

研究論文

瀬戸産「Re 瀬ッ戸」を用いた健康市場向け商品の研究開発

伊藤賢次^{*1}、宮田昌俊^{*2}

Development of Recycled Porcelain Products "ReSETO" for Health Industry

Kenji ITO^{*1} and Masatoshi MIYATA^{*2}Seto Ceramic Research Center,AITEC^{*1*2}

2005年愛知万博を契機に瀬戸地域で開発されたリサイクル磁器「Re 瀬ッ戸」の用途拡大、資源循環型の持続可能な陶磁器産業の形成を目的に、近年市場拡大が注目される健康市場向け製品の研究開発を行った。健康市場におけるリサイクル磁器製品の提案、製造技術開発を行い、温熱、つぼ刺激、癒し効果を有した温熱リラクゼーションベッド、つぼ刺激フットヒーター、足つぼ刺激マットを試作した。試作品の製造技術、性能は事業化に近い水準にあり、健康関連販売企業とのマッチングによる市場進出を支援する。

1. はじめに

廃陶磁器を利用したリサイクル磁器に関しては、これまで国内の各陶磁器産地において試験研究が行われており¹⁾、瀬戸地域の「Re 瀬ッ戸」²⁾の他に、美濃地域のグリーンライフ 21 (GL21)美濃「Re 食器」³⁾⁴⁾、有田地域のエコポーセリン 21「白磁再生」⁵⁾等がある。「Re 瀬ッ戸」が、瀬戸市が市民から回収した陶磁器屑を製土業者が買い取って粉砕・精製加工し、重量比で50%配合するのに対して、美濃「Re 食器」は家庭や学校から回収した陶磁器屑や美濃焼生産地内で発生した不良品を粉砕加工し、20%配合している。一方、有田「白磁再生」は有田焼産地内で発生した白磁不良品粉砕物を21%配合させている。このように、リサイクル磁器といってもそのしくみや対象とする廃陶磁器には違いがある。

2005年に愛知県で開催された愛・地球博（愛知万博）は、循環型の持続可能社会の方向を世界に向けて発信したものであり、とりわけモノづくりの分野では、資源循環型生産技術を活用して、様々な環境配慮型製品が実証試験や展示品として示された。こうした環境配慮型製品の実用化・商品化を進めていくことは、愛知万博の成果を継承していくという意味ではもちろん、資源循環型生産技術を確立し、環境配慮型製品を新産業分野として育成していく上でも、大変重要な課題である。そこで、これまで食器分野に限定されていた「Re 瀬ッ戸」の用途拡大を図るため、つぼ刺激効果を有した温熱リラクゼーションベッド、足つぼフットヒーター等の健康市場向け商品の開発を行った⁶⁾。

2. 実験方法

2.1 市場調査、試作品デザイン

「Re 瀬ッ戸」を活用した環境配慮型製品であること、当地域に技術的な蓄積のあるシート成形技術、鑄込み成形技術を利用した製品であること、健康市場向け製品であること、瀬戸地域の多くの陶磁器製造業者が参入可能なこと、相当の販売量を見込めること等の条件に適う新規製品、デザインについて検討した。さらに企業訪問や見本市、温浴施設等での市場調査を行った。この結果に基づいて健康市場向けリサイクル磁器の製品を提案した。

2.2 使用原料

瀬戸市資源リサイクルセンターで回収された陶磁器屑から磁器のみを分別選択し、さらに粒子径が10 μ m以下となるよう粉砕加工、磁力選鉱し、磁器セルベンとした。この磁器セルベンに粘土、長石、珪石を配合し、リサイクル磁器坯土を調製した。坯土の配合比率は表1のとおりである。なお、従来の食器用「Re 瀬ッ戸」素地は磁器セルベンの配合量が重量比50%であったが、成形性の向上及び機械的強度の向上を図るため配合量を20%とした。また、磁器セルベン以外の原料に関しては、供給輸送距離の短い瀬戸地域で産出する鉱物を加工して用いた。

2.3 成形

温熱リラクゼーションベッド用大判シート状磁器タイルを、押出圧延成形を応用して成形した。成形時の収縮切れ防止のためリサイクル磁器坯土は食器用坯土と比べて粗めに粉砕加工して用いた。

表1 リサイクル磁器坯土配合比率

磁器セルベン	水簸珪目粘土	瀬戸青粘土	瀬戸珪砂	瀬戸さば
20	25	13	10	32

*1 瀬戸窯業技術センター 開発技術室 *2 瀬戸窯業技術センター 開発技術室（現応用技術室）

成形は以下の3つの工程から構成される。第1の工程では、ケーキ状の坏土を、真空土練機を使用して脱泡混練した。その後、直径90mm、長さ700mmの円柱状の坏土に加工してビニールシートで覆い、さらに数日間静置した。第2の工程では大型真空土練機を使用して脱泡混練して260×90×560mm³の矩形状坏土に加工した。第3の工程では二本のロールを有した圧延機を用いて、坏土をロール間で往復させながら圧延し、間隔を段階的に小さくして大きさの異なる2種類のシート(約500×500×35mm³、約340×690×23mm³)に成形した。リラックスベッドにはつばを刺激するボールを収めるため、ポンスを使用して穴あけ加工を施した。一方、物理的性質、機械的性質測定用試料として小型真空土練機を使用して大きさ12×12×100mm³の試験片に成形した。

さらに、坏土に水及び成形助剤を加えて泥漿を調製し、石膏型に流し込み、0.15MPaの加圧力で圧力鑄込み成形を行い、直径約300mm、厚さ約30mmの円板表面に凹凸を有した足つぼフットヒーターを試作した。温熱リラックスベッドと同様に足つぼ刺激ボールを収納するための穴あけ加工を行った。

2.4 乾燥、焼成

温熱リラックスベッド用試料は、切れ防止のため、試料を木板上に置き、風乾で緩やかに乾燥させた後、熱風乾燥機で恒量となるまで乾燥させた。その後、試料より大きい炭化珪素質棚板に試料を載せ、電気炉内で800℃の素焼をした。さらに、透明釉、遠赤外線放射釉を施釉してガス焼成炉内で1320℃の還元焼成を行った。

足つぼフットヒーター用試料に関しても同様に乾燥、素焼、施釉、焼成し、1280℃の酸化焼成を行った。

2.5 試作

焼成した300×600×20mm³のシート状磁器タイルを6枚組み合わせ、1800×600mm²の平面とし、木枠に収め、裏面に電気抵抗発熱シートを配置して温熱リラックスベッドの試作品とした。足つぼフットヒーターも同様に裏面に電気抵抗発熱シートを配置して木枠に収めた。

2.6 評価

焼成後試料及び試作品の物理的性質、機械的性質、熱的性質、化学的性質の測定を行い、製造条件の検討、試作品の性能評価、安全性確認を行った。

3. 実験結果及び考察

3.1 市場調査結果及び試作品提案

市場調査の結果、陶磁器等の自然素材は「癒し」効果により業界や消費者のニーズが高いこと、それに対して、温浴業界向けの陶磁器製の商品が少なく、高価格な製品であっても大きな需要が見込めるなどの展望が得られた。

このため温浴業界を対象として商品開発を行った。なお、商品、試作品の提案には、瀬戸ブランドのメリットを活かしたものと、陶磁器製の特長である三次元形状が容易に作製できること、加飾が自由で釉薬による変化をつけることができること、重量感があり高級感、安定感があること、自然素材で温かみがあることなどを考慮した。その結果、温熱リラックスベッド、足つぼ刺激フットヒーター、足つぼマット⁷⁾の3種について提案することとした。試作品の外観を図1、図2、図3に示す。

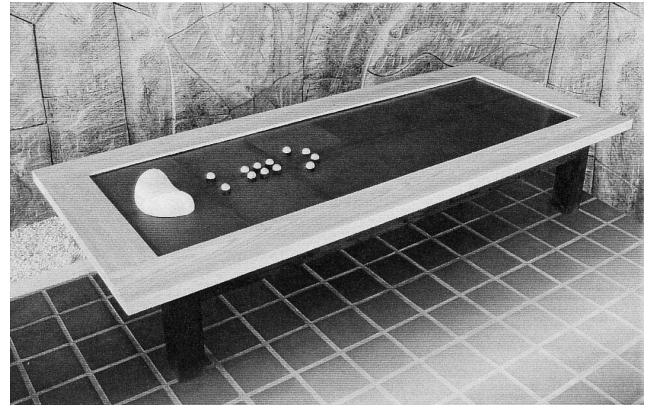


図1 温熱リラックスベッド試作品

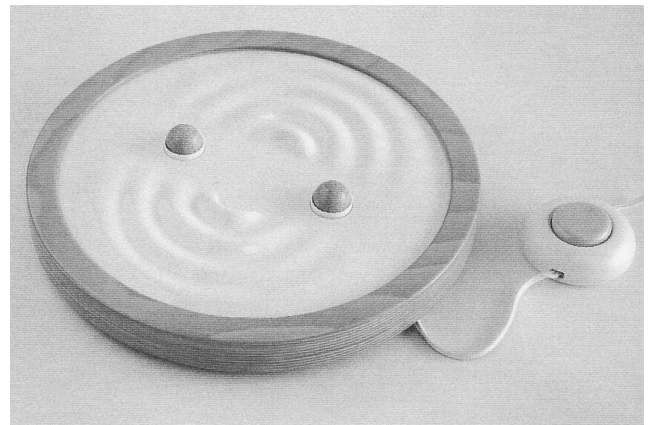


図2 足つぼ刺激フットヒーター試作品

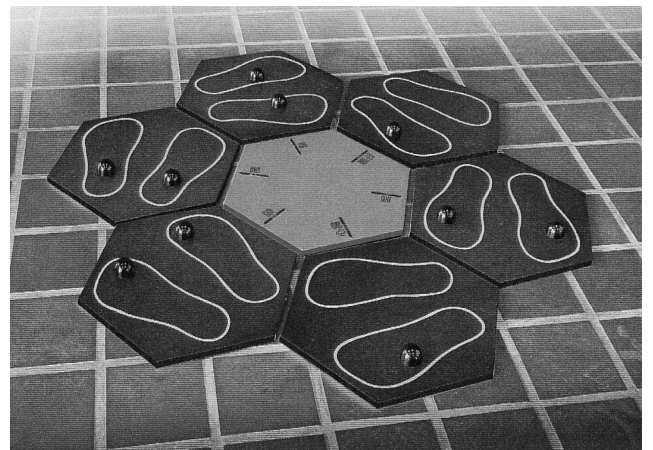


図3 足つぼマット試作品

3.2 成形特性

約 $340 \times 690 \times 23 \text{mm}^3$ のシート状試料の成形では乾燥、焼成時に切れや割れによる不良品の発生が見られた。そこで、厚さを 23mm から 10mm に変更して成形したところ大幅に歩留まりが改善した。このことは乾燥、焼成時における水分、結晶水の脱離に伴う収縮変化が、厚さが薄い場合には迅速に進行するのに対して、厚い場合には不均一に進行し、成形体内外部での歪が大きいことが推測される。

3.3 焼成条件

焼成時には焼結に伴う体積減少、収縮が生じ、製造条件によっては切れや変形を伴う。そこで、熱分析装置 TG-DTA 及び TMA (株式会社 熱分析装置 TMA (株式会社 ThermoPlus-Evo) を使用して、加熱時の示差熱分析、熱重量変化、線膨張収縮を測定した。

磁器セルベン、瀬戸珪砂、瀬戸さばの示差熱分析では 573°C 付近に吸熱ピークが観察された。これは石英の α - β 相転移によるものである。石英を含有する陶磁器原料では一般的に見られるものであり、体積変化を伴うが同じ二酸化珪素の鉱物であるクリストバライトと比較するとその変化量は著しく小さい。使用する原料には 220°C 付近で生じるクリストバライトの α - β の転移は観察されず、焼結時の相転移に伴う急激な体積変化はないと考えられた。一方、水簸蛙目粘土、瀬戸青粘土の示差熱分析で 500°C 付近に吸熱ピークが観察されたが、粘土鉱物の結晶水の脱水によるものであり、粘土鉱物の一種であるカオリナイトが脱水メタカオリナイトに変化する。この脱水反応の際に重量減と収縮が生じる。さらに、脱水メタカオリナイトは 950°C 付近で構造崩壊し、スピネル相と非晶質シリカが生成することが知られており、水簸蛙目粘土、瀬戸青粘土においてもこの構造崩壊によるとみられる発熱ピークが 970°C 付近で観察された。

示差熱分析、熱重量分析の結果から、今回使用した原料は、乾燥・焼成時に急激な体積変化や反応を生じるような鉱物は含まれていないことが確認できた。

試料サイズが大きく、乾燥、焼成時に切れや変形が生じやすいことから、適切な焼成スケジュールについて検討した。一般に、製品が大きい場合には低昇温速度での焼成が有効であるが、省エネルギー、過焼成防止に有利な等収縮速度焼成の可能性について調べた。収縮速度制御焼成 (RCS, Rate-controlled sintering)⁸⁾ は加熱時の収縮変化をモニターして、収縮速度を制御しながら焼成を進行させる技術であり、ファインセラミックスの微構造制御等に用いられる技術である。図 4 に等速温度焼成時の線膨張収縮を示す。 $200^\circ\text{C}/\text{h}$ の等速昇温では収縮速度は一定でなく、 1150°C 付近で最大 $13\%/ \text{min}$ の収縮速度

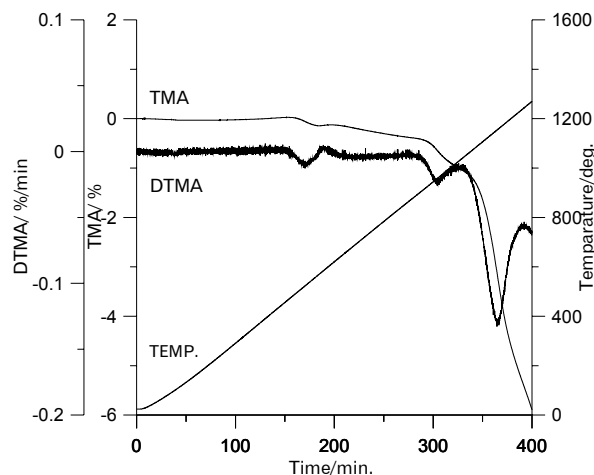


図 4 等速温度焼成時の線膨張収縮

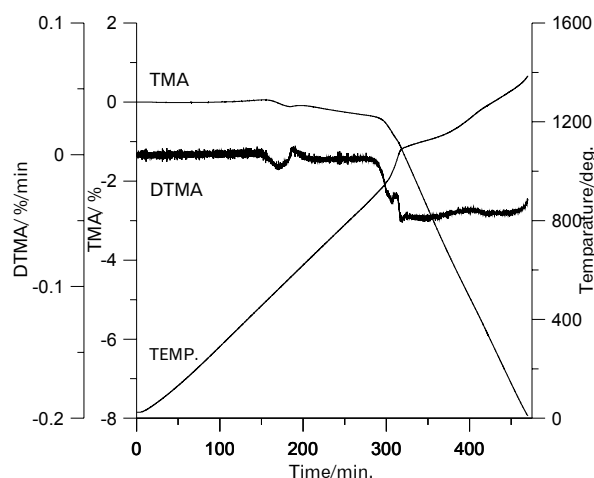


図 5 等収縮速度焼成時の線膨張収縮

を示した。一方、収縮速度を $0.05\%/ \text{min}$ に制御した場合の線膨張収縮を図 5 に示す。 950°C から制御を開始したところ、ほぼ一定の線膨張変化が得られ、制御可能であることが判明した。

3.4 性能試験・安全性評価

試料の物性評価及び試作した温熱リラックスペッド及び足つぼ刺激フットヒーターの性能試験、安全性評価を行った。

物理的性質、機械的性質測定用試料の $1225 \sim 1350^\circ\text{C}$ 焼成時の吸水率、かさ密度変化を測定した結果、調合坯土は 1300°C で吸水率が 0% となり緻密化する。さらに焼成温度を上げると 1350°C ではかさ密度が低下して過焼成となった。想定していた緻密化温度 1280°C より若干高い。原料粒子径を切れ防止のため粗めに調整したことが原因と考えられる。図 6 に曲げ強さ変化を示す。 1325°C の焼成で曲げ強さ 70MPa が得られた。この強度は食器用素地とタイル用素地のほぼ中間であり、温熱リラックスペッドや足つぼ刺激フットヒーターに要求される強度を有していることが確認できた。また、試作品の製品評価として、熱画像装置を使用して昇温、温度分布を測定した。

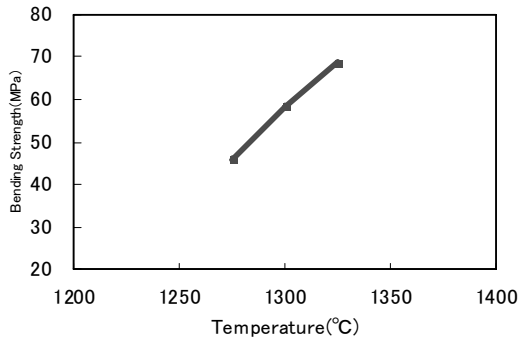


図6 曲げ強さ変化

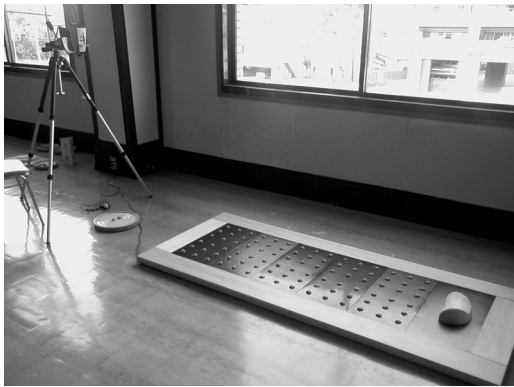


図7 温熱リラックスベッドの表面温度測定の様子

温熱リラックスベッドの表面温度の測定状況を図7に示す。ヒーター電源投入10分後に、フットヒーターで43°C、リラックスベッドで34°Cに到達した。

リラックスベッドでは到達温度がやや低いが、試作品が20mmと厚いためであり、ヒーターをより出力の高いものに交換するか、タイルを薄くするなどの改良が必要である。温度分布はいずれも3°C以内で良好であった。

安全性評価は、ICP発光分光分析装置を用いて溶出成分の分析を行った。有害溶出成分の有無を調べるため、試料を4%酢酸に72時間浸漬した溶出液について、50元素一斉半定量分析を行った。主な溶出成分として、Alが0.40mg/l、Caが0.23mg/l、Feが0.13mg/l、Kが0.27mg/l、Naが1.1mg/l、Siが0.12mg/l検出されたものの、Cd、Pb、Crなどの有害成分は0.001mg/l以下であった。

4. 結び

瀬戸産リサイクル磁器「Re瀬戸」の用途拡大を目的に健康市場向け商品の研究開発を行った結果、以下の知見が得られた。

- (1) 市場調査の結果、事業化が期待できる分野は、陶磁器特有の「癒し」効果や瀬戸ブランドを活かすことができ、市場の成長性の高い温浴関連市場が有望で

あり、温熱リラックスベッド、フットヒーター、足つぼマット等の商品を提案、試作した。

- (2) 瀬戸地域産原料と磁器屑のみを原料とする大型圧延シート成形用坯土の開発を行った。その結果、磁器屑20%配合坯土の焼成温度は1300~1325°Cで機械的強度は最大70MPa、有害物質の溶出は見られなかった。
- (3) 押出圧延成形技術を応用して、300×600×20mm³や440×440×10mm³といった大判シート成形技術を確立することができた。また、陶磁器製品の特長である多様な造形や加飾を活かした温かみのある試作品を作製できた。また、圧力鋳込成形技術によって足つぼ刺激フットヒーターを試作できた。
- (4) 坯土の加熱変化を調べ、収縮速度制御が可能であった。ただし、その効果に関しては補完研究等により確認する必要がある。
- (5) 試作品の機械的強度、温度特性、化学的性質等を調べ、製造技術、性能は事業化に近い水準に到達しており、今後の市場展開が期待できる。

謝辞

本研究は、平成19、20年度に国の地域資源活用型研究開発事業「瀬戸産「Re瀬戸」を用いた健康市場向け商品の研究開発」として、管理法人に財団法人科学技術交流財団、再委託先に愛知県陶磁器工業協同組合、丸石窯業原料株式会社、山増電機製陶株式会社、株式会社コボ、愛知県産業技術研究所瀬戸窯業技術センター、プロジェクトマネージャーに科学技術交流財団 野村忠生氏、アドバイザーに高嶋廣夫博士、学校法人名古屋電気学園 愛知工業大学 小林雄一教授の研究組織、管理体制で実施したものであり、本稿には再委託先企業の成果を含みません。関係各位に深く謝意を表します。

文献

- 1) 杉山豊彦:セラミックス, **44**(1), 2-5(2009)
- 2) 加藤昭博:セラミックス, **40**(4), 291-93(2005)
- 3) 宮地 伸明, 長谷川 善一:セラミックス, **44**(1), 31-36(2009)
- 4) 高橋良夫:セラミックス, **44**(1), 37-41(2009)
- 5) 志波雄三ほか:佐賀県窯業技術センター業務報告, 102-07(2001)
- 6) 大口二郎:稼ぐ「デザイン力!」, アーク出版, P187-92(2009)
- 7) 意匠登録第1342903号
- 8) M. L. Huckabee, et al.: *American Ceram. Soc. Bull.*, **73**, 82-86(1994)