中野裕美: セラミックス, 39, 678 (2004).
- 3) 川崎啓治: セラミックス, 39, 688 (2004).
- 4) 阿部浩也, 佐藤和好, 内藤牧男, 野城清, 堀田禎, 多々見純一: 粉体工学会誌, 42, 238 (2005).
- 5) M. Takahashi, Y. Kataoka, C. S. Chieh, M. Ota and M. Fuji: Key Eng. Mat., 247, 45 (2003).
- 6) 横山久範, 戸高栄弘, 加藤布久, 伊本靖司, 阿部浩也, 内藤牧男, 菊田浩一, 平野真一: 43, 492 (2006).
- 7) 横山久範, 戸高栄弘, 伊本靖司, 阿部浩也, 内藤牧男, 菊田浩一: 粉体工学会誌, 44, 798 (2007).
- 8) 公開特許公報 特開 2006-273584.

CAE を用いた碗の応力解析事例

シミュレーションを活用したセラミックスの設計・評価技術に関する研究 (第4報)

林亜希美・立石賢司

Case Study: Stress Analysis of Porcelain Bowl using CAE

Akemi HAYASHI and Kenji TATEISHI

陶磁器製碗の縁に力を与えた際に発生する応力についてシミュレーションを実施した。評価した陶磁器製碗は市販碗を参考に形状を作成した。陶磁器製碗の口縁部形状において、打点を横方向に変化させた場合と円状に変化させた場合の影響について検討した。横方向のみ長くした場合と縁全体を円状に大きくした場合の解析結果を比較したところ、縁を横方向のみに大きくした場合と口縁部全体を大きくした場合の差は小さく、荷重方向に垂直方向の長さの影響が大きいことが示唆された。

1. 緒 言

陶磁器業界における製品開発は、主に設計、試作、評価を繰り返しながら製品化を行うが、試作には、主に手書き図面が用いられるため、特に評価結果が思わしくない場合に行う再設計時は、経験的試行錯誤によって行われていることが多い。この設計に CAD を用いることで、シミュレーションソフトと容易に連携できるため、予めシミュレーションによる科学的根拠に基づいた評価と再設計をパソコン上で繰り返した後、試作を開始することができることから、開発時間の短縮や製品性能の向上が期待できる。(※CAE: Computer Aided Engineering の略で有限要素法等を用いた数値解析手法をコンピューターによって支援すること、またそれを行うツール。)

陶磁器業界において、一部に CAD は活用されるようになったものの、CAE を活用した設計・評価はコストや人材の理由から行われてこなかったと考えられる。そこで、試作支援や物性評価に CAD や CAE を活用しやすくするため、これまで陶磁器製品や窯道具の設計・評価技術の事例として、マグカップのハンドル引張試験における破壊挙動¹⁾やハンドルの強度²⁾、耐火物の熱応力解析³⁾について検討し、業界に対して周知をはかってきた。本年度は陶磁器製食器の縁部形状について解析を行った事例について報告する。

2. 実験方法

2-1 全体形状・玉縁なし形状の設計

CAD ソフトは Dassault Systems 社製の Solidworks、解析には Solidworks Simulation Premium を使用した。CAE で仮定したモデルを図1に示す。モデル形状は市販されている碗を参考に作成した。

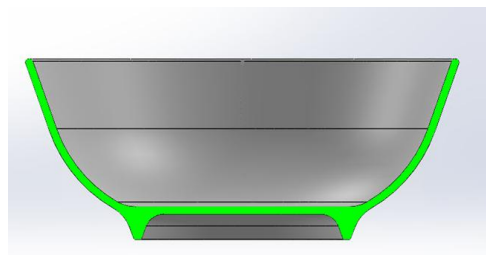


図1 断面スケッチ モデル全体形状

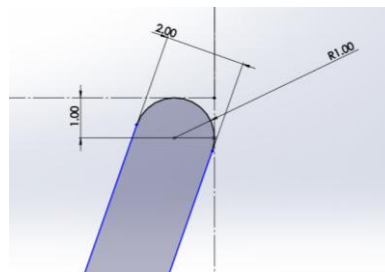


図2 断面スケッチ モデル縁部形状

高さ 50 mm、直径 120 mm、厚みを 2 mm とし、縁部については図2に示すように直径 1 mm の半円とした。市販の碗では厚みが一定でない場合が多いが、形状の影響をわかりやすくするために一定の厚さとした。この形状を基本として解析を行った。

2-2 縁形状の設計

縁部形状の効果について、横方向の長さを厚み 2 mm で、横方向の長さを 1 mm ～ 10 mm まで 1 mm きざみとしたモデルを作成し（形状 A）解析を行った。作成したモデルの縁部スケッチ断面のうち 1 mm、10 mm を図 3-1、図 3-2 に示す。また、縁部全体を円状に大きくし、直径を 1 mm ～ 8 mm まで 1 mm 刻みとした縁部形状のモデル（形状 B）を作成し、解析を行った。作成したモデルの縁部スケッチ断面のうち 1 mm、8 mm を図 3-3、図 3-4 に示す。衝撃試験の評価においては、縁部への荷重面、碗の拘束面を 0.4 mm 角の面に設定するとともに、底面を拘束する条件とした。また荷重は 100N とした。図 4 に拘束面及び荷重面の位置を示す。

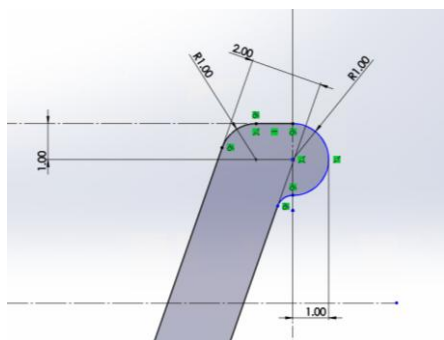


図3-1 断面スケッチ 縁部長さ 1mm

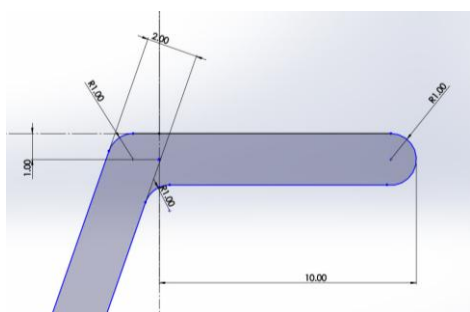


図3-2 断面スケッチ 縁部長さ 10mm

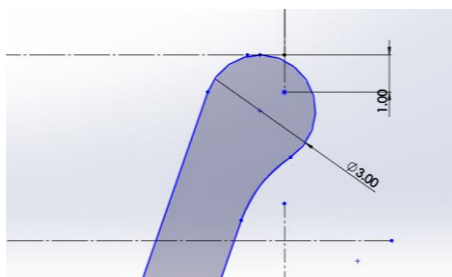


図3-3 断面スケッチ 縁部直径 3mm

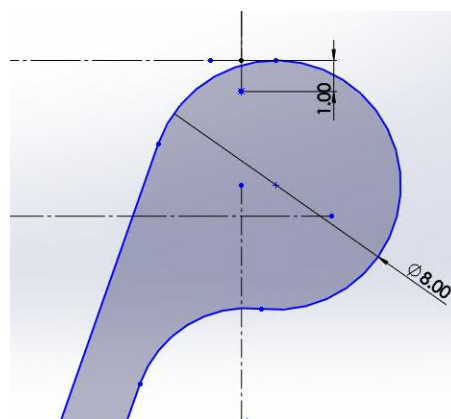


図3-4 断面スケッチ 縁部直径 8mm

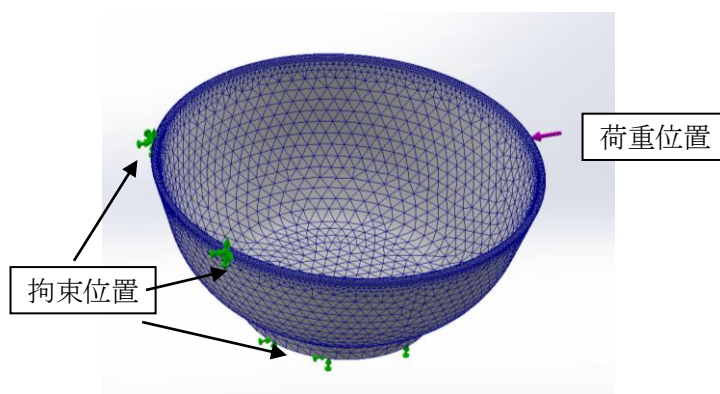


図4 拘束面及び荷重面の位置

図 3-2 や図 3-4 に示すように厚みの数倍を超えるような、大きすぎる縁形状は持ちやすさ、あるいは口をつけての飲食を考慮すると現実的ではないが、種々の検討が容易にできることが CAE の利点であるため、このような形状においても解析を行った。

なお、解析で用いたシミュレーションモデルは共に、釉層を考慮せずに素地の物性のみの単純化したモデルを使用した。シミュレーションに使用した材料特性は市販高強度食器を想定して密度 2.8g/cm³、ヤング率 120GPa、ポアソン比 0.223 とした。

3. 結果及び考察

3-1 玉縁なし形状での衝撃試験解析

図 5 に玉縁なし形状における解析結果を示す。最大主応力 (MPa) についてはカラーバーに示すとおりの応力が高い部分 (正) を赤、低い部分 (負)

を青として表示した。正の値が引っ張り応力を示し、負の値が圧縮応力を示している。図5より荷重点、拘束点に大きな応力が発生することがわかる。

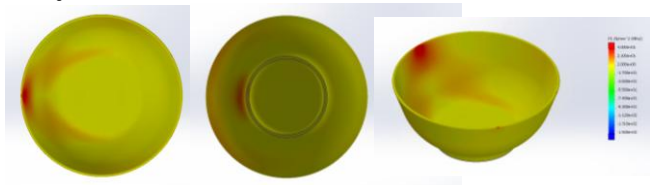


図5 玉縁なしスケッチにおける応力解析分布
(上面、下面、斜め図)

※カラーチャートの最大値40MPa、最小値-150MPa
シミュレーションの結果、最大応力は拘束点、最小応力は荷重点になる場合が多い。この条件においては高台エッジ部に引っ張り応力が発生している。これはこれまでの蒲地らの報告⁴⁾と同じ傾向である。底面を拘束しない条件にした計算では高台エッジ部で他部分よりも大きな応力は発生しなかったことから、底面部分を完全拘束としたため発生した応力であると考えられる。

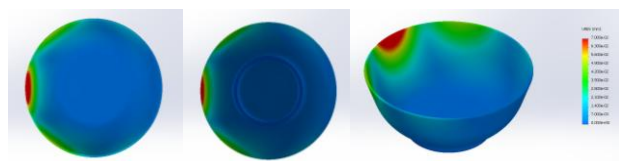


図6 玉縁なしスケッチにおける変位解析分布
(上面、下面、斜め図)

※カラーチャートの最大値0.07mm 最小値0mm

図6に基本形状の変位解析結果を示す。この図から荷重点を中心に円環状、また荷重点から両側に30°の位置に変位が観測された。変位は応力と異なり、碗上部の荷重点に近い部分に見られた。この結果から底面に近い部分は変形が起きにくいことがわかる。

3-2 玉縁を変化させた形状での衝撃試験解析

形状Aの場合における応力解析結果を図7、変位解析結果を図8に示す。図7において、どの形状においても図5よりも着色した部分が少なく、応力は玉縁なし形状に比べ、小さくなる傾向となった。また縁部形状を横方向に徐々に大きくした

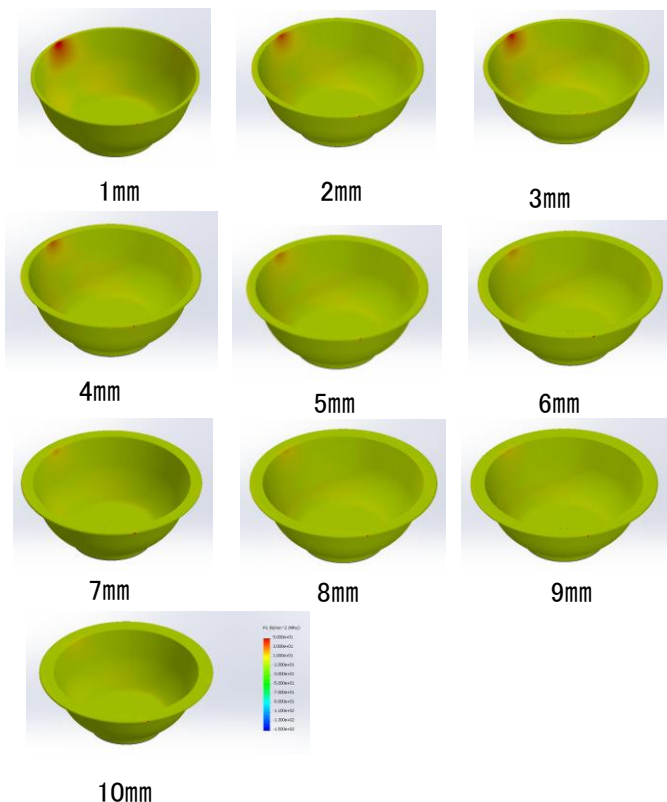


図7 形状A(1mm~10mm)の応力分布

※カラーチャートの最大値50MPa、最小値-150MPa

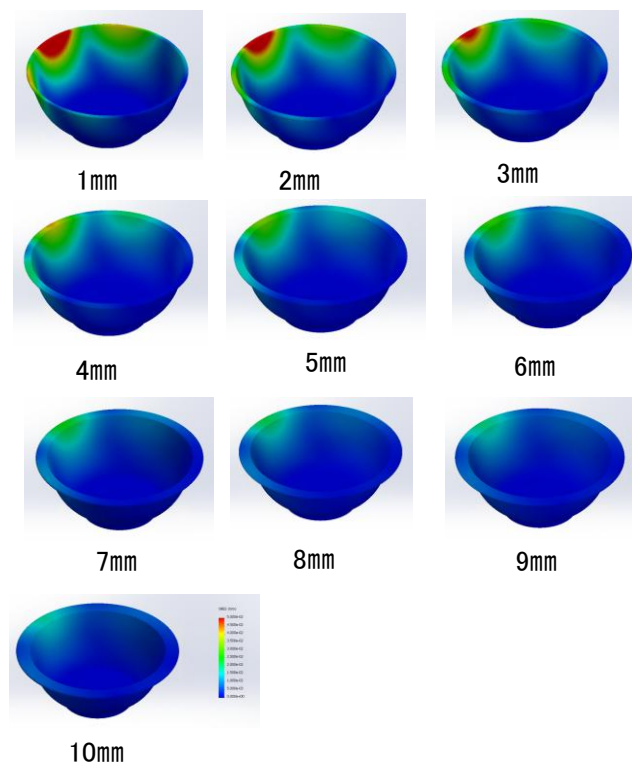


図8 形状A(1mm~10mm)の変位分布

※カラーチャートの最大値0.05mm 最小値0mm

際に打点裏側に発生する最大応力の変化を図9に示す。応力の最大値はこのグラフに見られるように形状を大きくするに従って徐々に小さくなるが、最大応力の減少は緩やかになることがわかる。

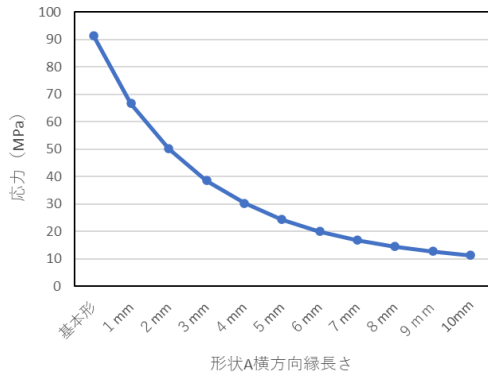


図9 形状Aにおける、打点裏側に発生する応力の横方向長さに対するプロット

次に、形状 B における応力分布解析結果を図 10 に示す。形状 A の場合と同様に縁形状が大きくなるに従い、発生する応力が小さくなった。形状 B においても、打点位置の厚みが大きいほど、発生する応力は小さくなるが、その減少量は徐々に小さくなった。図 11 に縁を円状に徐々に大きくした際の打点裏側に発生する最大応力の変化を示す。発生する応力は横方向のみ長くした場合と円状に

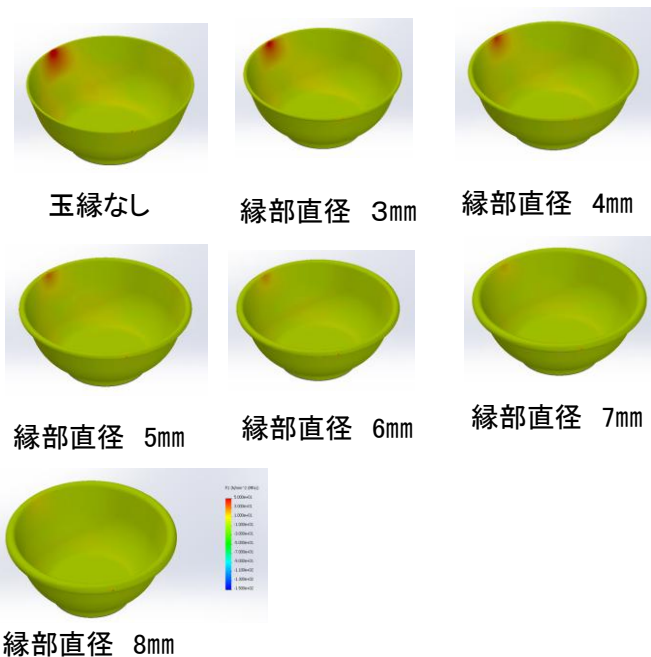


図10 形状B(1mm～10mm)の応力分布

※カラーチャートの最大値50MPa。最小値-150MPa

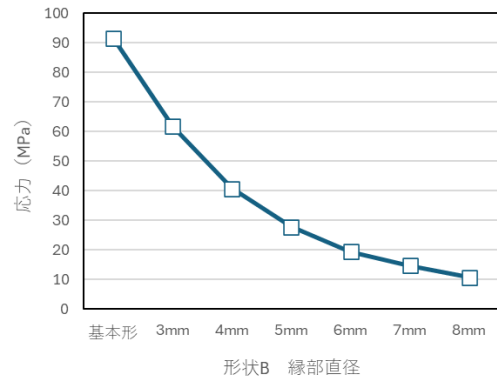


図11 形状Bにおける、打点裏側に発生する応力の横方向長さに対するプロット

した場合の差はほとんどなく、荷重方向に垂直な方向の影響が大きい傾向となった。

4. まとめ

碗形状の応力解析を行った結果、荷重面の裏側と拘束面に大きな引っ張り応力が発生し、変位は荷重面及びその周辺が大きくなる結果となった。

縁部形状においては、打点面に対して垂直方向の厚みが大きい方発生する応力は小さくなるが、その減少量は徐々に小さくなる。発生する応力は横方向のみ長くした場合と円状にした場合の差はほとんどなかった。

本報告においては事例の一つとして、縁形状の変化のみを取り出して解析を行った。縁以外の部分については高台に近い部分を除いて同じ厚みとしたが、応力の大きくかかる部分の厚みを変えた場合や、直径、高さ比が異なる場合等、種々の解析がさらに必要であると考えられる。

【参考文献】

- 1) 林 亜希美, 立石賢司: “CAE を用いたマグカップハンドル破壊解析事例” 岐阜県セラミックス研究所研究報告, pp. 10-12 (2023)
- 2) 立石賢司, 伊藤正剛, 齋藤祥平: CAE を用いたマグカップハンドルの強度解析事例 “岐阜県セラミックス研究所研究報告, pp. 8-10 (2024)
- 3) 立石賢司, 伊藤正剛: “棚板のスリットが熱応力に与える効果” 岐阜県セラミックス研究所研究報告, pp.9 -12 (2025)
- 4) 蒲地伸明: “応力解析による食器の耐衝撃強度改善” 佐賀県窯業技術センター平成 21 年度研究報告, pp14-24

タイルの新しい製造技術及び製品検査の自動化 に関する研究開発

ータイルの外観検査システムの開発ー

岩田靖三・尾畑成造・平湯秀和

Research and Development of New Tile Manufacturing
Technologies and Automated Product Inspection
- Development of an Appearance Inspection System for Ceramic Tiles -

Seizo IWATA, Seizo OBATA and Hidekazu HIRAYU

施工タイルの補修において既存タイルと同等の色合いを再現するためには、施工タイルとデータベース上の色情報との対応付けが重要となる。本研究では、マハラノビス距離を用いてタイルの色分布を統計的に評価する手法を提案した。その結果、92 枚のタイルに対して 100%の正答率で同一タイルの識別が可能であり、さらに 97%の精度で同一色合いの判定が可能であることを示した。

1. 緒 言

ビルやマンションなどの大型建造物では、外壁仕上げ材としてタイルが広く使用されている。平成 20 年の建築基準法施行規則の改正により、大型建造物（特定建築物）の外壁タイル等に関する調査・点検が大幅に強化され、一定の条件を満たす建物では、3 年ごとに手の届く範囲の部分打診調査を行うとともに、10 年ごとの外壁全面打診調査が義務化された。この制度改正により、建築後一定期間が経過したビルやマンションなどにおいて、外壁タイルの補修や張替えなどの大規模改修工事の需要が増加している。



図1 経年劣化でひび割れが生じたタイル

外壁タイルの補修では、図 1 に示すような経年劣化によるヒビ、欠損、剥離などが生じたタイルを交換する必要がある。この際、一般的には既存タイルと同じ色合いのタイルを用いて補修を行う。しかし、補修対象となる建物は築 10 年以上経過している場合が多く、経年劣化による色変化が生じている場合がある。また、色変化がなかったとしても、10 年以上にわたり同一の色調やデザインで製造され続けているタイルはほとんど存在しない。そのため、現在販売されているタイル製品で対応できる場合は極めて少ない。

このような場合、施工当時のタイルサイズや色に合わせて新たにタイルを製造するか、現在生産されている製品の中から類似した色調のタイルを選定して補修する方法がとられている。しかし、後者の場合には、図 2 に示すように既存タイルと補修タイルの色合いが異なり、外観上の意匠性が損なわれる場合も少なくない。

既存タイルに近い色合いのタイルを新たに製造する場合、これまでタイル業界では次のような手順で色合わせが行われてきた。まず、現場で交換すべきタイルを専門業者が剥離して回収し、それを基にタイル製造企業において類似色のタイルを試作する。その後、色差計による測定や目視検査

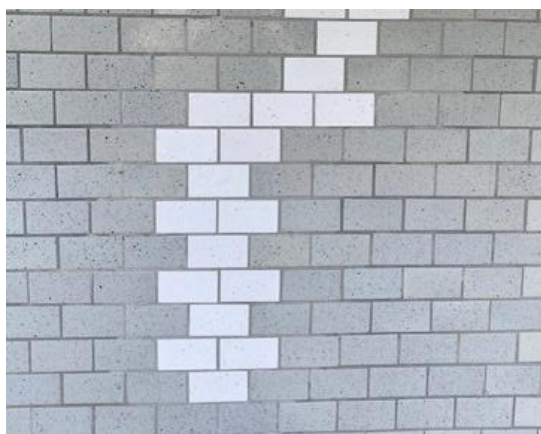


図2 既存タイルで修復したタイル

を行いながら色合わせを実施する。

しかし、タイルの色は表面の質感や局所的な色むら、光の当たり方などの影響を受けやすく、色差計による数値評価だけで完全に一致させることは難しい。また、最終的な色判断は熟練技術者による目視評価に依存する部分が大きく、評価者や観察条件によって判断が変わる場合もある。そのため、試作・焼成したタイルを現場に持ち込み比較しても所望する色と一致しない場合があり、試作と確認の工程を複数回繰り返す必要がある。

一方、タイル業界では平成3年の生産最盛期以降、長引く景気低迷や生活様式の変化により生産量の減少が続いており、技術者の減少や高齢化が問題となっている。特に、タイルの色調や寸法などを管理するための原料や釉薬の調合管理は、熟練技術者の経験やノウハウに依存してきた部分が大きく、これらの生産技術の維持および伝承は重要な課題となっている。

このような状況の中で、短納期で所望の色調のタイルを提供するためには、あらかじめ釉薬や素地、焼成条件などの製造条件と、それによって得られるタイルの色情報をデータベース化し、所望の色合いを入力することで適切な釉薬配合や焼成条件を推定できるシステムの構築が求められている。このようなシステムが実現すれば、正式発注前の段階で想定される釉薬組成や焼成温度などの製造条件を把握することが可能となり、タイル製造企業における受注から納品までのリードタイムの短縮につながると考えられる。

このシステムを実現するためには、①釉薬・素地の調合および焼成条件と、それにより作製され

たタイルの色情報を整理したデータベースの構築と、②建築物に施工された既存タイルを撮影し、その色情報を取得・評価する技術の確立が必要となる。現在、業界の中にはタイル製造業および釉薬メーカーが連携し、製造条件とタイル色の関係を整理したデータベース構築を進める動きもある。そのため、重要な課題となるのは、施工現場に存在する既存タイルの色情報と、データベース化されたタイル色情報とを照合するための技術である。

本研究では、この課題を解決するため、施工現場において既存タイルを剥離することなく撮影し、得られた画像から色情報を抽出する技術および、その色情報をタイルデータベースと照合するための画像解析技術の開発を行う。これにより、交換すべきタイルを現場で撮影するだけで類似する色調のタイルを推定できるようになり、タイル製造企業はその情報を基に短期間で類似色タイルを製造することが可能となる。その結果、補修工事における納期短縮およびコスト削減に寄与することが期待される。

2. 実験方法

2-1 撮像環境

一眼レフカメラ、照明および撮影対象物を図3に示す配置で設置し、タイル撮影用の環境を構築した。撮影にはフラットドーム照明を用いることで、対象物表面に対して拡散光を与え、影や反射の影響を低減しつつ、画面全体にわたり均一な照明条件を実現した。

撮影に使用したカメラはニコン製D5100であり、撮影条件はISO感度、シャッター速度、絞りをすべて固定した。また、照明にはCCS製LFXV-150SWを用い、その照度も一定に保持した。これにより、撮影条件のばらつきを排除し、取得画像の再現性を確保した。

2-2 撮影方法

撮影に先立ち、照明ムラおよび明るさのばらつきを補正するため、白色のカラーチェッカーを画面全体に写るように撮影した。その後、対象となるタイルを撮影し、取得したカラーチェッカー画像の輝度情報を基に照明ムラ補正（フラットフィールド補正）を行った。

さらに、カラーチェッカーの平均輝度値を基準として、画像全体の明るさが一定となるよう補正

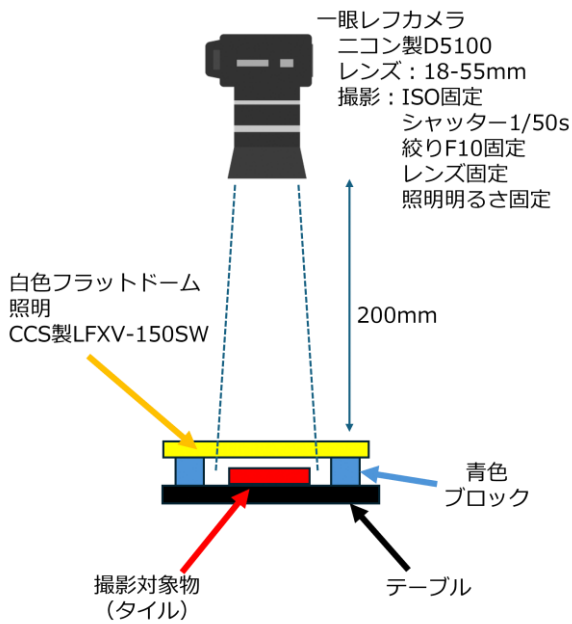


図3 タイル撮像のための環境

係数（gain）を算出し、すべての画像に対して適用した。図4に色補正の例を示す。

本研究では、図5に示す23種類のタイルを対象とし、各タイルについて4段階の濃淡レベルを含む計92枚の試料を用いた。各タイルは1枚のみであったため、撮影位置や角度を変化させながら30回撮影を行い、計30枚の画像を取得した。

取得した画像から各タイルのRGB値の平均を算出した。撮影結果の一例として、赤系統のタイルについて濃淡の異なる4試料のヒストグラムを図6に示す。濃度が増すにつれてヒストグラムは低輝度側（RGB値の低い側）へシフトすることが確認された。



図4 色補正の例
(左:撮像画像、右:RAW現像後)



図5 撮像に使用したタイル

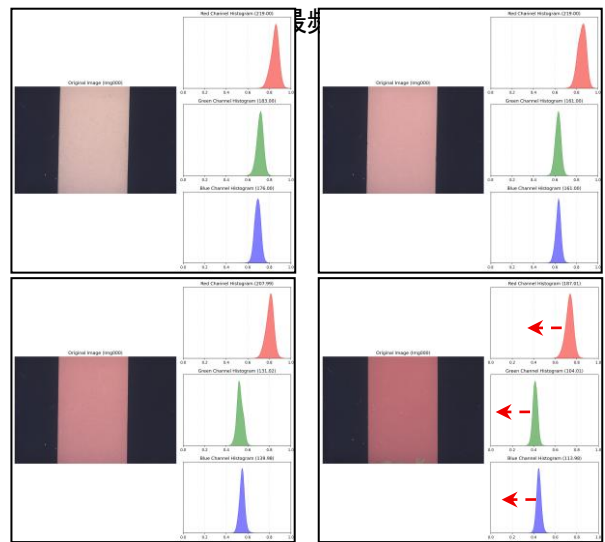


図6 タイル画像から取得したヒストグラムの例

2-3 色情報によるタイルの識別方法

取得した92枚のタイルに対し、それぞれ30回の撮影により得られたRGB平均値について、RGB空間における散布図を図7に示す。図7より、視覚的に類似した色合いのタイルはRGB空間上でも近接して分布するため、単純な距離指標では識別が困難であることが分かる。

そこで、統計的手法としてマハラノビス距離¹⁾およびカイ二乗分布を用いた識別手法を適用した。本研究で対象とするタイル画像では、照明条件や表面反射の影響によりRGB各成分が同時に変動する傾向があり、成分間に強い相関が生じる。このため、各成分を独立と仮定するユークリッド距離では色分布の特徴を適切に評価できない。そこ

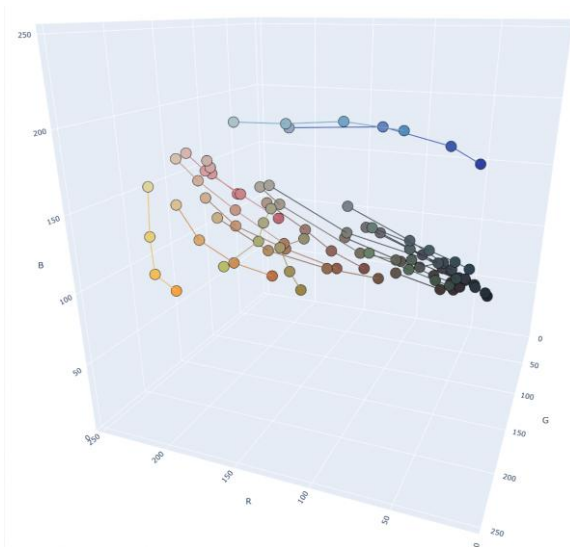


図7 RGB(最頻値)の散布図

で、分散共分散構造を考慮可能なマハラノビス距離を用いることとした。

まず、 $92 \times 30 = 2,760$ 枚の画像に対して、照明ムラ補正およびRAW現像処理を行った後、AIモデルの Segment Anything Model²⁾を用いてタイル領域を抽出した。次に、抽出したタイル領域の画素値分布に対して、各RGB成分の上下2%を外れ値として除去し、残りのデータからロバスト平均(16bit)を算出した。

各タイルについては、30枚の画像のうち29枚を用いてRGB平均ベクトルおよび分散共分散行列を求め、色分布モデルを構築した。これにより、23種類×4濃淡の計92個の分布データをデータベースとして構築し、残りの1枚を検証用データとして用いた。

未知のタイルに対しては、同様にRGB平均値を算出し、データベース内の各分布とのマハラノビス距離を計算した。最小距離を示す分布を最も類似したタイルと判定するとともに、その距離が所定の閾値以下である場合には、同一色分布に属すると判断した。

マハラノビス距離は自由度3のカイ二乗分布に従うため、本研究では信頼区間99%に対応する閾値として3.37 ($\chi^2_{0.01}(3) = 11.34$ の平方根)を採用し、この値以下であれば同一色と判定した。

3. 結果及び考察

3-1 実験

本手法の有効性を評価するため、図5に示す23

種類(計92枚)のタイルを対象として識別実験を行った。各タイルについて検証用データ1枚からRGB平均値を算出し、これと前章で構築した92個の色分布データ(平均値および分散共分散行列)との間でマハラノビス距離を計算した。

最小距離を示す分布を類似タイルと判定するとともに、その距離が閾値以下である場合には同一色分布に属すると判断し、本手法の識別性能を評価した。

3-2 実験結果

実験の結果、92枚の検証用データすべてにおいて、最小距離を示す分布を持つ類似タイルは検証用データと同一のタイルとなり、100%の正答率が得られた。

一方、同一のタイルが最小距離を示し、かつマハラノビス距離が閾値以下(同一色分布に属する)と判定されたタイルは92枚中89枚であり、識別率は97%であった。残りの3枚のタイルについては、閾値3.37に対してそれぞれ3.75、3.79、4.25と近い値を示した。これは、タイル表面の反射特性や照明条件のわずかな違いによりRGB各成分が同時に変動し、色分布が主に一方向に広がる傾向を有するため、分布境界付近に位置するデータがわずかに閾値を超えたためと考えられる。

なお、これらの値はいずれも閾値近傍に位置しており、本手法による識別の妥当性を損なうものではないと考えられる。

3-3 考察

さらに、色調および濃淡が近いタイルに対する識別性能を検証した。図8に示すように、018-2と150-1、018-8と150-4は赤系の色調で濃淡レベルも近いタイルである。また、500-4と555-4、500-1と555-1は灰色系の色調であり、同様に濃淡が近い組合せとなっている。なお、ハイフン以降の数値(1、2、4、8)は濃淡レベルを示し、数値が大きいほど色が濃いことを表す。

018、150、500、555の各タイルにおけるRGB値の散布図を図9に示す。図9より、018と150、および500と555のRGB値は互いに近接して分布しており、RGB値のみを用いた単純な比較ではこれらのタイルを識別することは困難であることが分かる。

そこで、図8に示す各タイルについて、マハラノビス距離に基づき上位5位までの類似タイルお

よびその距離を算出し、さらに信頼区間 99%に対応する閾値 3.37 以内に含まれるかどうかを評価した。結果を表 1～8 に示す。ここで表中の判定項目は、99%信頼区間を示す。

表 1～8 に示す結果より、すべてのタイルにおいて最小距離を示すタイルは対象タイルと一致しており、本手法により類似タイルの識別が可能であることが確認された。また、外観上類似した色合いを示すタイルについても、多くの場合で上位 5 位以内に含まれており、色分布の近さを適切に反映していることが分かる。

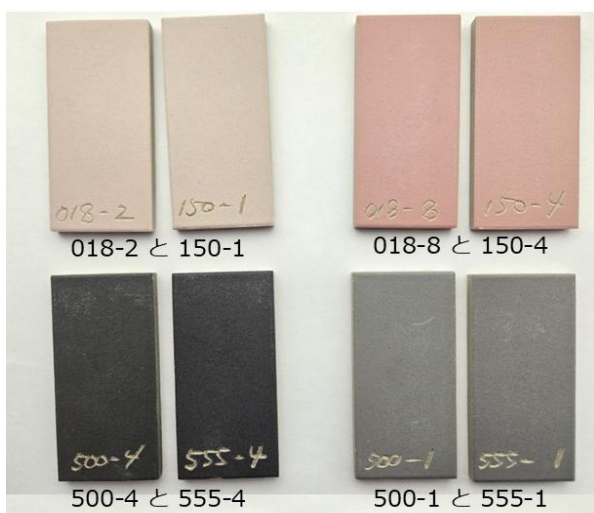


図8 対象としたタイル

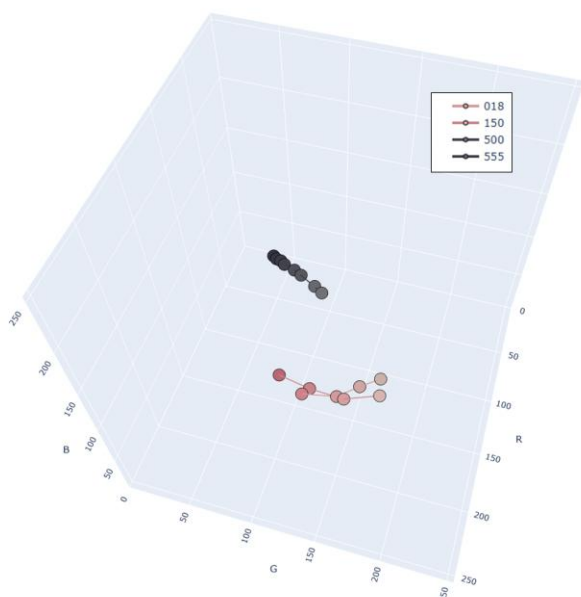


図9 色合いが類似したタイルの散布図

さらに、表 4 を除くタイルについては、同一タイルのマハラノビス距離が閾値 3.37 以下となり、同一色分布として適切に判定された。一方で、表 4 に示す 150-4 のタイルについては、最小距離であるにもかかわらずマハラノビス距離が閾値をわずかに上回る結果となった。これは、タイル表面の反射特性や撮影時の微小な条件変動により RGB 値が分布境界付近に位置したためと考えられる。

以上の結果より、RGB 値のみでは識別が困難な類似色タイルに対しても、分散共分散構造を考慮したマハラノビス距離を用いることで、色分布に基づく高精度な識別が可能であることが示された。

表1 タイル 018-2 に近い色合いのタイル

順位	データベース	マハラノビス距離	判定
1	018-2	0.717689	OK
2	441-1	17.566023	NG
3	441-2	26.723390	NG
4	H150-2	36.107611	NG
5	H150-1	45.265640	NG

表2 タイル 150-1 に近い色合いのタイル

順位	データベース	マハラノビス距離	判定
1	150-1	1.252667	OK
2	441-1	10.708243	NG
3	018-2	27.270883	NG
4	H150-2	29.003849	NG
5	440-1	31.444923	NG

表3 タイル 018-8 に近い色合いのタイル

順位	データベース	マハラノビス距離	判定
1	018-8	0.937513	OK
2	150-4	58.139968	NG
3	441-1	71.219069	NG
4	H150-2	80.642956	NG
5	441-2	83.011935	NG

表4 タイル 150-4 に近い色合いのタイル

順位	データベース	マハラノビス距離	判定
1	150-4	3.786901	NG
2	018-8	35.223991	NG
3	018-4	58.614260	NG
4	441-1	59.975506	NG
5	441-2	66.330023	NG

表5 タイル 500-4 に近い色合いのタイル

順位	データベース	マハラノビス距離	判定
1	500-4	1.608845	OK
2	555-4	16.021640	NG
3	NJ24-1	20.338573	NG
4	NJ24-8	22.129019	NG
5	NJ24-4	23.141951	NG

表6 タイル 555-4 に近い色合いのタイル

順位	データベース	マハラノビス距離	判定
1	555-4	2.929594	OK
2	500-8	12.585164	NG
3	NJ24-4	21.384520	NG
4	NJ24-1	22.431901	NG
5	H150-2	25.044973	NG

表7 タイル 500-1 に近い色合いのタイル

順位	データベース	マハラノビス距離	判定
1	500-1	1.434526	OK
2	555-1	13.627805	NG
3	NJ24-1	15.073492	NG
4	NJ24-8	18.088272	NG
5	H150-1	20.979808	NG

表8 タイル 555-1 に近い色合いのタイル

順位	データベース	マハラノビス距離	判定
1	555_1	2.217234	OK
2	NJ24_1	17.488666	NG
3	NJ24_8	18.953978	NG
4	H150_1	23.058012	NG
5	H150_2	23.727975	NG

4. まとめ

本研究では、外壁タイルの補修における色合

せの効率化を目的として、カメラ画像を用いたタイルの色情報取得および統計的手法による識別技術の開発を行った。

まず、フラットドーム照明および撮影条件を固定した撮像環境を構築し、RAW 画像を用いた明るさ補正および照明ムラ補正により、再現性の高い色情報の取得を行った。さらに、Segment Anything Model を用いたタイル領域抽出および外れ値除去を行い、RGB 値のロバスト平均を算出した。

次に、各タイルの RGB 平均値および分散共分散行列から色分布モデルを構築し、マハラノビス距離を用いた識別手法を適用した。その結果、92 枚すべてのタイルにおいて最小距離による識別は 100% の正答率を示し、さらに同一色分布の判定においても 97% の高い識別率が得られた。

また、RGB 値のみでは識別が困難な類似色タイルに対しても、本手法により適切に識別できることを確認した。これは、RGB 各成分の相関を考慮した分散共分散構造を用いることで、色分布の違いをより適切に評価できたためと考えられる。

以上の結果より、本手法は外観上類似したタイルに対しても高精度な色識別が可能であり、外壁タイル補修における色合わせ作業の効率化および客観化に有効であることが示された。

これまで同一タイルを回転・移動させて複数回撮影することで色分布を評価してきたが、今後は実際の製造ばらつきを考慮し、同一色とされる複数枚（例えば 100 枚程度）のタイルを対象とした撮影および評価を行う。これにより、個体差を含む実製品の色分布特性を反映したデータに基づき、本手法の有効性をより実用的な条件下で検証する。

【謝 辞】

本研究に使用したタイルをご提供くださいました杉浦製陶株式会社に謝意を表します。

【参考文献】

- 1) R. De Maesschalck, et al.: "The mahalanobis distance." Chemometrics and intelligent laboratory systems, Vol.50, No.1, pp.1-18,2000.
- 2) Kirillov, Alexander, et al.: "Segment anything." arXiv preprint arXiv:2304.02643,2023.

タイルの新しい製造技術に関する研究 (第1報)

安達直己・伊藤正剛・加藤弘二

Advanced Manufacturing Technologies for Ceramic Tile Production (I)

Naoki ADACHI, Sadataka ITO and Koji KATO

本研究は、施釉工程を省略しレリーフ表現も可能なセルフグレーズをタイルに応用するため、原料調合およびプレス成形方法を検討した。食器系の最適条件を出発点にタイル用原料へ置き換え、調合はゼーゲル式と非負条件付き最小二乗法で比較した。その結果、後者の調合ではセルフグレーズ化したタイルを試作できた。さらに、プレス成形法を検討したところ、フルレイヤープレス法が亀裂の抑制に優れていることが分かった。

1. 緒言

近年、タイル業界、とりわけモザイクタイルを含む小形タイル分野は厳しい局面が続いている。経済産業省「生産動態統計(窯業・建材)」¹⁾でも、タイル各区分の生産・販売が縮小しており、需要の低下が継続しているとみられる。実際、同統計を基に整理された年次実績(全国陶磁器生産実績)を確認すると、タイル全体の生産量(内装タイル、外装タイル、床タイル、モザイクタイルの合計)はコロナ前(2019年: 17,879,286 m²)²⁾に対し、直近(2024年: 10,655,002 m²)¹⁾で約60%の水準まで低下している。このような背景から、タイル製造の効率化や生産コストの見直しが必要となっている。同時に、タイルの競争力を左右する意匠の高度化(質感・光沢・表面表情の設計自由度と再現性の向上)も求められており、「製造コストの見直し」と「意匠の高度化」の両立を実現するプロセス技術が必要となる。

当所ではこれまで、陶磁器製の飲食器などを対象に、施釉工程を必要とせず、レリーフ(凹凸)表現も可能なセルフグレーズ(自己施釉)化磁器の検討を進めてきた^{3)~5)}。セルフグレーズは、焼成時に素地の表層を中心にガラス相を発達させて溶融・平滑化し、施釉なしで光沢層を自己形成させる方法である。適切な組成と焼成条件により、レリーフなどの凹凸をそのまま活かしながら光沢形成と素地の透光性を両立できることが特徴である。これまでに、圧力鋳込み等を通じて、レリーフを特徴とした食器や、透光性を活かした試作品の作製にも取り組んできた。

本研究では、これまで食器で培ってきたセルフグレーズの知見をタイルへ応用する。タイル用途では、原料を多段で投入するプロセス設計を取り入れつつ、施釉工程そのものを省略することで工程短縮とコスト抑制を図る。食器においては焼成腰とガラス化の両立が技術的課題であったが、タイルでは同水準の焼成腰は必ずしも要求されない。この前提のもと、施釉工程の省略とレリーフ意匠の両立を目的に、タイル用途に見合うセルフグレーズ層の調合とプレス方法を検討した。

2. 実験方法

2-1 従来技術の再現

従来の食器用セルフグレーズの調合素地を出発点とし、タイルへの応用に向けた成形・焼成の手順を整備したうえで、焼成温度の違いによる溶融挙動と、タイル素地との適合性を確認した。タイル素地は一般的な並白土を用い、セルフグレーズ層には食器で用いてきた従来の調合素地を適用した。セルフグレーズ層用原料を玉石入りポットに仕込み、同じ重量の水を加えて24時間のボールミルを行った後、60℃で乾燥させ得られた粉体を乳鉢・乳棒により粉碎した。続いて、得られた粉体に対して水を10 mass%加え、造粒してプレス成形に用いる顆粒粉を作製した。一軸加圧プレス機を用い400 kgf/cm²で加圧して成形体を作製した。素地とセルフグレーズ層の二層プレスの方法については後述する。得られた成形体は100℃/hで昇温後、1250℃で1時間保持して焼成した。焼成後は試作品の表面を観察し、セルフグレーズ層の溶融

状態を評価した。さらに、ベース土と珪石の調合比を変えて、成形体の作製と焼成を行い、最適な条件となるように検討した。

2-2 セルフグレーズ層の調合変更

セルフグレーズ層について、タイルにあった組成へ切り替えるとともに、セルフグレーズ化に寄与する溶融成分系については、タイル製造コストを見据えた原料構成へ見直した。ベースとなる並白土との適合性を高めつつ、焼成時にセルフグレーズ化する調合の検討を行った。

原料調製および顆粒化の手順は前項と同一とし、セルフグレーズ層の顆粒粉を作製した。タイル素地には一般的な並白土を用い、プレス成形および焼成条件は前項と同一とした。

新たな調合設計は二つのアプローチで進めた。まず、前項で得られたセルフグレーズ層の最適調合について、蛍光 X 線分析により化学組成（定量・半定量）を把握した。そのうえで、第一の方法として化学組成をゼーゲル式とした後、ゼーゲル式に当てはまるよう使用する原料比率を求めた。第二の方法としては、同じ分析結果を出発点に、非負条件付き最小二乗法で目標組成に最も近い調合比を推定した。各方法で得られた調合に基づいて顆粒粉を調製し、前項と同一条件でプレス成形・焼成してタイル試作品を作製した。試作品については、表面状態（光沢・平滑性）、界面のなじみ（剥離・クラックの有無）、反りの有無を評価した。

2-3 プレス成形方法の検討

二層成形の検討にあたり、「ステッププレス法」および「フルレイヤープレス法」と呼ばれる二通りの方法を検討した。

ステッププレス法は、タイル素地の顆粒粉を金型に充填し軽圧で予備加圧して一次層を形成したのち、上型を開放してセルフグレーズ顆粒を上層に追加充填し、目的とする圧力で加圧する手順である。すなわち、(一) 素地層の投入・摺り切り、(二) 予圧（低荷重での加圧）、(三) 上型開放・セルフグレーズ層の投入・摺り切り、(四) 本圧（規定荷重での加圧）、(五) 脱型、の順に実施した。予圧は層界面の平坦化と上層の均一充填を目的とし、層厚比は成形後の総厚に対して所定の範囲で調整した。

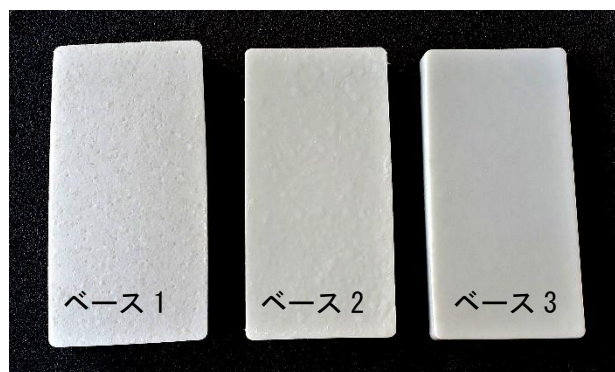


図1 食器ベースの原料で試作したタイル

フルレイヤープレス法は、金型内で素地層、セルフグレーズ層の順に充填し、一度に目的の圧力を与える手順である。具体的には、(一) 素地層の投入・摺り切り、(二) セルフグレーズ層の投入・摺り切り、(三) 本圧（規定荷重での一括加圧）、(四) 脱型、の順に行った。途中に予圧工程を設けず、層間の圧密と界面形成を一回の本圧で完結させる点がステッププレス法と異なる。それぞれ作製した成形体は、前項と同一の焼成条件で処理した。試作した各タイルは、表面状態（光沢・平滑性）、界面のなじみ（剥離・クラックの有無）、反りの有無を評価した。

3. 結果および考察

3-1 従来技術の再現

セルフグレーズ食器の最適条件を出発点として、タイルの並白素地上で二層成形によるタイル試作を行った。図1には、食器の最適条件を基準として試作したタイル（ベース1）と、そこから珪石を段階的に低減し、食器坯土を増加させた試作タイル（ベース2、ベース3）を示す。まず、ベース1では表面がセルフグレーズ化せず、白色のざらつきが残り光沢は認められなかった。珪石比率を順次下げたところ、珪石を7 mass% 減らし、坯土を7 mass% 増やした。タイル（ベース2）はざらつきが緩和し、わずかに光沢がみられた。さらに珪石を9 mass% 減らし、坯土を9 mass% 増やしたタイル（ベース3）では明瞭な光沢が観察された。このとき並白素地との界面は良好で、剥離や亀裂は認められなかった。以上より、本条件では界面・形状は安定しやすく、光沢は珪石比率が大きく影響することが分かった。

3-2 タイル原料をベースとした調合変更

これまでの食器用をベースとしたセルフグレーズ調合からタイルベースの調合に変更すべく、原料の選定を行った。主要原料である食器用白磁土の坯土からタイル用特白原料に変更し、コスト面を考慮して熔融材料の選定を実施した。プレス方法はいずれも、フルレイヤープレス法にて行った。

タイル原料ベースの調合をゼーゲル式にて算出し、セルフグレーズ原料の調合を行った。プレス成形後に 1250℃で 1 時間焼成を行った結果、図 2 に示すタイルとなった。試作したタイルは、食器用のセルフグレーズ原料の試作品と異なり、セルフグレーズ化が不十分で、表面は白色マット調で、表面はざらついておりクラックも観察された。また、図 2 右に示すように、タイルは太鼓状に変形し、さらにベースの並白土とセルフグレーズ層に亀裂が発生した。このような結果から、ゼーゲル式による調合検討は不適であると判断した。

次に、非負条件付き最小二乗法で算出した調合によりタイル用セルフグレーズ原料の調合を行った。試作タイルを図 3 に示す。図 3 のとおりタイル表面は平滑で明瞭な光沢があり、側面外観の観察でも、ベースのタイルとセルフグレーズ層の界面に亀裂は認められなかった。ただし、わずかな反りが観察された。

このタイルの断面を電子顕微鏡で観察した。図 4 に、研磨した断面を 100 倍で観察した結果を示す。ベースの並白土とセルフグレーズ層の界面は連続で、一体化した状態であることが観察された。また、セルフグレーズ層には丸みを帯びた微小気泡が点在していることから、セルフグレーズ層が軟化・流動し、再凝固したと思われる。以上より、非負条件付き最小二乗に基づく調合は、外観と界面の両面で良好な結果となった。

試作タイルの反りの原因を検証するために熱膨



図 2 ゼーゲル式を用いて原料調合したタイル
左：上面外観、右：側面外観

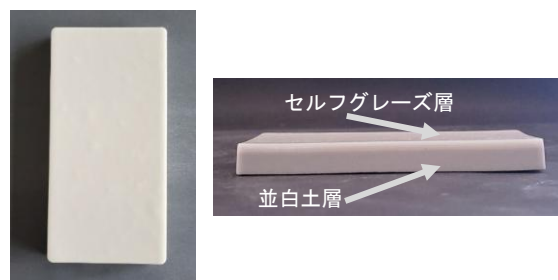


図 3 最小二乗法を用いて原料調合したタイル
左：上面外観、右：側面外観

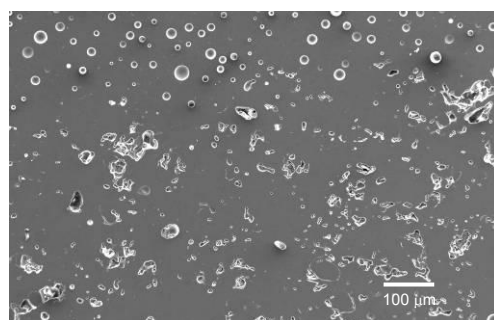


図 4 電子顕微鏡による断面観察結果

張測定（室温～800℃、昇温速度 10℃/min）を行った。その結果を図 5 に示す。セルフグレーズ層の線膨張係数は並白素地より小さいことからセルフグレーズ層に圧縮応力がかかっていると思われる。その結果として、ほとんど反りのないタイルが得られたと考えられる。

3-3 成形体および焼成体の物性評価

本研究の技術的に重要である二層プレスに関して、最適なプレス成形方法を検討した。図 6 にステッププレス法で作製した成形体（上）と焼成体（下）を、図 7 にフルレイヤープレス法で作製した成形体（上）と焼成体（下）を示す。ステッププレス法では、図 6 のとおり成形体段階の層界面は直線的で層がきれいに分かれているが、焼成体では界面に亀裂が観察された。これに対しフルレイヤープレス法では、図 7 のとおりタイルの並白素地とセルフグレーズ層の界面は成形体段階ではばらつきもあるものの、焼成体では図 6 で見られたような亀裂は認められず、セルフグレーズ層が一体となったタイルを得ることができた。この差は、プレス時の加圧の与え方の違いが界面の性状に影響したと考えられる。ステッププレス法では、

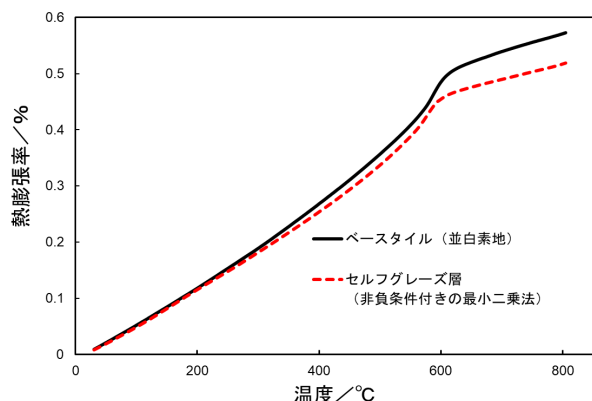
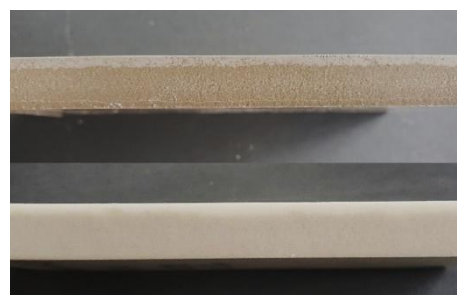


図5 並白素地とセルフグレイズ層の熱膨張曲線

並白素地を先に予圧で締めたのちに積層させるため、界面がはっきり分かれた状態のまま焼結過程に移行し、焼結過程での線膨張差や収縮率の差が界面に直接現れて剥離したと思われる。これに対しフルレイヤープレス法では、一度に目的圧力で上下層を同時に締め固めることで界面付近に両層がわずかに入り混じる薄い帯が形成され、密着性が良くなり割れや線状不連続の発生が抑えられたと考えられる。

4. まとめ

本研究では、施釉工程を省略しレリーフ表現も可能なセルフグレイズをタイルへ応用することを目的に、原料調合、プレス成形法、焼成について検討した。食器系の最適条件を出発点に検討し、タイル用のセルフグレイズ層が得られることを確認した。この化学組成をもとにして、タイル用原料へ置き換えを2通りの手法で検討した。ゼーゲル式を基にした調合では、セルフグレイズ化が不十分で亀裂・反りを発生したのに対し、非負条件付き最小二乗で導いた調合は表面平滑・光沢と界面の密着性に関して良好な結果が得られた。断面観察の結果、連続した界面と表層の微小気泡が観察され、セルフグレイズ層のガラス化が示されるとともに、並白素地との界面が良好であることが確認できた。プレス成形法は、ステッププレス法とフルレイヤープレス法を検討した。ステッププレス法は焼成後に並白素地とセルフグレイズ層の

図6 ステッププレス法で作製したタイル
上：成形体、下：焼成体図7 フルレイヤープレス法で作製したタイル
上：成形体、下：焼成体

界面に亀裂が観察されたが、フルレイヤープレス法ではこれらの亀裂を抑制できた。本研究の結果から、非負条件付き最小二乗による調合とフルレイヤープレス法の組み合わせにより、セルフグレイズタイルを作製できることが分かった。

【参考文献】

- 1) 経済産業省, 「生産動態統計(窯業・建材)」, 2024年版
- 2) 経済産業省, 「生産動態統計(窯業・建材)」, 2019年版
- 3) 伊藤正剛ら: 岐阜県セラミックス研究所報告, pp.27 (2015)
- 4) 伊藤正剛ら: 岐阜県セラミックス研究所報告, pp.25-26 (2016)
- 5) 安達直己ら: 岐阜県セラミックス研究所報告, pp.23-26 (2017)

レオメータを用いた陶磁器リサイクル粉末の分散性評価

立石賢司・加藤弘二・倉知一正

Evaluation of Dispersibility of Recycled Ceramic Powder Using Rheometer

Kenji TATEISHI, Koji KATO and Kazumasa KURACHI

本研究では、美濃焼産地で生産されているリサイクル食器の原料となる使用済み陶磁器食器のリサイクル粉末の分散挙動を、レオメータを用いて評価した。平均粒子径 $16\mu\text{m}$ 程度のリサイクル粉末の場合、そのスラリーは静置すると直ちに沈降して固まるが、振動を与えることで流動性を速やかに回復する性質を示した。この分散挙動についてレオメータを用いて測定、静置、測定を繰り返した際の見掛け粘度の時間変化等から評価した。高分子分散剤を添加したスラリーでは、静置・沈降による見掛け粘度の時間変化が小さく、粒子の沈降が抑制されることがわかった。

1. 緒 言

美濃焼産地では、使用済み陶磁器食器を回収し、粉砕による原料化（以下、リサイクル粉末）を行った後、坏土へ 20mass%または 50mass%配合し、リサイクル陶磁器食器（Re-食器）として再生している。

美濃焼産地の坏土中の鉱物組成は、カオリン鉱物、カリ長石、石英がそれぞれ約 1/3 となるように配合されている。Re-食器用の坏土では、この配合率に応じた量のリサイクル粉末が加わる。鋳込み成形等の陶磁器の製造工程において、粒子の分散性は製品の成形性や歩留まり、焼成後の寸法精度に重要な影響を及ぼす。特にリサイクル粉末を多量に配合する場合、従来の坏土とは異なる流動性や凝集状態を示す可能性があるため、その分散挙動を把握することは必要不可欠である。しかしながらリサイクル粉末の分散挙動についてはあまりよく知られていない。

そこで、本研究ではレオメータを用いて、リサイクル粉末の分散性の評価を試みた。

2. 実験方法

使用したリサイクル粉末の化学組成、および比較対照としてのリサイクル粉末の平均化学組成（ $N=16$ ）を表 1 に示す。使用したリサイクル粉末は平均値と同様の成分であることがわかる。X 線回折図形を図 1 に示す。X 線回折図形にはムライトと石英のピークのほか、 $2\theta=15^\circ\sim 35^\circ$ 付近にか

けてバックグラウンドの緩やかな上昇（ハロー）が確認され、非晶質のガラス相が含まれることから、使用したリサイクル粉末の鉱物組成はムライト、石英、ガラス相で構成されていることが確認できた。レオメータ測定に使用したリサイクル粉末はボールミルにより湿式粉砕し、図 2 に示す平均粒子径 $16\mu\text{m}$ の粒度に調整した。レオメータでの測定に用いたスラリーはリサイクル粉末 70mass%、水分＋分散剤を 30mass%とした。高分子分散剤（ポリカルボン酸ナトリウム塩、SN ディスパーサント#5040）は粉末に対して 0、0.3、1.0、2.0mass%添加した。レオメータは TA インストルメント製 Discovery H20 を使用し、40mm ϕ パラレルプレートを用い、ギャップ 1.0mm、せん断速度

表 1 使用したリサイクル粉末の化学組成

成分名	使用したリサイクル 粉末(mass%)	平均値($N=16$) (mass%)
SiO ₂	71.4	72.1
Al ₂ O ₃	20.6	20.3
Fe ₂ O ₃	0.79	0.76
TiO ₂	0.26	0.26
CaO	0.96	0.98
MgO	0.40	0.35
K ₂ O	3.49	3.64
Na ₂ O	0.96	1.04
Ig. Loss	0.54	0.23

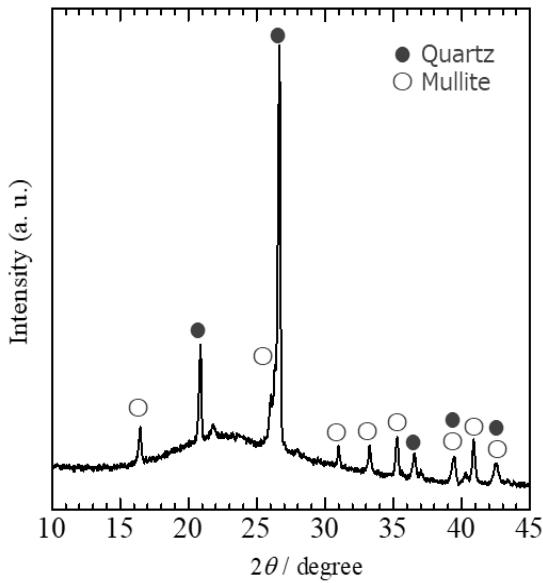


図1 リサイクル粉末のX線回折図形

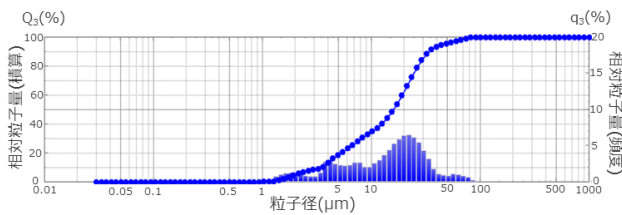


図2 使用したリサイクル粉末の粒度分布

300s⁻¹、温度 25℃、測定時間 60 秒の条件で測定を行った。

測定については2回繰り返して行い、初回測定の後、60 秒間静置して2回目の測定を開始した。

3. 結果及び考察

図3に分散剤 0mass%のスラリーの見掛け粘度の測定結果を示す。このスラリーは静置すると速やかに沈降し固まるが、振動を与えることで流動性を速やかに回復する性質を示す。図3の初回測定の見掛け粘度を見ると60秒後の見掛け粘度は0.034Pa・sである。60秒静置後の2回目測定では初回測定終了時の見掛け粘度に比べて低い0.017Pa・sから始まり、20秒後まで見掛け粘度は上昇し、その後はほぼ一定となり60秒後には0.031Pa・sとなっている。これらの挙動について考察する。図4に模式図を示す。①初回測定の60秒後はプレートの回転(攪拌)によりスラリーが攪拌されているため粒子濃度は均一である。②60秒間静置

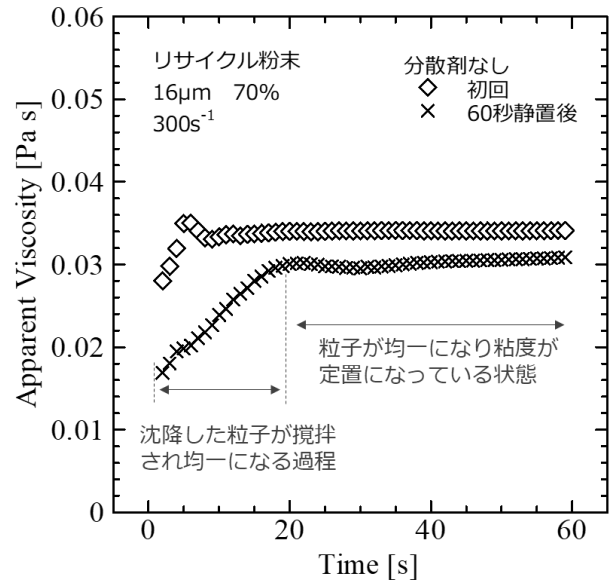


図3 分散剤を添加していないスラリーにおける見掛け粘度の時間変化

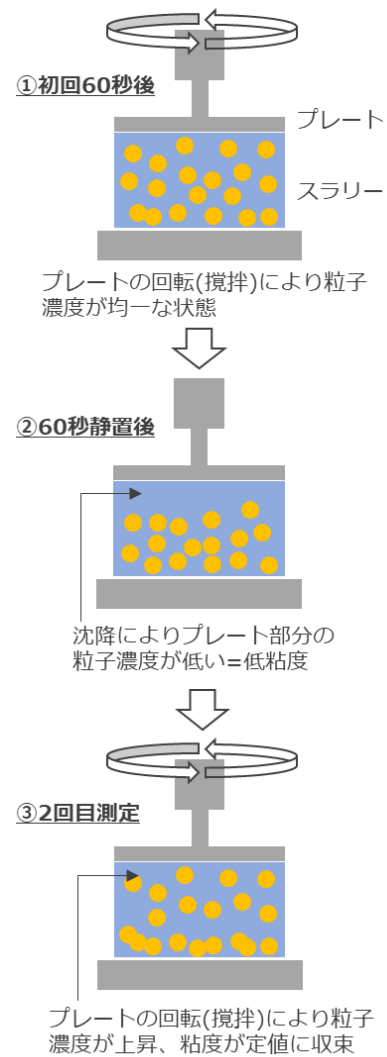


図4 スラリーの分散挙動の模式図

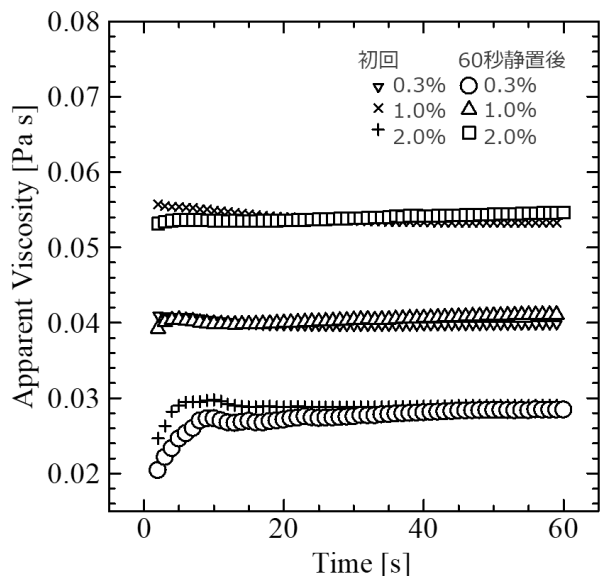


図5 種々量分散剤を添加したスラリーにおける見掛け粘度の時間変化

の間に粒子は沈降する。③2回目測定の開始時は、プレート部分の粒子濃度が低いため見掛け粘度も低い、攪拌により粒子濃度は均一になるため一定値に収束する。測定された見掛け粘度の時間変化が、図4に模式的に示した粒子の沈降状態を説明していると仮定すると、分散剤の添加により粒子の沈降が抑制される場合、2回目の測定開始時における見掛け粘度の低下は少なく（沈降しなければ見掛け粘度は変化しない）、定値に収束するまでの時間も短くなると考えられる。

そこで高分子分散剤 0.3～2.0mass%を添加したスラリーで同様の評価を行った。その結果を図5に示す。図5より高分子分散剤の添加によって、初回終了時と60秒間静置後の測定開始時の見掛け粘度の変化が小さくなっている様子がわかる。また、沈降した粒子が攪拌により均一になる時間（見掛け粘度が定値になるまでの時間。分散剤なしでは約20秒）も分散剤の添加によって短くなった。これらの結果から、リサイクル粉末に対して高分子分散剤が吸着し、粒子が分散したこと、またそれによりストークスの式に基づく沈降速度が抑制されたことが示唆された。

4. まとめ

本研究では、美濃焼のリサイクル食器の原料となるリサイクル粉末の分散挙動を、レオメータを用いて評価した。平均粒子径 $16\mu\text{m}$ 程度のリサイクル粉末の場合、そのスラリーは静置すると直ちに沈降し固まるが、振動を与えることで流動性を速やかに回復する性質を示した。この沈降挙動を「静置前後の見掛け粘度の時間変化」として捉えた結果、高分子分散剤を添加したスラリーでは、静置・沈降による見掛け粘度の時間変化が小さく、粒子の沈降が抑制されることがわかった。

【参考文献】

- 1) 立石賢司：”グリーンライフ21の取り組みとリサイクル素地、釉薬の開発” 粉体技術, Vol.18 No.3 pp.224-229 (2026)

陶磁器製品の低温焼成に関する研究 (第1報)

加藤弘二・伊藤正剛・安達直己

Research on Low-Temperature Firing Porcelain Bodies (I)

Koji KATO, Sadataka ITO and Naoki ADACHI

磁器製品の低温焼成を目的として、従来の磁器坯土の特性を把握し、原料配合の変更による焼成温度低下を検討した。具体的には、各社が販売している磁器坯土の化学分析値及び粒度分布において、顕著な差異が認められないことを確認した。その結果を踏まえ、長石分のナトリウム成分を増加させる配合とすることで、酸化焼成で 1200℃ 焼成にて磁器化する低温焼成磁器坯土を作製した。

1. 緒言

陶磁器製品の主な製造プロセスは、原料調製、成形、焼成を経て製品化される。昨年、製造段階における陶磁器・タイルの二酸化炭素排出量を評価したところ、焼成工程で製造段階の約 8 割の排出量を占めることがわかった。¹⁾ これにより焼成工程の二酸化炭素排出量を削減することが陶磁器製品の環境負荷低減に繋がる。その具体的な方法として、低温焼成が地球温暖化ガス排出の抑制や省エネルギー化に貢献する有効な技術として位置付けられている。美濃焼の一般的な磁器製品は、酸化焼成で 1250～1280℃、還元焼成 1280～1320℃とされている。この焼成温度を低下させることは、環境貢献に寄与すると考えられる。

一方、陶磁器は、原料調製、成形、焼成と様々な工程を経て製品化されており、特に美濃焼業界は大量生産可能な地域として、原料調製、釉薬調製、石膏型成形など様々なプロセスをそれぞれ専門に扱う企業が担っている。原料調製は、製土メーカーが、釉薬調製は釉薬メーカーが、成形時に使う石膏型成型は型メーカーが、成形や焼成は製造メーカーがそれぞれ行っている。この分業体制が確立された中で、低温焼成を実現するためには、原料配合の再検討、焼成収縮を考慮した石膏型の寸法の再設計、釉薬の最適化など陶磁器製造工程全体を考慮した上で実施する必要がある。

本研究では、媒溶剤である長石に着目し、磁器坯土の化学分析からカリ長石、ソーダ長石の比率を算出し、より低い温度で融けるソーダ長石の割

合を多くした配合を検討し^{2,3)}、焼成による素地の収縮率、焼成素地の熱膨張を考慮に入れた、従来の焼成温度より低温で焼結する原料配合を検討した。

2. 実験方法

2-1 従来磁器坯土の特性

一般的に並土と呼ばれる磁器製の食器を製造するための磁器坯土を 3 社から購入し、粉末状に粉碎した原料を、化学分析 (ZSX Primus IV、(株) リガク製)、粒度分布 (SALD-2200 (株) 島津製作所) にて測定した。また、これらの原料を、鋳込み成形にて 2x7x0.5cm の矩形を成形した。その後、所定温度で焼成した試験体の焼成収縮率、吸水率 (アルキメデス法)、かさ密度 (アルキメデス法)、曲げ強度 (AC-50KN-C (株) ティー・エス・イー)、熱膨張係数 (TD-5110S (株) マックサイエンス) を測定した。

2-2 磁器坯土の改良

2-1 の実験から得られた化学分析値から、ノルム計算により、粘土-長石-珪石の配合割合を算出した。また、計算により得られたカリ及びソーダ長石から、ソーダ長石の多い調査を推定し、計 2 種類の原料配合を検討した。

2-3 改良磁器坯土の特性

2-2 で得られた 2 種類の改良した磁器坯土を 2-1 と同様に、鋳込み成形にて矩形を成形し、

所定温度で焼成した時の収縮率、吸水率、かさ密度、曲げ強度、熱膨張係数を測定した。

3. 結果及び考察

3-1 従来磁器坯土の特性

従来磁器坯土の化学分析及び粒度分布測定を表1に示す。また、化学分析値からノルム計算による粘土-長石-石英の割合を表2に示す。3社の鉱物組成割合の粘土:長石:珪石=30:40:30に大きな違いはなく、表2の(カリ長石):{(ソーダ+灰)長石+その他}の割合は約24:16であった。

図1～3にA社、B社、C社の焼成収縮率、吸

表1 従来坯土の化学分析値及び平均粒径

	(mass%)									平均粒径 (μm)
	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	K ₂ O	Na ₂ O	Ig.Loss	
A社	68.5	19.7	0.65	0.29	0.47	0.12	4.05	1.42	4.47	A社 8.6
B社	69.4	19.3	0.55	0.26	0.56	0.14	3.83	1.20	4.34	B社 7.9
C社	68.7	19.5	0.61	0.28	0.51	0.12	4.14	1.52	4.50	C社 8.6

表2 ノルム計算による鉱物組成

	(mass%)				
	粘土鉱物	カリ長石	(ソーダ+灰)長石	石英	その他
A社	30.7	24.0	14.3	29.4	1.2
B社	30.8	22.7	13.0	32.2	1.0
C社	29.4	24.5	15.4	29.2	1.4

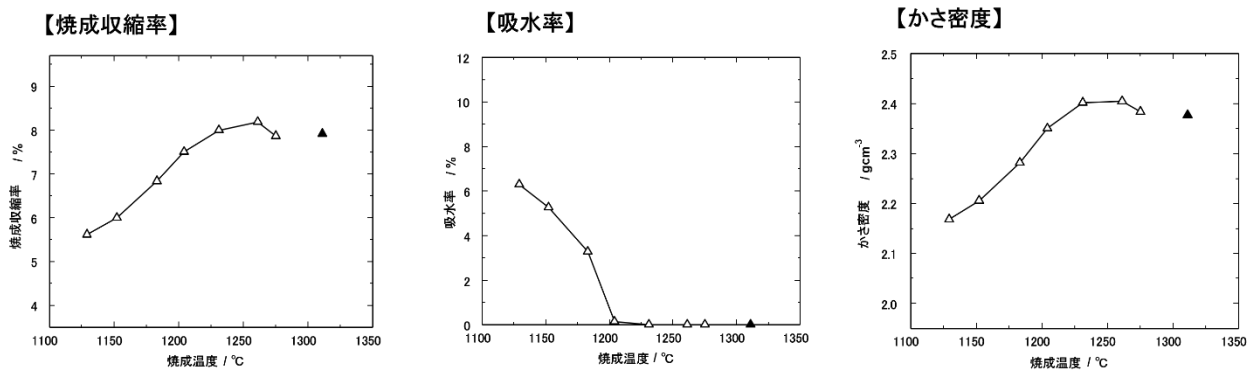


図1 A社の焼成収縮率、吸水率、かさ密度

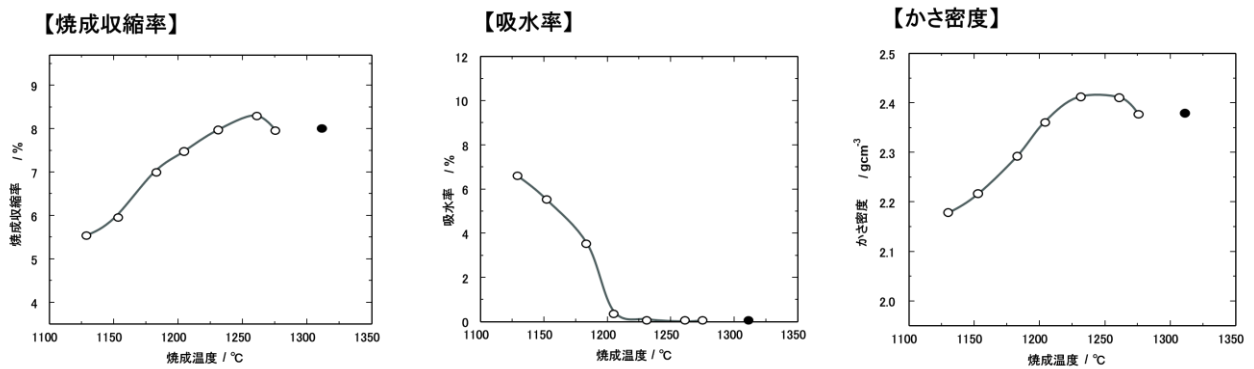


図2 B社の焼成収縮率、吸水率、かさ密度

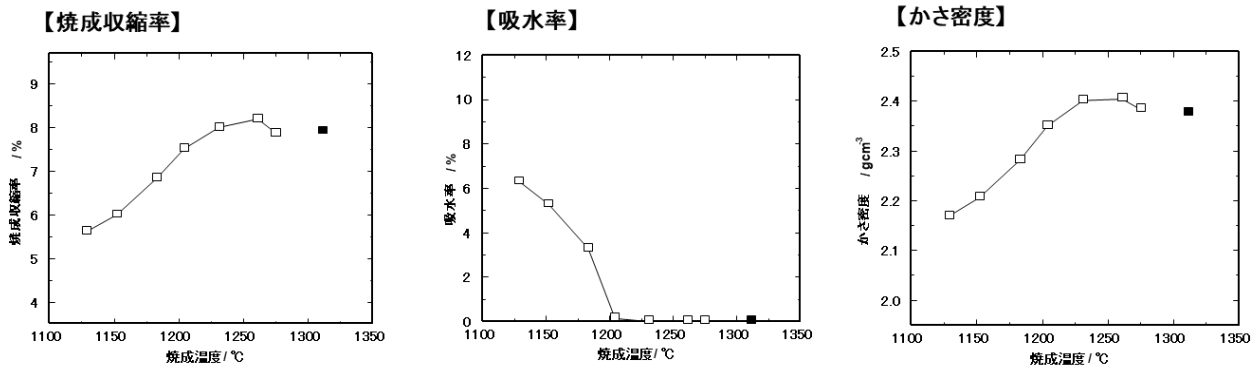


図3 C社の焼成収縮率、吸水率、かさ密度

水率およびかさ密度の結果を示す。どれも白抜きが酸化焼成、黒点が還元焼成である。A, B, C 社はいずれも酸化焼成 1200℃にて吸水率がほぼ 0% となり、1250℃でかさ密度は 2.4g/cm³、焼成収縮率は 8.2%と最高値となった。

図 4 及び図 5 に A, B, C 社の熱膨張係数及び曲げ強度の結果を示す。いずれも 1250℃酸化焼成において、熱膨張係数は 7.1 及び 7.2×10⁻⁶ K⁻¹を示し、1200℃焼成では、7.5～7.9×10⁻⁶ K⁻¹に増加した。また、図 5 の曲げ強度では、1250℃酸化焼成で 73-75MPa を示し、1200℃では 62-65MPa に低下した。1200℃酸化焼成では、吸水率はほぼ 0% であるが、強度は低下し、熱膨張係数は増加した。

図 1~5 までの結果から、これらの磁器坏土は酸

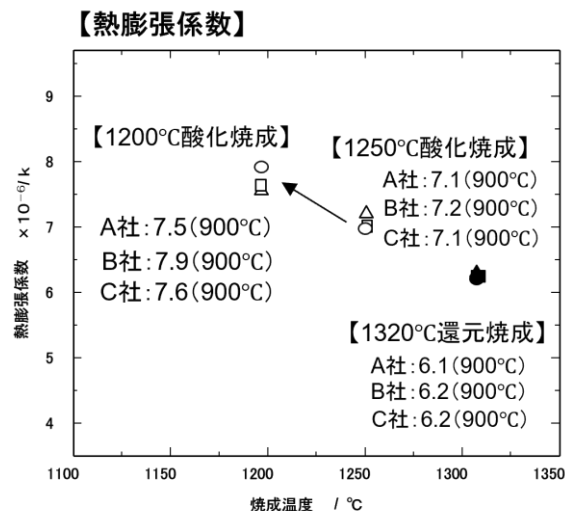


図 4 A, B, C 社の熱膨張係数

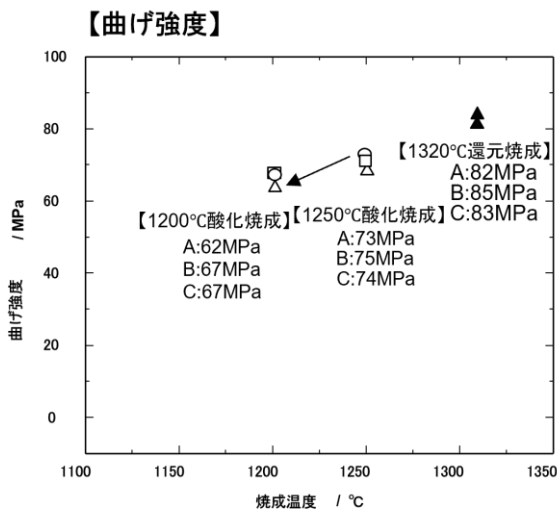


図 5 A, B, C 社の曲げ強度

化焼成 1250℃が最適焼成温度であり、約 1200～1280℃まで適用できる磁器坏土であることを確認した。

3-2 低温焼成磁器坏土の作製

低温焼成磁器坏土を作製するにあたり、従来磁器坏土の原料配合から改良することを念頭に、従来磁器坏土の原料配合を粘土:長石:珪石=30:40:30、カリ長石:ソーダ長石=24:16の割合となるよう原料配合の検討を行った。使用した原料は、本山蛙目粘土、福島長石、そうけい、けい砂の4種である。表 3 に従来磁器の原料配合割合を示す。ここから、ソーダ長石の割合を多くした低温焼成磁器坏土の原料配合を検討した。なお、ソーダ長石として中国ソーダ長石を使用した。表 4 に低温焼成磁器坏土2種類の原料配合を示す。①はカリ長石:ソーダ長石=16:24、②は 20:20 とした。

これらの低温磁器坏土について、従来磁器坏土と同様に焼成収縮率、吸水率、かさ密度、熱膨張係数、曲げ強度を測定した結果をそれぞれ図 6～図 10 に示す。なお、図中には、従来磁器坏土の特性を参考にしつつ、低温焼成磁器坏土を 1150℃で焼成した際の目標値を★印として示す。1200℃焼成では、ほぼ目標に近い数値であったが、1150℃焼成では、吸水率が 0%でなく、焼成収縮率、かさ密度、曲げ強度の結果から、十分に焼結していないと考えられる。ナトリウムが多い中国ソーダ長石の方がカリ長石よりも低めの温度で溶けやすいことを利用し、1150℃焼成で磁器化する低温焼成坏土を想定したが、目的の数値には届かなかった。この理由は、推定ではあるが、使用した中国ソーダ長石の配合割合が少なく、素地の低温化までに至らなかったこと、粘土以外の配合原料を先に粉碎したが、粒径が粗く、素地の低温化ができなかったなどあるが、課題は残った。

表 3 従来陶磁器の原料配合割合

	配合割合	ノルム計算による鉱物組成割合			
		粘土鉱物	カリ長石	ソーダ長石	珪石
本山蛙目粘土	30	27.93	0.78	0.24	0.84
福島長石	23	0.50	10.21	6.99	5.26
そうけい	35	0.84	12.95	8.47	12.67
けい砂	12	0.27	0.46	0.00	11.24
ノルム計算値	100	29.6	24.5	15.8	30.1

表 4 低温磁器の原料配合割合

①	配合割合	ノルム計算による鉱物組成割合			
		粘土鉱物	カリ長石	ソーダ長石	珪石
本山蛙目粘土	30	27.93	0.78	0.24	0.84
福島長石	5	0.11	2.22	1.52	1.14
そうけい	33	0.79	12.2	7.98	11.95
中国ソーダ	15	0.15	0.09	14.5	0.28
けい砂	17	0.39	0.66	0.00	15.90
ノルム計算値	100	29.5	16	24.3	30.2

②	配合割合	ノルム計算による鉱物組成割合			
		粘土鉱物	カリ長石	ソーダ長石	珪石
本山蛙目粘土	30	27.93	0.78	0.24	0.84
福島長石	16	0.35	7.10	4.86	3.66
そうけい	31	0.74	11.47	7.50	11.22
中国ソーダ	8	0.08	0.05	7.72	0.15
けい砂	15	0.34	0.58	0.00	14.06
ノルム計算値	100	29.5	20.0	20.4	30.0

【かさ密度】

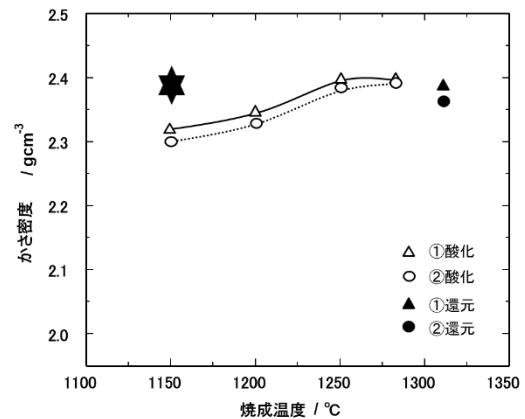


図 8 低温磁器坏土のかさ密度

【焼成収縮率】

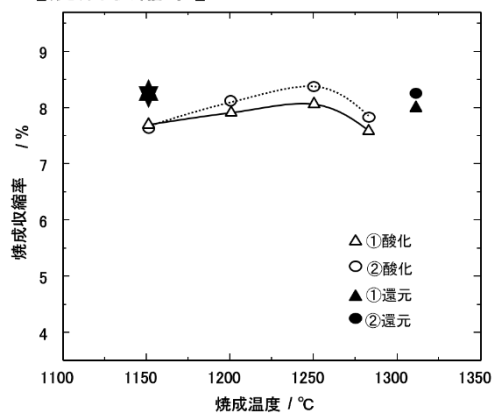


図 6 低温磁器坏土の焼成収縮率

【熱膨張係数】

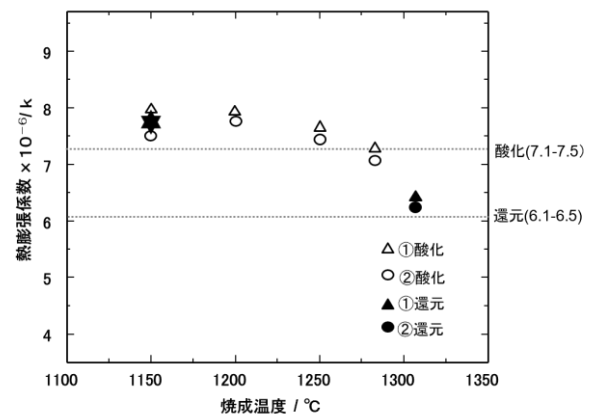


図 9 低温陶磁器坏土の熱膨張係数

【吸水率】

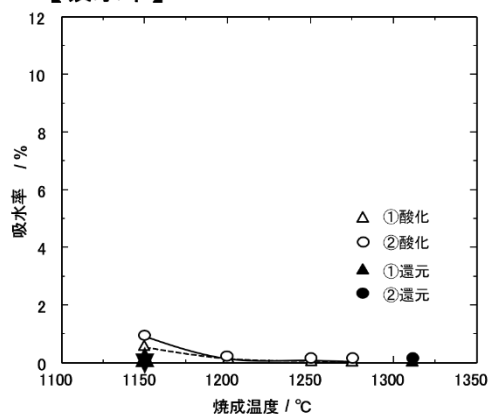


図 7 低温磁器坏土の吸水率

【曲げ強度】

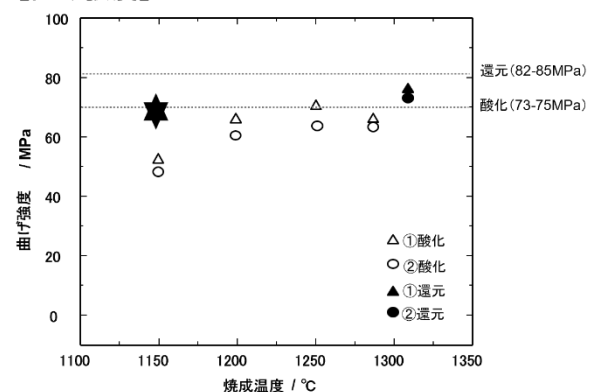


図 10 低温陶磁器坏土の曲げ強度

4. まとめ

本研究では、従来よりも低温で焼結できる低温焼成磁器坏土を作製することを目的に、従来磁器坏土の特性を考慮に入れつつ、低温焼成磁器坏土の原料配合を検討した。原料中の長石成分の一部をカリ長石からソーダ長石に置き換え、低温で焼結できる原料配合を検討した。1200℃焼成ではほぼ目標に近い数値が得られたが 1150℃焼成では、完全に焼結していなかった。今後は、長石を先に

粉碎し粒径を細かくすることでより低温で溶化することを検討する。

【参考文献】

- 1) 加藤弘二ら：岐阜県セラミックス研究所報告, pp.20-22 (2025)
- 2) 星佳宏ら：栃木県産業技術センター研究報告, No.22, pp.106-108(2025)
- 3) 伊藤隆ら：三重県科学技術振興センター工業研究所研究報告, No.32, pp.36-41(2008)

新装飾を活用した美濃焼伝統工芸による新規製品の開発

小稲彩人・岩田靖三

Development of Traditional Crafts Mino Ware using New Decorative Methods

Ayato KOINE and Seizo IWATA

近年、伝統工芸は観光資源や地域振興の要素として注目されている。伝統技術を活かした新製品の開発やブランド化など、付加価値を高めた伝統工芸を現代社会の中で活用する取り組みが各地で進められている。桃山陶をはじめとする美濃焼の代表である織部、志野、黄瀬戸、瀬戸黒は、主に茶器として高い付加価値が確立されている。一方で、将来的には、伝統的価値に新たな視点を加えたブランド構築が必要であると考えられる。そこで本研究では、美濃焼に新たな装飾技法を付加した製品ブランドの構築を目的とし、桃山陶に新規装飾を施す手法について検討を行った。

1. 緒言

国内には多様な伝統工芸品が存在し、地域文化を支える重要な役割を果たしてきた。高度経済成長期からバブル期にかけて伝統工芸品の市場は拡大し、ピーク時には生産額約 5,500 億円に達したが、その後は安価な生活用品の普及により、約 5 分の 1 にまで減少し、横ばいで推移している。このような状況から、現代の生活様式に対応した新たな伝統工芸品の開発の必要性が高まっている。また、輸出は 2024 年時点で増加傾向にあり、海外市場も視野に入れた製品開発が求められている。桃山陶は主に茶器として製作されており、現在においても単価が高く、高付加価値製品として位置付けられている。

本研究では、その特徴的な釉薬の風合いを他製品へ展開し、その価値をさらに活かす装飾技法について検討した。高級製品の多くは、和食器・洋食器を問わず金装飾が広く用いられている。金装飾は華やかで視覚的付加価値が高く、人気がある。そこで本研究では、金装飾技法の確立を目的として検討を行った。

2. 実験

金液では面としての表現が困難であるのに対し、金箔は広い面を形成できるため、より華やかな装飾が可能である。本研究ではその特性に着目し、以下の実験を行った。

2-1 金箔の貼付方法

金箔を扱う際には静電気の発生を防止するため竹バサミを用いた。まず、2 枚の和紙で金箔を挟み、所望の模様に切り抜いた。その後、一方の和紙を除去し、器物に貼り付けた。

さらに、金箔を焼き付ける条件として、水のみおよび布海苔を用いて器物に貼付し、それぞれ焼成を行った。

2-2 焼成温度と発色

金箔の焼付け温度は発色に大きく影響するため、良好な発色が得られる温度条件の検討を目的として、700℃～900℃の範囲で焼成を行った。

2-3 カバーフリットの検討

焼付けた金箔を保護するため、市販されているフリット3種類を用い、750℃、800℃、900℃、1000℃で焼成試験を行った。

3. 結果および考察

3-1 金箔の貼付方法

厚さ 0.001 mm の金箔について、適切な道具を用いることで所望の形状に切り抜くことが可能であった。また、水のみを用いて貼付した場合には焼成中に金箔が剥離したのに対し、布海苔を用いることで金箔が良好に定着することを確認した (図 1)。この結果より、布海苔は接着剤として機能する事が明確となった。

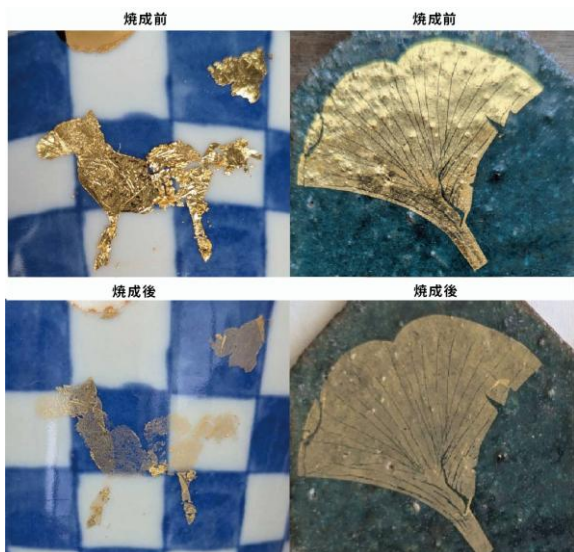


図1 水による貼付 布海苔による貼付

3-2 焼成温度と発色

金箔は 700℃で焼成した試料が最も良好な発色を示し、800℃と比較しても優れた結果であった(図2)。一方、焼成温度の上昇に伴い発色は徐々に低下し、900℃以上では目視で確認しづらい状態となり、1000℃付近では金の存在が確認できないレベルにまで消失した。

この要因として、金箔が極めて薄い(約 0.001 mm)ことから、高温条件下で拡散が生じた可能性が考えられる。したがって、装飾としての機能を維持するためには、700℃付近の低温域での焼成が不可欠であると考えられる。

3-3 カバーフリットの検討

金箔を保護するカバーフリットは 750℃ではいずれも溶解せず、800℃以上で熔融することを確認し(図3、図4)。特に 800℃ではフリットが熔融し保護層を形成することができたが、発色は十分とはいえない結果であった。また、1000℃では1種類に貫入が発生し、金箔も消失した。

これらの結果より、フリットによる被覆により光の反射特性が変化し、金の視認性が低下した可能性が示唆される。また、焼成温度の上昇に伴う金箔の状態変化や、フリットとの熱膨張係数の不一致も影響していると考えられる。

以上の結果から、金箔装飾を美濃焼へ適用するためには、700℃付近の低温焼成を基本とし、発色を損なわないカバーフリット材の選定および焼成条件の最適化が重要であることが明らかとなった。



図2 異なる温度で焼成した金箔装飾試験



図3 カバーフリット 750℃焼成

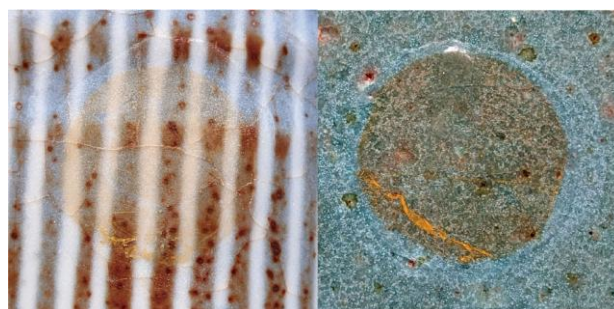


図4 カバーフリット 800℃焼成

4. まとめ

本研究では、桃山陶への金箔装飾技法の確立を目的として検討を行い、以下の知見を得た。

- 1) 金箔は布海苔を用いることで良好に器物へ定着することが可能であった。
- 2) 焼成温度は発色に大きく影響し、700℃付近が最適条件であることが明らかとなった。
- 3) カバーフリットは金箔の保護に有効であるが、発色低下や貫入などの課題が残った。

異常により、桃山等における金箔装飾は高い視覚的付加価値を有する技法として有望であることが示された。今後は、発色を維持可能なカバーフリット材料の開発や、低温焼成に適したプロセスの確立により、実用化および製品ブランドの構築を目指す。