

## 磁器釉薬の物性予測システム設計

倉地辰幸 荒木次夫 加藤正樹 安井克幸\*

Design of Property Prediction System for Porcelain Glaze  
with Neural Network Modeling

Tatsuyuki KURACHI, Tsugio ARAKI, Masaki KATO and Katsuyuki YASUI

階層型のニューラルネットワークを利用したシミュレーションにより、調合原料の化学分析値から磁器用釉薬物性を推定するための数学モデルを構築した。

釉薬の表面物性としては艶、貫入、融け残りを取り上げ、テストピースの目視比較によって3段階に数値化した。また同じ配合で熱膨張係数を測定した。

原料はSiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CaO、MgO、Na<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>O、ZnO 各成分の純度が高く、将来的にも安定供給が見込めるものを選択した。成分純度が高ければ誤差要因を減らすことができ、精度の高いモデルを構築することができる。供給の安定性は業界の利便を考慮したためである。また、モデル因子として原料配合比でなく、元素重量比を採用し、原料成分の変動が生じたり、製造業者個々の事情により他原料を使用する必要が生じても、物性予測及び配合提案を可能とした。

## 1. 緒 言

瀬戸地区陶磁器産業は若手技術者不足と熟練技術者層の高齢化による技術開発力及び技術蓄積の低下が懸念されている。こうした状況に対応し、地場産地の新たな生産環境を整備するために、階層型のニューラルネットワークを応用した陶磁器製品設計用のエキスパートシステムについて研究した。階層型のニューラルネットワークとは、入力節点の集合である入力層と出力節点の集合である出力層に加えて、隠れ層と呼ばれる中間の節点集合層を持ち、入力節点から出力節点まで、すべて順方向のみに結合されて、フィードバック結合などの相互結合の形態を持たないようなタイプのニューラルネットワークである<sup>1)</sup>。

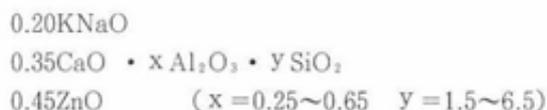
これを利用して、磁器釉薬配合から釉薬特性が推定でき、また逆に、与えられた拘束条件のもとで希望レンジ内の釉薬特性を実現できると推測される最適配合を出力できるような非線形予測システムの構築を目的として研究を行った。

## 2. 実験方法

## 2.1 釉見本の作成と評価

釉薬は、石灰亜鉛釉、タルク釉、石灰釉の3種類を設定した。使用した釉薬原料の種類と分析値を表1に示す。各調合は、ゼーゲル式から組み立てた。全ての成分を完全に変動させることが理想であるが、実験点数には自ずから限界がある。今回は特に、艶や融け具合を重視するため、それぞれの塩基性成分を固定し、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>とSiO<sub>2</sub>を変動させるという構成を採った。

石灰亜鉛釉は56種類である。ゼーゲル式を以下に示す。

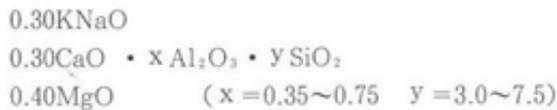


タルク釉は84種類である。ゼーゲル式を以下に示す。

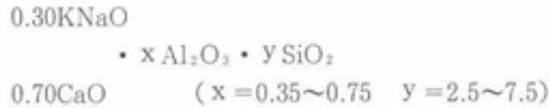
表1 使用原料の化学分析値

(単位: wt%)

原料名	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	ZnO	PbO	Rb <sub>2</sub> O	ZrO <sub>2</sub>	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	SO <sub>3</sub>	SrO	灼熱減量
長石	66.60	18.53	0.09	-	0.19	-	3.06	10.16	-	0.01	0.07	0.01	0.01	0.01	0.01	1.25
珪石	99.42	0.16	0.03	-	0.01	-	0.04	0.02	0.01	0.05	-	0.01	-	0.02	-	0.23
石灰石	0.26	0.06	0.01	-	54.79	0.93	0.02	0.01	-	-	-	-	0.06	0.02	0.08	43.76
タルク	61.28	0.07	0.05	-	0.22	38.09	0.03	-	-	-	-	-	0.05	-	-	0.19
カオリン	47.55	36.52	0.15	0.07	-	-	0.06	0.01	-	-	-	0.01	0.13	0.01	-	15.50
亜鉛華	0.03	0.06	0.07	-	0.01	-	-	0.03	99.43	0.17	-	-	-	0.05	-	0.14



石灰釉は93種類である。ゼーゲル式を以下に示す。



釉見本サイズは50mm×50mm×8mmで、仮焼温度は電気炉で800℃とした。この仮焼試験体に施釉して、1250℃、

1275℃、1300℃、1325℃の各温度で還元焼成した。釉薬の種類は前述のように石灰亜鉛釉、タルク釉、石灰釉の3種類であるが、石灰亜鉛釉は低火度釉のため、1325℃での焼成は不要として省略した。

出来上がった釉見本は、艶、貫入、融け残りの程度を目視比較によってそれぞれ3段階に数値化し、釉性状データとした。

## 2.2 熱膨張測定

釉薬について、より精度の高いデータ作成を目指した熱膨張測定を行った。

熱膨張用試料は、釉薬泥漿をドクターブレード装置のシート上に流した後、装置下方から加熱乾燥して薄板状に成形

表2 石灰亜鉛釉表面性状 (艶)

Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>										
	1.5	2.0	2.5	3.0	3.5	4.0	4.5	5.0	5.5	6.0	6.5
0.65			222	222	222	222	222	222	222	222	222
0.60			222	222	222	222	222	222	222	222	
0.55			222	222	222	222	222	222	222		
0.50			222	222	220	221	221	222			
0.45		222	222	222	211	211					
0.40		222	221	000	100	110					
0.35		211	000	000	000	110					
0.30		011	000	000	100	210					
0.25	000	222	001	100	100	222					

表3 タルク釉表面性状 (艶)

Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>										
	2.5	3.0	3.5	4.0	4.5	5.0	5.5	6.0	6.5	7.0	7.5
0.75				2200	2100	2100	2000	2101	2201	2201	2221
0.70			2210	2000	1000	0000	2100	2100	2100	2101	2221
0.65			1200	0000	1000	1000	1100	2100	2101	2211	2211
0.60			0000	0000	1000	1000	2110	2210	2210	2211	2221
0.55			0000	0000	2100	2100	2001	2111	2220	2221	2222
0.50		0000	1100	1110	1110	2211	2212	2212	2212	2222	2222
0.45		2122	2212	2220	2110	2110	2211	2221	2222	2222	2222
0.40		2222	2222	2221	2220	2220	2220	2221	2222	2222	2222
0.35		2221	2222	2221	2220	2220	2221	2222	2222	2222	2222

表4 石灰釉表面性状 (艶)

Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>										
	2.5	3.0	3.5	4.0	4.5	5.0	5.5	6.0	6.5	7.0	7.5
0.75			2222	2222	2222	2200	2000	2100	2100	2100	2210
0.70		2222	2222	2222	1100	0000	0100	2100	2110	2210	2210
0.65		2222	2222	2111	1000	1000	2100	2210	2210	2210	2211
0.60		2222	2222	0002	0002	0100	1100	1210	2211	2211	2211
0.55		2222	1022	0022	0002	2000	2100	2110	2121	2221	2221
0.50	2221	2112	1012	2012	2101	2100	2100	2210	2210	2221	2222
0.45	2111	2122	2222	2022	2012	2112	2210	2220	2221	2221	2222
0.40	2200	2222	2222	2222	2222	2222	2222	2222	2222	2222	2222
0.35	2220	2222	2222	2222	2221	2220	2222	2222	2222	2222	2222

し、シートから剥がした成形体を適当なサイズに切って1300℃で電気炉焼成し、作成した。試料寸法は、長さ45±5mm、直径2～3mm程度とした。

測定は常温から800℃くらいまで行ったが、全データ共通の有効レンジは300℃程度から700℃程度までである。測定ファイルから20℃刻みで熱膨張係数を出力し、熱膨張測定データとした。

### 2.3 ニューラルネットワークモデリング

原料分析値から各軸性状を出力する数学モデルを構築するため、ニューラルネットワークシミュレーションを実行した。データに適したモデル構造を探索し、モデル構築用データを出し入れして、未知データに対する予測性能に優れたモデルを構築した。

シミュレーションを行うための解析ソフトウェアは物性推定ソフト（アダムネット製、CAD/Chem）を使用した。

## 3. 実験結果及び考察

### 3.1 実験データ

釉薬調合総数が233種類であり、石灰亜鉛釉について3段階、タルク釉と石灰釉について4段階の焼成温度で実験したため、艶、貫入、融け残りの各性状は、各々876点のデータ数となった。焼成枚数は各3枚である。各表面性状の評価数値のうち、艶に関するものを表2から表4に示す。数値は、左からそれぞれ1250℃、1275℃、1300℃、1325℃の各焼成温度（石灰亜鉛釉は1250℃、1275℃、1300℃）に対応し、0が最も優れたもので、2が劣るもの、1が両者の中間の評価である。貫入についてこの数値は、0が貫入の全く見られなかったもの、2が必ず見られるもの、1が入り入りなかったりしたものである。また、融け残りについてこの数値は、0が融け残りの全く見られなかったもの、2が必ず見られるもの、1がその中間的な状態で断定し難いものである。

### 3.2 構成元素酸化物重量百分率によるモデル

今回の実験データにおいて、主成分因子はSiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CaO、MgO、Na<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>O、ZnOである。ただしNa<sub>2</sub>Oは、K<sub>2</sub>Oに連動して変動するため、モデル因子として採用することには意味がない。Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>、PbO、Rb<sub>2</sub>O、ZrO<sub>2</sub>、P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、SO<sub>3</sub>、SrOは微量成分である。Ig.lossは有機成分等であり、因子として使うのは難点が多いため基本的に除外した。この他に熱膨張係数が因子として考えられ、十分な検討を必要とするが、本年度においては収束速度の改善効果から340℃の熱膨張係数を取り上げ、これについてのみ検討した。モデルについて最も重要視すべきは、未知データに対する予測能力であることから、基本方針として予測能力の高いモデルの構築を目指すこととした。そのための手法を種々検討したが、結論としてはテストデータを使う以上の手法はなかった。これは全データ空間からいくつかのデータを取り除き、残りのデータによってモデルを構築して、取り除いたデータを予測するという手法である。この作業を全てのデータについて行い、エラーを集積して比較すればモデルの予測性能を最も正確に推し量ることが出

来る。ただ、この手法の問題点は、データが増えれば増えるほど、また検討モデルを増やせば増やすほど時間がかかることである。本年度は3回テストデータ抽出を行い、そのエラーを集積して比較するという簡易的なやり方を採用した。

分析値の入力は全重量に対する百分率を採用するのが最も自然であるため、そこから検討を始めた。表5はその百分率モデルの予測性能検討結果である。A系列は因子として主成分分析値の重量百分率（灼熱原料を除く）と焼成温度を採用したもの、B系列はA系列の因子に加えて、熱膨張係数（340℃）を因子として追加したものである。物性欄のTは艶の評価、Kは貫入の評価、Nは融け残りの評価である。

表5 重量百分率モデルの予測性能

TEST No	1			2			3			計	
データ数	各31			各19			各35			255	
物 性	T	K	N	T	K	N	T	K	N		
誤答 点数	A	7	7	8	5	10	8	12	7	12	76
	B	4	7	7	3	4	5	9	6	13	58

熱膨張係数を因子として追加することにより、誤答点数は76点から58点へと減少した。この改善傾向は全ての物性について現れている。熱膨張係数を因子として導入することがモデルの予測性能を向上させるならば、その導入を真剣に検討しなくてはならないが、熱膨張係数は独立因子でなく、分析値から離れて単独に制御することが困難である。このため、システムに希望物性を入力して最適因子条件を出力させても、その条件をそのまま利用することが出来ない。よって熱膨張係数を必要としないモデルを探索することにした。

### 3.3 構成元素酸化物配合重量比によるモデル

全重量中の各元素酸化物の百分率よりも、むしろ各元素酸化物同士の重量比を因子とした方がデータの特徴が明瞭になるのではないかという考えに基づき、因子データを再計算してテストデータ予測シミュレーションを行った。この結果を表6に示す。

表6 重量比モデルの予測性能比較

TEST No	1			2			3			計	
データ数	各31			各19			各35			255	
物 性	T	K	N	T	K	N	T	K	N		
誤答点数 (1/SiO <sub>2</sub> )	A	11	7	4	3	6	9	13	8	10	71
	B	5	5	8	2	3	7	11	8	14	63
誤答点数 (1/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	A	6	6	5	3	4	5	8	3	11	51
	B	10	3	6	1	5	6	12	6	11	60
誤答点数 (1/CaO)	A	7	4	10	4	4	7	11	2	11	60
	B	6	3	9	4	4	7	16	4	11	64
誤答点数 (1/K <sub>2</sub> O)	A	11	3	6	9	5	4	11	6	8	63
	B	8	3	5	7	1	4	17	4	11	60

各元素酸化物のうち、どれを分母とするべきかについては、釉薬中にある程度の分量が必ず存在するSiO<sub>2</sub>か

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が最も望ましいが、CaOとK<sub>2</sub>Oについても検討した。MgOとZnOは配合がゼロの場合があるので不適当である。

2成分モデルは、百分率モデルに比べて予測性能が高い。ただし、百分率モデルは熱膨張係数を因子に加えた場合の改善効果が大きく、全ての2成分+熱膨張係数モデルを超える予測を示した。だが、最終的に最も重要なモデルは、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を分母とした2成分モデルである。このモデルは熱膨張係数の導入によって改善されず、逆に悪化する。つまり、熱膨張係数を因子として導入するまでもなく高い予測を示し、百分率+熱膨張係数モデルよりも優れたモデルである。

### 3.4 収束レベルの違いによる予測性能の比較

単なるデータベースでない、何らかの予測を行うためのモデルあるいはシステムは、過度に学習・最適化させた場合、その予測性能を劣化させる可能性がある。ここまでの予測性能比較シミュレーションでは、モデルを構築するデータ物性の回答に丁度間違いが無くなる程度の、限界的に緩い収束レベルで計算停止とした。この収束レベルを変動させた場合に予測性能はどのように変化するか、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を分母とした2成分モデルで検討した。結果を表7に示す。

表7 収束レベルによる予測性能の違い

TEST No	1			2			3			計	
データ数	各31			各19			各35			255	
物性	T	K	N	T	K	N	T	K	N		
誤答点数 (700収束)	A	6	6	5	3	4	5	8	3	11	51
	B	10	3	6	1	5	6	12	6	11	60
誤答点数 (500収束)	A	5	6	6	2	4	6	9	3	13	54
	B	10	3	5	1	5	6	12	5	10	57
誤答点数 (300収束)	A	7	5	6	3	4	7	9	3	13	57
	B	11	3	6	2	5	6	11	4	9	57
誤答点数 (200収束)	A	7	6	7	3	3	6	9	3	13	57
	B	11	3	5	2	5	6	11	4	10	57

700収束が収束を緩める限界である。逆に200収束が収束を絞る限界であり、更に収束させようとする、0、1、2の3値で構成された今回の物性データでは収束不能となるか、不必要な歪みをモデルに与えるだけであった。表7から判るように、各モデルともそれほど決定的な差はないが、最も緩い収束で熱膨張因子を導入しないモデルの予測性能が最高という結果になった。

### 3.5 全成分モデルの検討

今回の実験データは、基本的に不純物の影響を極力抑え、主成分であるSiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CaO、MgO、K<sub>2</sub>O、ZnOを変動させるという組み立てであり、積極的に不純物の影響を識別しようという意図は組み込んでいない。だが、そのような実験データにおいて、不純物元素を因子として導入した場合、ニューラルネットワークがどのようなモデルを作るか検討する意味で、微量元素を因子に組み込んだモデルの予測性能を調べた。因子は上記主成分に加え、Na<sub>2</sub>O、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>、PbO、Rb<sub>2</sub>O、ZrO<sub>2</sub>、P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、SO<sub>3</sub>、SrO

である。ここまでの検討結果から、予測性能の最も高い、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を分母とした2成分モデルでのシミュレーションである。結果を表8に示す。表中のLが全成分モデルである。

表8 全成分モデルの予測性能

TEST No	1			2			3			計	
データ数	各31			各19			各35			255	
物性	T	K	N	T	K	N	T	K	N		
誤答点数 (1/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	A	6	6	5	3	4	5	8	3	11	51
	L	7	4	7	6	5	7	8	3	12	59

表から判るように、全成分モデルは主成分モデルより予測性能が悪化した。この結果に加えて、例えばZrO<sub>2</sub>は重量百分率で0.009から0.003の変動であり、実質ゼロと同じであるが、このモデルに対して、ZrO<sub>2</sub>を全てのデータレコードについてゼロと入力した場合の物性予測変動数を表9に示す。最大0.01wt%に満たないZrO<sub>2</sub>にしては、その影響力が強過ぎると思われる。同じ表に、SO<sub>3</sub>についてゼロを入力した場合の結果も示すが、SO<sub>3</sub>は0.02から0.01の変動であり、やはり異常な感度を示すモデルとなっていることが判る。これらの結果から、全成分モデルを予測に使うことは避けるべきであるとの結論を得た。

表9 微量成分をゼロとした場合の予測変動

全成分モデル	T	K	N	データ総数
ZrO <sub>2</sub> = 0	211	170	175	876
SO <sub>3</sub> = 0	86	46	46	876

これまでの検討では、主成分のみを因子としたAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>分母の2成分モデルが最も良いモデルである。その理由は、予測性能が最も高く、かつ、熱膨張係数という単独制御し難く、誤差要因になりやすい因子を持たないからである。だが、予測性能のみについて考えるなら、熱膨張係数を因子として利用する手法には、検討の余地がある。

### 3.6 システム構成

システムは基本的に二つの機能を持つ。一つは調合条件と焼成条件から予測される釉薬の物性を算出する機能であり、もう一つは希望物性と拘束条件から最適な調合条件と焼成条件を出力する機能である。図1に物性予測画面を示す。左側のIngredientsのGivenに因子データを入力すると右側のPropertiesのFoundに予測値が出力される。物性予測はこのように一配合ごとに行うこともできるし、テキストファイルを通して一括に行うこともできる。

次いで最適配合出力であるが、図2に示すのが希望物性入力画面であり、図3に示すのが拘束条件設定画面である。この二つの条件を入力した後、図4の最適設計画面により、最適配合が計算され、左側のIngredientsのValue欄に結果が表示される。また、その最適配合条件における物性値は、右側のPropertiesのValue欄に示される。最適配合出力は計算初期値近傍から探索し始め、最初に条件を満たしたところで終了する。

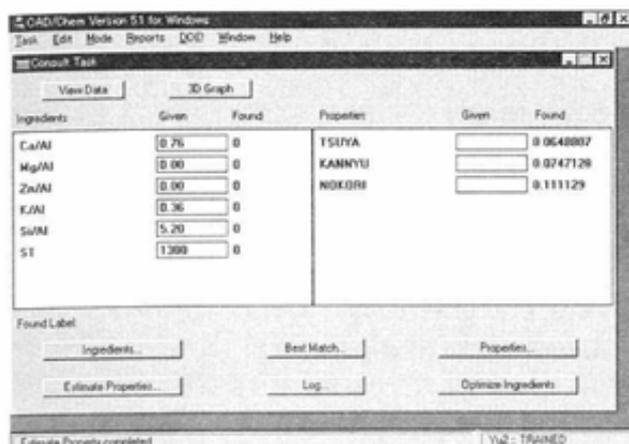


図1 物性予測画面

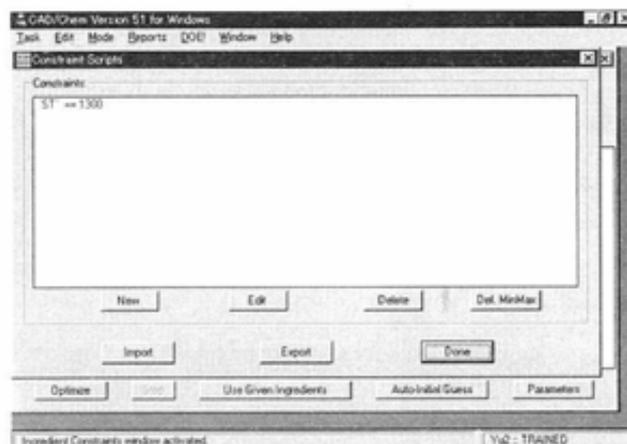


図3 拘束条件設定画面



図2 希望物性入力画面



図4 最適配合出力画面

#### 4. 結 論

磁器釉薬の物性予測システムについて研究し、以下の結論を得た。

(1) 構成元素酸化物重量百分率によるモデルは、予測精度を上げるために熱膨張係数を因子として組み込まなければならないが、熱膨張係数は独立因子でなく、分析値から離れて単独に制御することが不可能であるため、システムに希望物性を入力して最適因子条件を出力させても、その条件をそのまま利用することが出来ない。このため熱膨張係数を因子として組み込まなくても高い予測性能を実現するモデルを構築する手法を検討し、主成分のみを因子とした

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>分母の2成分比モデルが最も良いモデルであることを見出した。

(2) 収束レベルの違いによるモデルの予測性能の差については、可能な限り緩い収束条件で構築したモデルの予測性能が僅かな差ではあるが優れることが判明した。

(3) 全成分モデルは、主成分モデルより予測性能が悪い上に微量成分の変動の影響が強すぎるため予測に使うことは避けるべきである。

#### 文 献

1) CAD/Chem User's Manual, AI WARE Inc.(1997) P.59