

淡路瓦

(1955年～現在)

1609年ころ現在の南あわじ市津井地区に始まったとされる地場産業としての淡路粘土瓦は現在全国最大のいぶし^{注1)}瓦生産地である。いぶし瓦は予め約1000℃に加熱した粘土素地に酸素を絶った雰囲気中で炭化水素を導入し、炭化水素ガスから炭素を分離・固定することにより粘土素地上に1～3ミクロンの炭素膜を形成させるCVD法^{注2)}により製造される。主製品は形状によりJ形(和形)、F形(洋形・平形)S形、本葺形に分類される。これに釉薬瓦(陶器瓦)、窯変瓦など約1,000種類の製品の供給が可能である。阪神・淡路大震災以降、地震、台風などの自然災害に備え、安全性を向上させた「防災瓦」が開発された。住宅の欧風化と変化を求める時代の趨勢により、粘土瓦の出荷量は現在も減少しており、機能性に優れた新製品開発が試みられている。

1. 淡路瓦の昨今

粘土を焼きしめて生活用品としての土器を発明して以来、今日のファインセラミックスに至るまで、焼き物としてのセラミックスは常に人間が文化的生活を営むため生産されてきた。日本書紀等によれば、百濟から588年に4人の瓦博士が来日したと記され、この年、我が国最初の瓦屋根建造物としての飛鳥寺(法興寺)の造営が始まったので、粘土瓦は我が国で1400年以上の歴史を有する屋根材ということになる。この後、同時代には瓦葺きの壮大な寺院、四天王寺、法隆寺などが次々と建立された。このころ農民ははまだ竪穴式住居に生活しており、皇居さえも板葺き、茅葺きであったことを鑑みれば、これら瓦葺きの寺院の圧倒的の壮大

さに思いをはせることができる。そしてこれ以降瓦屋根は富と権力、そして繁栄の象徴であった。

さて、兵庫県淡路地区においては製造技術伝来の数十年後にはすでに瓦の生産が行われていたと伝えられているが、2010年を淡路瓦誕生400周年と位置づけている。これは現在の南あわじ市津井が当時(慶長時代)としてはまとまった瓦産地となった時期とする説に基づいている。実際、原料素地としての粘土資源に恵まれていたため、高田屋喜平(1769～1827)が瓦船で商品を運んだといわれているようにこの頃すでに瓦を各地に供給する有数の産地であった。現在も施工されている伝統的屋根材であるいぶし瓦が後述するように基本的にCVD法により製造されるようになった

Key-words: 粘土瓦、いぶし瓦、伝統製品、CVD法、炭素材料、焼化

注1 予め900～1000℃程度に加熱した粘土成形体に炭化水素を含む気体を酸素を絶った雰囲気中で導入して粘土成形体表面に炭素膜を形成させること。以前は、松割木・松葉など天然樹木等を加熱分解・不完全燃焼して発生する炭化水素ガスを炭素源としていた。この製造プロセスは熱CVD(Chemical Vapor Deposition)である。このCVD炭素による光の反射・散乱によりいぶし瓦が独特の光沢を呈する。

注2 固体表面上に薄膜を形成させる技術の一つ。固体基板を高温に加熱して、気体中の特定成分、あるいは化学反応生成物を固体基板上に沈着させる熱CVD法、有機金属化合物を気化させて製膜するMOCVD法、気体をプラズマ分解することにより比較的低温で基板上に膜を形成されるプラズマCVD法などがある。PVD(Physical Vapor Deposition)法に対応する手法。



図1-1) 昭和45年頃まで稼働していた半倒焰窯(南あわじ市津井産来)



1-2) トンネル窯
写真のトンネル窯は全長は約70m、一日約5,000枚の瓦を製造。
ユニハブキルンで、長さ5mのユニット窯12～13基で構成されており、ユニットは取り外し可能で、生産調整、生産現場の移動などができる。



1-3) いぶし単窯
一基は一辺約4.5mのほぼ立方体。
一基で瓦素地2,000枚装填、5基の連結で10,000枚装填可能。
24時間の焼成、24時間の冷却。

図1 いぶし瓦焼成・燻化炉

1) 石炭燻化窯 2) 炭化水素ガス燻化トンネル窯 3) 炭化水素ガス燻化単窯

のは安土桃山時代といわれ、独特の銀光沢が雲の波を醸しだし、威容と優美さを誇示する城郭建設には不可欠な屋根材となり、実用的にも優れた耐火材であるため、大火の度に瓦屋根家屋が奨励された。この頃からいぶし瓦は、松材などの割木を燃料として粘土を焼成し、松葉、松材の不完全燃焼により発生した炭化水素を含む混合気体を加熱した粘土素地上に導入すること(燻化)により製造された。

しかし一般市民の屋根材として粘土瓦の生産量が増えたのは明治以降であって、これは人口増加、人口の都市部への集中、そして住宅建設の増加に対応している。大正時代には瓦需要の増大に 대응するように、発電機を動力源とする土練り用の土練機、押し出機がヨーロッパから輸入され、全てが手作業で行われていた製瓦現場が変貌し、次第に周辺の鉄工所から機械が供給されるようになり、製瓦を核とする地場産業クラスターが形成される。この間、もっぱら松割木であった燃料も石炭が用いられ、その後、重油、軽油、灯油そして今日のブタンガスに至る変遷があった¹⁾。

図1-1は1970年ころ休止した半倒焰窯で、燃料は石炭である(構造は文献*参照)。この当時の瓦製造従事者は未だ手作業の窯詰め、燃料の管理・供給、目視による温度管理、燻化、冷却時の空気の遮断、窯出しなど全て手作業による重労働が毎日の勤めであり、

典型的な労働集約型産業であった。

やがて ガス窯の導入はいぶし瓦製造工程にも導入され、比較的静かな伝統的瓦産地も近代工場群の林立する一大産地と変貌してきた。

図1-2、1-3)は現在のいぶし瓦製造トンネル窯と単窯である。原土の配合から成型、焼成、窯だし、出荷に至るまでほとんどの工程が機械化・自動化されており、図1-1の窯により全てが手作業で製造されていた当時とは隔世の感がある。ところで、図1-1の窯は1970年頃休止したといわれているので、淡路地区では1960年代にガス窯が普及してきたようである。

粘土瓦はいぶし瓦と陶器瓦(釉薬瓦)に大別されるが、いぶし瓦の産地である淡路地区においても釉薬瓦(陶器瓦)が製造されるようになり、1960年頃からガストンネル窯が導入されてから大量生産されるようになった。そのカラフルな色調は住生活の洋風化に 応える屋根材として需要拡大し、70年にはいぶし瓦の生産量を凌駕するに至った。1955年から始まった全事業所対象の工業統計調査(現経済産業省)が示すように、60年代のガス窯・トンネル窯導入による大量生産体制整備以来、兵庫県粘土瓦生産量は急速に増加し、これとともに県内では大量生産システム化への転換をいち早くなし遂げた淡路地区にますます生産の集約化が進んだ。この産地集約化の傾向は全国的に

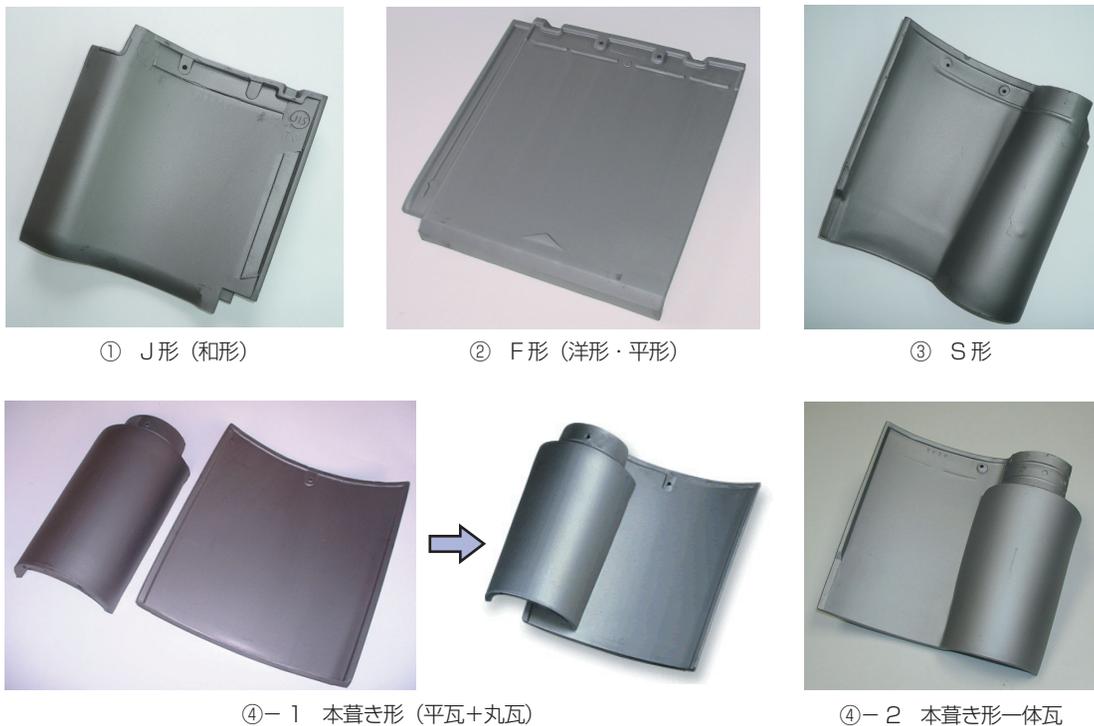


図2 淡路いぶし瓦の基本形：①J形(和形)、②F形(洋形・平形)③S形、④本葺形

J形・・・重量 2950 g/全長 305mm×全幅 305mm (53判/坪 53枚使用)
 F形・・・重量 3900 g/全長 350mm×全幅 345mm (40枚判)
 S形・・・重量 3600 g/全長 310mm×全幅 310mm (48枚判)

も進行し、愛知、島根、兵庫(=淡路)の三大産地が形成されてきた。このように大量生産システム導入と欧風化の寵児として増産が続いた淡路地区の釉薬瓦も、75年から80年ころのピーク生産量を過ぎ、85年ころから再びいぶし瓦の生産量が釉薬瓦を凌駕するようになった。これは瓦の三大産地間で特徴ある製品の棲み分けが行われるようになり、また、伝統的屋根材、高級屋根材としてのいぶし瓦の再評価とも相まって淡路地区はいぶし瓦の生産地として位置づけられ、今日に至っている。

現在製造販売されている淡路いぶし瓦の代表例を図2に示す。ここに示すJ形、F形、S形を基本様式とし、これに伝統的な本葺形が加わる。このいぶし瓦に対応した各種釉薬瓦(陶器瓦)が製造され、比較的最近では「窯変瓦」、「防災瓦」、「融雪瓦」と称される新製品が選択肢の豊富さを求めるニーズに応えるため登場

した(図3)。淡路瓦工業組合によればいぶし瓦と釉薬瓦、窯変瓦を合わせて約1,000種類の商品の供給が可能である。

一方、粘土瓦は我が国の伝統的屋根材であるとともに、工業製品であることから、絶えず品質と生産技術の向上のための開発事業も業界の共通の課題である。

淡路いぶし瓦に関する主な課題として1) 原土の枯渇化対策、2) 耐寒性の向上、3) ガス燻化法で発生する欠陥の防止、などである。いぶし瓦の欠陥として、①硫酸塩が表面に析出する「発華」現象、②鉄分の多い原土に由来し、炭素表面が鉄錆色になる「さび」、③いぶし銀光沢を呈しない黒色の炭素が沈着する「すすまき」、④冷却時の酸化により炭素膜の退色する「のぼり」、⑤海水成分の付着により急速に進行する炭素膜の劣化である「塩害」、などが挙げられる。①、②は素地の十分な粉碎と焼成、③は燻化ガス濃度の制御、④



図3-1. 窯変瓦

いぶし瓦を主製品とする淡路地区では、いぶし技術を応用して、変化に富んだ製品作りが工夫されている。

窯変瓦はその代表例で、粘土素地の酸素濃度を調節することにより、特に、ミクロ的な酸素濃度の不均一性を利用し、炭素と素地中の酸化鉄による呈色により、独自の外観を呈する。



図3-2. 欧風釉薬瓦

使用する釉薬により彩色、グレー、黒、などがある。一方、いぶし瓦風合いを呈する釉薬製品も多い。形状と色調の組み合わせにより多くの種類の製品がある。



図3-3. 防災瓦

阪神・淡路大震災以降、地震・台風に耐久性のある瓦が開発された。屋根に釘で固定する穴と、瓦どうしを重なり部分で連結する役目を果たすL形のツメ(フック)を有する。全長355mm×全巾345mm、3.8Kg



図3-4. 融雪瓦

いぶし炭素膜を電気抵抗材として銅板を電極として通電して発生した熱により融雪する機能性瓦。(いぶし炭素膜に直接通電することは安全上、現在中止されている。)

図3 種々の淡路粘土瓦

1) 窯変瓦 2) 欧風陶器瓦 3) 防災瓦 4) 融雪瓦

注3 ①炭素にX線を照射して1s電子を放出させて生じた空孔に2p電子が遷移したときに発生する特性X線スペクトルと、②放射光のように連続したX線源を用いて、X線が炭素に吸収されるとき吸収端の微細構造(XAFS: X線吸収端微細構造)があり、いずれも炭素の化学状態・結合状態を反映するため、炭素の構造を解析することができる。特にグラファイト構造炭素のXAFS(特にNEXAFS: X線吸収端近傍微細構造)は、グラファイトの六角平面網面に平行な σ^* 電子軌道に起因するピークとこれに垂直な π^* 電子軌道に起因するピークから構成されている。平面規則性が高いほど、測定角度により π^*/σ^* 強度比が大きく変化し、規則性が低下すると角度変化が少なくなる。このようにして π^*/σ^* 強度比の測定角度依存性はグラフェンの配列規則性の指標となる。さらに蛍光法と吸収法では信号深さが異なるため、両法で測定したデータを比較すると深さ方向の構造解析が可能となる。本法はいぶし瓦表面炭素のようにアモルファス、低秩序構造の炭素の構造解析に特に有用である。

空気の混入防止により低減することができる。

2. いぶし瓦表面炭素の構造

いぶし瓦は900～1000℃に加熱された粘土素地上に空気を遮断してブタン、プロパンなどの炭化水素ガスを導入して、炭化水素が分解することにより、粘土素地表面に炭素を沈着させることにより製造され、この製造プロセスは典型的な熱CVD(Chemical Vapor Deposition)法である。いぶし瓦表面炭素の構造に関しては、70年代から80年代にかけて研究が行われ、約2nmサイズの炭素結晶子が粘土基板表面に対して(002)面が統計的にほぼ一定の角度で配向して積層した構造をしていることが解明された²⁾。その後の定量的な検証がEPMAにより炭素のX線放射スペクトル^{注3)}を測定することにより、グラファイトの(002)面が基板面に平行に配向した成分 I_{basal} と垂直に配向した成分 $I_{\text{prismatic}}$ の和; $I_{\text{ibushi}} = \alpha I_{\text{basal}} + \beta I_{\text{prismatic}}$ で表され、 β/α 比が約0.2の値の炭素膜であると判明した³⁾。

図4に1970年代と1990年代以降のいぶし瓦表面

炭素のSEM写真を示す。表面炭素は、炭化水素ガスが粘土素地表面で分解して発生した「核」を中心に発達して形成された独特の模様を呈する。断面を観察すると整然とした炭素のナノサイズの積層構造が見える。このように、いぶし炭素膜はナノ構造制御されたナノ炭素材料といえる。70年代の製品にはガス燻化法の技術的蓄積が浅かったためか、炭化水素濃度と酸素の混入に応じて球状の炭素、繊維状の炭素しばしば認められ、これらが観察される部分は黒色・煤状を呈する。

3. いぶし瓦の耐候性・寿命

2000年代になり、最先端の解析手法である放射光を駆使したいぶし瓦炭素の構造解析が村松教授により精力的に行われた^{4～8)}。放射光解析による特に顕著な成果として、いぶし瓦表面炭素の耐久性(耐候性)の評価を挙げる事ができる。図5に10年間のウェザリングによるいぶし瓦表面の構造の変化を炭素の放射光軟X線スペクトルで追跡した結果を示す。おうよそ

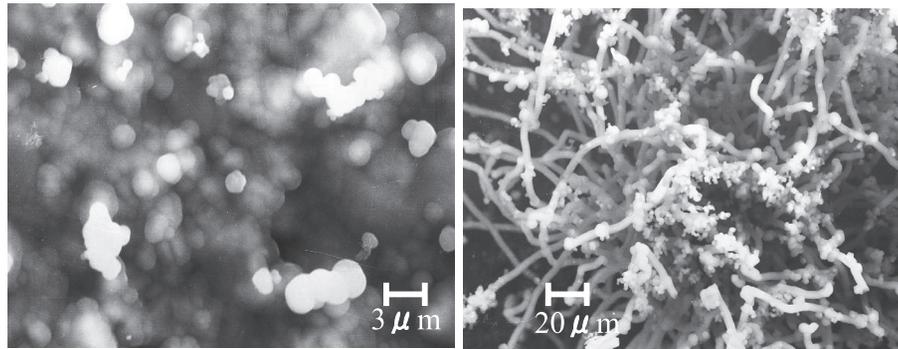


図4-1. 1970年代のいぶし瓦表面炭素のSEM写真
炭化水素ガスによるいぶし瓦製造法が導入された当時。

CVD炭素模様をした表面炭素上に球状炭素が存在すること、製品によっては繊維状の炭素が存在し、この部分は肉眼では黒色・煤状を呈する。これは炭化水素ガス濃度が高く、また酸素が混入したときにしばしば生成する。

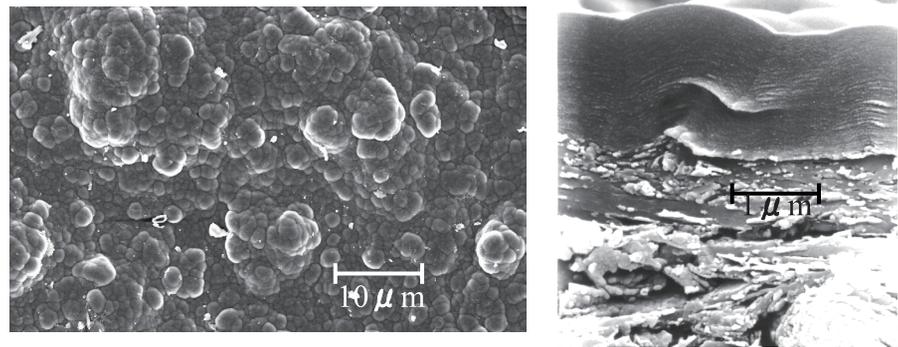


図4-2. 1990年代以降のいぶし瓦表面炭素のSEM写真

CVD炭素独特の模様をした表面炭素に覆われ、いぶし銀光沢を醸し出す。断面を観測すると炭素が規則正しく積層して入ることが観察される。一層の厚みはグラフェンシートから類推して、サブナノメートルと考えらる。このようにいぶし瓦表面はナノ構造炭素で形成されている。

図4 いぶし瓦表面炭素の走査型電子顕微鏡(SEM)写真

数 nm 以内の極表面を検出する全電子収量法による吸収スペクトルは約 10 年の間、炭素の層状構造が乱れ、劣化が順次進行する。一方、数十 nm 以上の深い領域を解析する発光法による炭素のスペクトルは 10 年間のウェザリングの間、変化しない。このことは 10 年間のウェザリングで劣化するのは最表面からの高々 10nm までの炭素である。いぶし炭素膜の厚さは 2 ~ 3 μm であるので、全ての炭素が劣化するには 2,000 年 ~ 3,000 年のウェアザリング年月を要する。すなわち放射光解析により見積もらたいぶし瓦炭素の耐久性は 2,000 年 ~ 3,000 年である⁹⁾。

4. 阪神・淡路大震災

淡路地区の瓦産業にとって阪神・淡路大震災は 14 年経った現在でも極めて深刻な影響を及ぼしている大災害である。当時神戸・阪神間の大都市部でも比較的多かった木造瓦葺き住宅が倒壊し多くの犠牲者が出た

ことがこれ以降の住宅建設における瓦離れ現象を加速した。大震災直後、マスコミも連日倒壊した瓦屋根住宅を放映・報道した。しばらくして瓦屋根住宅の倒壊はシロアリ被害による家屋の脆弱化が大きな原因であることなども報道されたが、粘土瓦=重い屋根材=家屋の倒壊、の図式が一気に世相を支配した。この典型的な報道例が米週刊誌「TIME」であり、「まずこの重い屋根瓦を軽量のプラスチックに置き替えるべし」との米専門家の見解が国内ばかりか全世界に発信された¹⁰⁾。産地でもこの世論には抗しがたく、軽量瓦の開発、J形いぶし瓦の 2 割程度の軽量化、一体棟瓦の開発、さらに軽量高強度瓦の開発などを公設試の協力を行ってきた。さらに瓦の下の土葺きの廃止、瓦自体の固定を行い施工すれば震度 7 の地震にも瓦屋根は耐えうることを発信し、このような産地の耐震住宅への対応も 95 年秋以降には報道され始めた。今では図 3-3 に示すような地震・台風など自然災害に対する備えを基

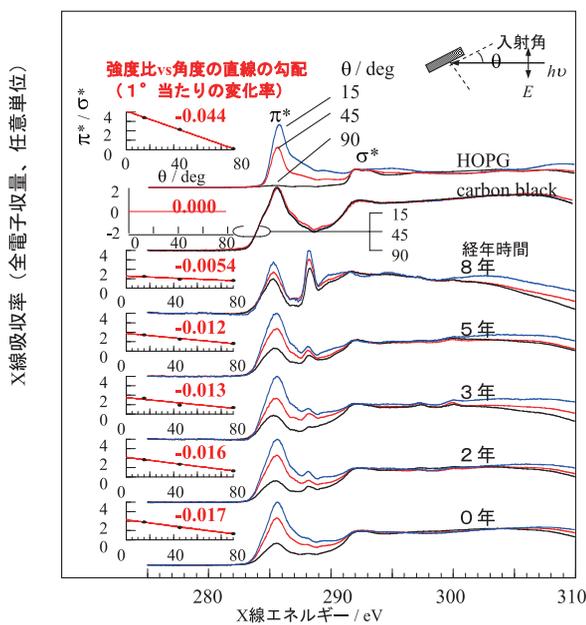


図 5-1. ウェザリングによるいぶし炭素膜の XAFS スペクトルの変化

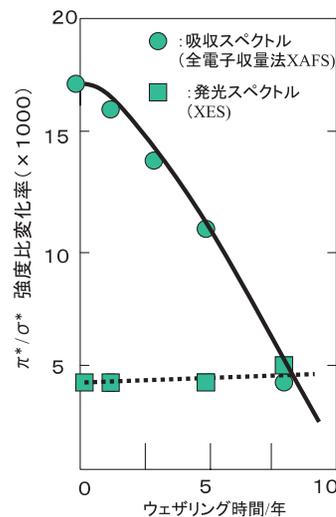


図 5-2. ウェザリングによるいぶし炭素 XAFS スペクトルの π^*/σ^* 強度比の変化率
全電子収量法で測定した吸収スペクトル (XAFS) と発光 X 線スペクトル (XES) の変化を比較して示す。

図 5 ウェザリングによるいぶし瓦表面炭素 XAFS スペクトルの変化

グラフェン積層構造を有する炭素 XAFS には 286eV 付近の π^* ピークと 293eV 付近の σ^* ピークが存在し、参照資料である HOPG (Highly Oriented Pyrolytic Graphite) で示すように π^*/σ^* 強度比は測定時の試料表面に対する放射光の入射角度により変化する。これに対して規則的積層構造を有しないカーボンブラックでは π^*/σ^* 比は入射角度により変化しない。このように π^*/σ^* 比は積層構造が乱れると減少し、積層構造の規則性の指標となる。いぶし瓦表面炭素の XAFS はウェザリングにより π^*/σ^* 強度比の角度変化が減少する。これは図 5-1 の XAFS の左側に放射光の入射角度 vs. π^*/σ^* 強度比の直線の勾配により数値化して示している。図 5-1 は表面の数 nm 程度の深さを検出する全電子収量法により測定された。一方、表面から数十 nm 以上の深い位置から発生する X 線発光スペクトル (XES) の π^*/σ^* 強度比は図 5-2 に示すように約 10 年間のウェザリングでは全く変化しない。このことは約 10 年間のウェザリングでいぶし瓦炭素の積層構造が乱れるのは高々 10nm であることを示唆している。

本コンセプトとする「防災瓦」が製造販売されている。さらに淡路瓦工業組合では瓦屋根の耐震性の試験機を組合内で設置し、公設試を通して認定するという独自の体制を整備している。また耐寒性向上により販路も宮城県まで拡大している。

5. 今後の展望

屋根材としての耐震設計、防災瓦の開発、耐寒性の向上、淡路いぶし瓦の「JAPAN ブランド」事業認定、「淡路瓦」の地域団体商標（地域ブランド）認定など産地の努力にもかかわらず震災以降瓦出荷量は減少し、昨年から世界的な経済後退の波は淡路瓦も直撃し、さらに出荷量が減少する状況である。住宅建設の減少による屋根材全体の出荷量が減少し、未だ大震災以降の「瓦離れ」が影響している中で、淡路いぶし瓦産業の模索する活路を考えてみたい。

一つにはいぶし瓦の有している優れた物性をPRすることである。いぶし瓦の製造プロセスはCVD法であることに必然して、いぶし瓦表面炭素は高度に構造制御されたナノ炭素膜である。図5で示したように2,000年～3,000年の対ウエザリング耐久性を有することは、現在提唱されている100年住宅、200年住宅の建設に適した屋根材である。いぶし瓦は専ら木造日本住宅屋根材であるが、欧風・鉄筋コンクリート建造物に施工されむしろ斬新な景観を形成することができる。

いぶし瓦は我が国で発達した炭素CVD技術で製造され、炭素繊維、炭素ナノチューブなど先端炭素製品の世界的供給国で生産される独自のナノ炭素工業製品であること、しかも日本の伝統的製品でもあることを海外へPR・普及することも選択すべき方策である。例えば、淡路島で開催されたTXRF2003（全反射X線分析国際会議、2003年9月）⁷⁾の出席者が淡路を代表するいぶし瓦工場を見学した際に、「大変美しい瓦なので、ぜひ自宅の一部に施工したい。入所方法を知りたい。」というドイツの科学者はじめ強い関心を集めた。一行はこの後京都を訪ね、多くの寺院がいぶし瓦屋根であることを知ることになった。海外へのエコマイレッジが課題ならば、技術移転も視野に入れるべきである。

最近いぶし炭素膜の電磁的機能性に着目した新製品開発として、電波吸収体が開発されている¹¹⁾。これはピラミッド型の粘土成形体にいぶし炭素膜を沈着させて作製し、GHz帯の電波を広い周波数範囲で吸収する。いぶし瓦の優れた耐久性を生かして大きな電力照射にも繰り返し耐久性がある。このように先端分野の

研究者にとってもいぶし瓦炭素は魅力ある研究対象である。このような積極的な展開とともに、技術の継承と今後の展望のためにもその時々技術のまとめ、保存も必要である。田中博士による「粘土瓦ハンドブック」¹²⁾はランドマーク的集大成であり、産地が共同出版した「淡路瓦マニュアル」¹³⁾も貴重な資料である。さらに製品の科学・技術的解析、データを発信することも重要である¹⁴⁾。

6. 終わりに

炭化水素ガスから炭素を固体膜として固定して、製造反応後には水素が分離（発生）されるいぶし瓦製造法は、低炭素社会を模索する今世紀に適合し、その構築に貢献できる優れた技術である。古くから育んだいぶし瓦製造技術を低炭素化技術として捉え、産学官の英知を結集することにより、一例に引用したような新製品開発による市場の閉塞感打破、活路開拓の契機となりうる。

文 献

- 1) 小林章男, 山田脩二著 「瓦—歴史とデザイン」2001年 淡交社
- 2) 元山, 田中, 石間, 橋詰, 窯業協会誌 **88**, 51-57 (1978)
- 3) 元山宗之, 溶融塩 **26**, 29-57 (1983), 京都大学博士学位論文(論工博第1492号, 1982年)
- 4) 大林真人, 村松康司, Eric M. Gullikson, 三木雅道, 電波吸収セラミックス表面に燻化膜したいぶし炭素膜の放射光軟X線状態分析, X線分析の進歩, **38**, 259-271 (2007).
- 5) Y. Muramatsu, M. Hirose, M. Motoyama, E. M. Gullikson, and R. C. C. Perera, IPAP Conference Series **7**, 331-333 (2006)/Proceedings of The 8th International Conference on X-ray Microscopy, XFM2005.
- 6) Y. Muramatsu, M. Yamashita, M. Motoyama, M. Hirose, J. D. Denlinger, E. M. Gullikson, and R. C. C. Perera, X-Ray Spectrometry, **34**, 509-513 (2005)/Proceedings of European Conference on X-Ray Spectrometry, EXRS2004 (Alghero, 2004).
- 7) Y. Muramatsu, M. Yamashita, M. Motoyama, J. D. Denlinger, E. M. Gullikson, and R. C. C. Perera, Spectrochimica Acta B, **59**, 1317-1322 (2004)/Proceedings of The 10th International Conference on Total Reflection X-Ray fluorescence Analysis, TXRF2003 (Awaji, 2003).
- 8) Y. Muramatsu, M. Motoyama, J. D. Denlinger, E. M. Gullikson, and R. C. C. Perera, Jpn. J. Appl. Phys., **42**, 6551-6555 (2003).
- 9) 元山宗之, 村松康司, ROOF&ROOFING (屋根と屋根材) 44-48, 2004年10月(秋号)
- 10) 「TIME」誌, p.25, 1995年2月6日号
- 11) 畠山, 中村, 広瀬, 霞内, 電子情報通信学会論文誌, **J19-B**, 870-872 (2208), 電気学会論文誌A, **128**, 497-498(2008)
- 12) 田中稔, 「粘土瓦ハンドブック」1980年(技報堂出版)
- 13) 「淡路いぶし瓦&陶器瓦マニュアル」—Clay Rooftiles for Architectural Engineer—兵庫県粘土瓦協同組合連合会編 1993年((株)旭通信)
- 14) 元山宗之, 村松康司, ROOF&ROOFING (屋根と屋根材), 34-38, 2004年7月(夏号), 44-48, 2004年10月(秋号), 57-60, 2004年2005年1月(春号)

[連絡先] 元山 宗之
 兵庫県立大学 高度産業科学技術研究所
 〒678-1205 兵庫県赤穂郡上郡町光都3-1-2