

研究論文

水素炎燃焼炉を利用した施釉陶磁器焼成の実証研究

立木翔治*1

Demonstration Research about Burning the Glazed Ware by Hydrogen Flame

Shoji TACHIKI*1

Tokoname Ceramic Research Institute*1

陶磁器製造プロセスにおける脱炭素化を見据え、水素ガスを燃料とする焼成炉を用いて施釉陶磁器を試作したところ、フリット混合による釉薬の低融点化に成功した。それと同時に、従来技術とは異なる還元作用であるため、ブタンガスによる焼成雰囲気において発生する釉薬の発泡現象を抑制することが可能であった。また、得られた焼成体の耐久性について、業務用食器洗浄機を用いた洗浄試験を実施した。その結果、500回の繰り返し洗浄前後において重量及び外観の変化はなく、実用化への目途が立った。

1. はじめに

知の拠点あいち重点研究プロジェクトⅡ期(平成28年度~30年度)において開発された水素炎燃焼炉は、水素ガスを燃料とした焼成炉である。水素ガスの燃焼による熱を利用するため、二酸化炭素等の温室効果ガスの排出がなく、また発生するNOxも限りなく少量である¹⁾。

一方、陶磁器産業の盛んな愛知県では、1000℃を超える焼成工程において、重油や天然ガスが燃料に用いられる現状にある。

カーボンニュートラルへの取り組みが盛んになりつつある社会情勢において、陶磁器製造プロセスの脱炭素化の実現は今後ますます重要となる。

そこで本研究では、上記水素炎燃焼炉を用いて施釉陶磁器を試作した。併せて、供試体を同じくした従来技術による焼成を実施した。得られた焼成体の比較を通して、水素炎燃焼炉での施釉陶磁器焼成の特徴について考察した。また、水素炎燃焼炉の実用化を見据え、近年家庭や調理場への普及が進んでいる食器洗浄機を用いて焼成体の耐久性評価を実施した。

2. 実験方法

2.1 釉薬の選定と素地土を用いた供試体の作製

本研究で用いた水素炎燃焼炉は、水素ガスの燃焼中に炉内が水蒸気で満たされる¹⁾ので、還元雰囲気であると予想される。このため、とこなめ焼協同組合が製造・販売している還元焼成用の透明釉を使用した。施釉する素地土には同組合製のおぼろ緋色土を採用し、鑄込み法により湯呑形状及びテストピース形状に成形し、800℃で素焼きした上で施釉した。

2.2 水素炎燃焼炉の使用方法

施釉した供試体を図1のように水素炎燃焼炉内に設置して焼成を開始した。焼成中の炉内の温度プロファイルを図2に示す。



図1 焼成前の水素炎燃焼炉内の供試体

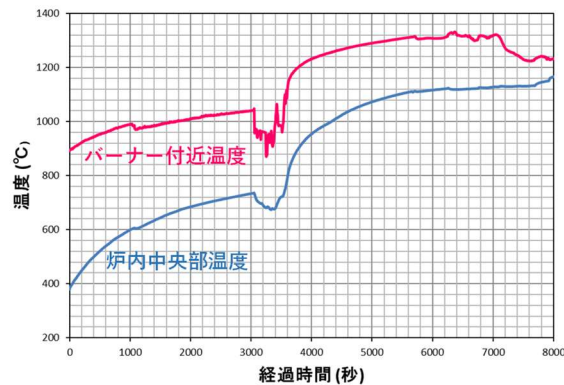


図2 着火後の水素炎燃焼炉内温度の時間変化

*1 産業技術センター 常滑窯業試験場 材料開発室

既報¹⁾では、上記焼成条件において高温水蒸気による還元作用を確認できた。従って、水素炎燃焼炉の特徴を良く表した焼成体を得るため、今回の焼成試験でも同様の作製方法とした。

2.3 ブタンガスを用いた還元焼成

水素炎燃焼炉での焼成実験との比較として、ブタンガスを用いた還元雰囲気焼成を実施した。焼成には角型電気炉((有)北村電気炉製作所製、10 kW)を使用し、**図 3**に示す温度プロファイルにより昇温し、1120℃で1時間保持した後、自然冷却した。ブタンガスは1000℃到達後に炉体下部より毎分当たり5.8Lの流量で燃焼させながら投入し(**図 4**)、冷却開始時よりガスのフローを停止した。

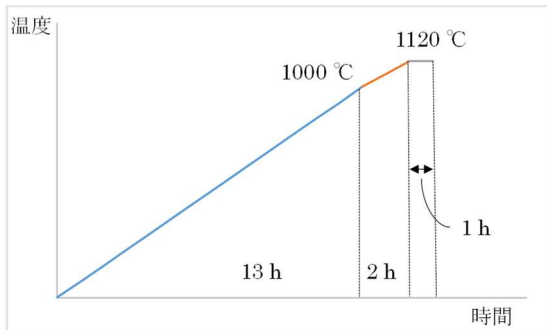


図 3 還元焼成時の温度プロファイル



図 4 焼成中のブタンガス投入

2.4 食器洗浄機を用いた焼成体の繰り返し洗浄試験

近年、ポーンチャイナ限定ではあるが、陶磁器製食器の洗浄に対する耐久性評価方法がJIS規格(JIS S 2403)に定められた。また、家庭や調理場への食器洗浄機の普及が進む中、食洗機耐久性が陶磁器製食器の標準仕様となりつつある。

上記背景から、水素炎燃焼炉で得られた湯呑形状焼成体の実用化へむけた耐久性試験として、業務用食器洗浄

機(フクシマガリレイ(株)製、U50)による繰り返し洗浄を行った。洗浄1回当たりの設定は、**表 1**のとおりとした。

表 1 食洗機の洗浄条件(1回当たり)

| | |
|---------|-------|
| 洗浄時間 | 60sec |
| 液体洗剤の量 | 3.0ml |
| 液体リンスの量 | 0.3ml |

3. 実験結果及び考察

3.1 素地と釉薬の適合性

水素炎燃焼炉での焼成に先立ち、電気炉を用いて湯呑形状供試体の焼成を行った。釉薬の熔融温度である1230℃で一時間保持したところ、表面に光沢を持った焼成体を得ることができた。

結論として、おぼろ緋色土は透明釉の素地に用いるのに十分な耐熱性を有する坯土であった。

3.2 水素炎燃焼炉での焼成

湯呑形状供試体を水素炎燃焼炉で焼成したが、焼成体の表面に光沢が見られず、釉薬の熔融に至っていないものと思われた。

供試体と併せて炉内に設置した熱履歴センサー(リファサーモ)による指示温度が1050℃にも達しないものであったため、アルカリガラス添加による釉薬の低融点化を図った。

表 2の化学組成を持つフリット(101フリット)を質量比で20%配合して焼成を行ったところ、底面部に光沢を持った湯呑形状の焼成体を得ることができた(**図 5**)。底面部は失透状態であり、電気炉での酸化焼成時とは異なる見た目であった。これは、釉薬の焼成見本と同様であったため、高温水蒸気による還元があったものと考えられる。

表 2 フリットの化学分析値

| 化学成分 | 組成割合(mass%) |
|--------------------------------|-------------|
| SiO ₂ | 44.9 |
| Al ₂ O ₃ | 2.61 |
| Fe ₂ O ₃ | 0.01 |
| TiO ₂ | 0.01 |
| CaO | 8.46 |
| MgO | 0.18 |
| Na ₂ O | 18.0 |
| K ₂ O | 1.96 |
| B ₂ O ₅ | 23.4 |



図 5 水素炎燃焼炉により得られた湯呑形状の施釉陶磁器

また既報²⁾においては、同形状の供試体では高温水蒸気による還元作用が底面の一部のみであった。それに対し、今回の焼成試験では、底面全体に失透釉が観察された。これは、焼成中に湯呑形状供試体を支えるセッターに小さな穴を多数開けたものを用意し、水素ガスの燃焼により発生する水蒸気を供試体の下から上部に直接流すことを狙ったことによる効果であると思われる。

3.3 ブタンガスによる還元焼成体との比較

3.3.1 朱泥土焼成見本を用いた還元雰囲気の実証

2.3 節の焼成条件における還元雰囲気を確かめるため、焼成中の雰囲気による色の変化が顕著な朱泥土成形体の焼成を併せて実施した。

その結果、表面に光沢を有する焼成体を得ることができ(図 6)、焼成見本との比較により還元雰囲気であることを確かめることができた。



図 6 還元焼成後の朱泥土焼成体

このように素地土に遷移金属酸化物を混合して、雰囲気制御によって焼成後の発色を変化させる手法を窯変と呼び、常滑焼の特徴である土味を生かした茶器等の陶磁器製品製造に欠かせない技術である。

3.3.2 テストピース供試体の焼成

3.2 節のフリットを 25% 配合したテストピース焼成体において、釉薬表面に気泡が生成した(図 7)。

低融点化を目的として添加したフリットに含まれるアルカリガラスによる発泡が焼成中にあったものと思われる。一方で、水素炎燃焼炉で焼成したテストピース焼成体は、部分的に表面光沢がみられ、気泡の生成は観察されなかった(図 8)。



図 7 ブタンガス焼成によって気泡の発生した釉薬テストピース



図 8 水素炎燃焼炉で焼成した釉薬テストピース

従来から、ブタンガスによる還元雰囲気での施釉陶磁器焼成において生じる発泡現象の要因の一つに、未燃炭素の存在が指摘されている。水素炎燃焼炉内では未燃炭素は存在し得ないので、アルカリガラスを含む施釉陶磁器焼成においても発泡現象が生じず、焼成体表面に気泡の生成が抑制できたと思われる。

以上、従来技術による焼成体との比較により、水素炎燃焼炉を用いた施釉陶磁器焼成の優位性を見出すことができた。

3.4 水素炎燃焼炉での焼成体の耐久性

水素炎燃焼炉の実用化を見据え、3.2 節の焼成体の耐久性について業務用食器洗浄機を用いて評価を行った。

表 1 の条件での 500 回の繰り返し洗浄前後の重量の変化を調べたところ、僅かな減少(0.01%)があったものの、目立った色の変化は観察されなかった。

以上、水素炎燃焼炉で得られた施釉陶磁器は、洗浄耐久性があり実用に耐えうる焼成体であった。

4. 結び

陶磁器産業において、将来の脱炭素化を見据えた製造プロセスを検討すべく水素炎燃焼炉を用いて施釉陶磁器焼成を行った結果、以下の知見が得られた。

- (1) 今回の水素炎燃焼炉の焼成条件では釉薬の熔融温度に到達しなかったものの、アルカリガラス添加による釉薬低融点化により光沢を持った焼成体を得ることができた。
- (2) テストピース形状供試体について、ブタンガスを用いた還元雰囲気焼成を実施した。従来技術による焼

成体の表面には気泡が観察されたのに対し、水素炎燃焼炉による焼成体では気泡は生成されなかった。気泡の生成は、添加したフリットに含まれるアルカリガラスによる発泡が原因と思われるが、水素炎燃焼炉内には未燃炭素が存在し得ないので、焼成中の釉薬発泡現象が起きなかったと考えられる。

- (3) 水素炎燃焼炉の実用化を見据えて焼成体の耐久性評価を実施した。業務用食洗機による 500 回の繰り返し洗浄試験の前後で、湯呑形状供試体の重量変化はほとんど無く、著しい外観の変化は観察されなかった。
- (4) 愛知県の常滑地区では、ブタンガスによる焼成窯を用いた茶器等の陶磁器製品の製造が盛んである。このため、(2)及び(3)は水素炎燃焼炉の活用につながる知見であると思われる。

謝辞

水素炎燃焼炉を使用した焼成実験にご協力頂いた名古屋大学大学院工学研究科化学システム工学専攻小林敬幸准教授及び研究室の皆様にご挨拶申し上げます。

付記

本研究は、公益財団法人内藤科学技術振興財団 2021 年度研究助成により実施した。

文献

- 1) 立木翔治, 榊原一彦: あいち産業科学技術総合センター研究報告, **10**, 50(2021)