

高機能素地の開発（第2報）

常世田茂* 小島均**

1. 緒言

笠間焼の素地土は、強度が低く業務用食器などには適さないため、用途は個人向けが中心でした。そこで、笠間焼の新市場開拓を図るために業務用に使用できる素地の改良研究を実施しました。

笠間素地は、磁器素地に比べると強度の不足、乾燥収縮率が大きいなど製品性能や生産性等で不利な点があるので、従来の笠間素地を主原料に量産に適した素地の開発を実施しました。その結果、笠間素地を主原料に地元産原料を配合した量産向け素地を開発したのでその結果を報告します。

2. 開発素地の目標仕様と研究方法

開発素地は乾燥収縮率8%以下、SK7～8の焼成で曲げ強度50MPa以上、全収縮率13%程度、煮沸吸水率2%未満、その他に成形性に優れ陶器の風合いを崩さないことを目標としました。

3. 試験方法

3.1 使用原料

試験に使用した原料を下記に示します。

- ・主原料：笠間素地（笠間焼協同組合・単味粘土）
- ・副原料：珪石・長石（福島窯業 100mesh）
花崗岩飛粉（常陸稲田砕石製）
アルミナ（住友化学 AES-11）
京都半磁器
A A カオリン
天草陶石（特級品）
北茨城蛙目粘土
蛙目粘土（土岐口）

各原料のノルム鉱物組成を図1に示しました。

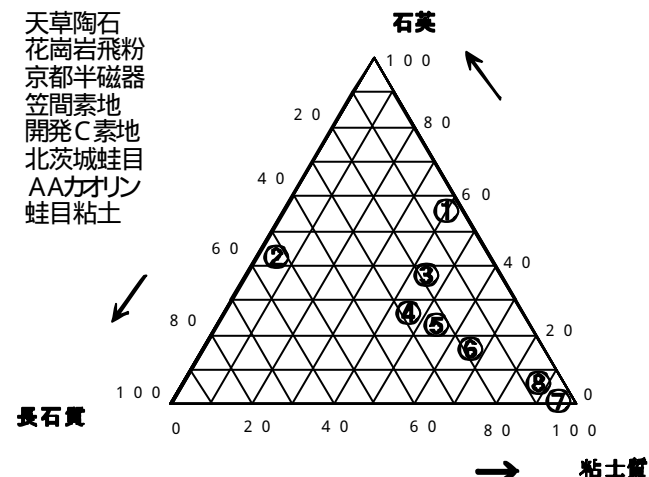


図1. 使用原料の成分組成値

3.2 試験及び測定の方法

素地試験、曲げ強度及び元素組成分析等は前報1)と同様の方法で行いました。素地の乾燥収縮率の常法2)に従い測定しました。

4. 試験内容

前報1)と同様に湿式粉碎による粒度調整と副原料の配合による下記の試験を行いました。

4.1 粉碎時間と副原料の絞り込み

前報1)の結果にもとづき、5hr と 30hr 湿式粉碎した素地に、副原料として珪石、長石、地元産原料の花崗岩飛粉、アルミナ及び京都半磁器土の合計5種類を選び、各20%配合後所定の湿式粉碎を行い、曲げ強度等について検討しました。

4.2 調合条件の検討

主原料と副原料の調合条件として、原料を配合後に湿式粉碎する方法（以後同時粉碎とする）及び主原料だけを湿式粉碎して副原料を後から配合する（以後後混合とする）の2通りの方法について曲げ強度等について検討しました。なお、湿式粉碎時間は5hr及び副原料配合割合は各20%としました。

4.3 最適粉碎時間の選定及び副原料配合効果の検討

湿式粉碎時間を1hr、3hr、及び5hrとし副原料を10%、20%及び30%の割合で配合した素地について乾燥収縮率、煮沸吸水率及び曲げ強度等について検討しました。

なお、原料の調合条件は3.1.3の結果から後混合としました。

4.4 素地調整と調整素地の性能評価

上記の結果から開発目標を満足する湿式粉碎時間及び副原料の配合割合を決定し、素地調整を行いその性能を検討しました。

4.5 焼成素地中の鉱物組成

副原料の効果を検討するために焼成素地中の鉱物組成を粉末X線回折法により測定しました。

測定方法は前報1)と同様の方法で行い、焼成素地中の石英、クリストバライト、ムライトについて検討を行いました。

5. 粉碎時間と副原料の検討試験結果

5.1 粉碎時間と副原料の絞り込み結果

珪石、長石、花崗岩飛粉、アルミナ及び京都半磁器の5種類の副原料について検討を行い、その結果の内京都半磁器土及び珪石の結果を図2に示しました。

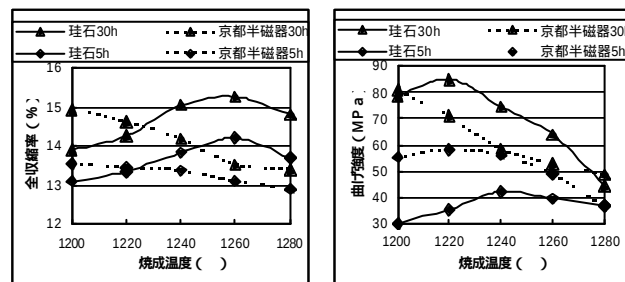


図2 粉碎時間による全収縮率及び曲げ強度の変化
(珪石または京都半磁器20%配合)

粉碎時間30hrで曲げ強度が80MPa以上になりましたが、全収縮率は15%前後と目標値を上回りました。5hrでは副原料によっては目標強度を下回りましたが、全収縮率はほぼ目標値であったので、湿式粉碎時間は5hr以下が望ましいと判断しました。

副原料別では、珪石は全収縮率を改善することが判り

ました。花崗岩飛粉は乾燥、全収縮率を改善しました。京都半磁器は曲げ強度、全収縮率とも向上しました。アルミナは曲げ強度は大きく向上させるも全収縮率には余り影響を及ぼませんでした。

この結果から効果が少ない長石と高価で実用に向かないアルミナを副原料から除きました。

また、副原料に結果の良かった京都半磁器土の素地組成を参考に、新たにムライトの生成による強度向上が望めるカオリンと、脱粘性材料で笠間素地に不足している石英分を多く含む天草陶石を加えました。

5.2 素地調整と調整素地の性能評価結果

調査条件の検討結果を表 1 に示しました。

表 1 配合条件の違いによる結果
(湿式粉碎時間 :5hr / 副原料配合割合 :各20%)

副原料	処理法	曲げ強度 (MPa)	乾燥収縮率 (%)	全収縮率 (%)
京都半磁器	同時粉碎	65.8	8.0	14.3
	後混合	57.6	7.8	13.3
AAカオリン	同時粉碎	49.2	8.5	15.6
	後混合	49.3	7.5	14.4
天草陶石	同時粉碎	49.3	8.3	13.6
	後混合	43.1	8.3	13.7
花崗岩飛粉	同時粉碎	50.4	7.7	12.6
	後混合	48.8	7.5	12.4
珪石	同時粉碎	43.3	7.5	14.0
	後混合	39.1	8.0	14.2

曲げ強度は、同時粉碎がカオリンを除き後混合より良好でした。また、後混合では副原料によっては曲げ強度が目標に達しませんでした。乾燥・全収縮は同時粉碎より良好でした。

調整法による効果の違いを考慮し、乾燥、全収縮率と曲げ強度の目標達成の可能性を考えた、後混合を以後の素地調整方法としました。

5.3 粉碎時間の選定及び副原料配合効果の検討結果

副原料別の粉碎時間と配合割合の変えた場合の乾燥収縮率及び曲げ強度の検討結果を図 3-1 ~ 3-5 に示しました。

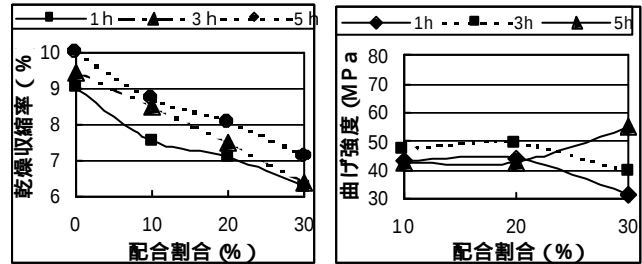


図3-1調整素地の性能評価結果 :珪石

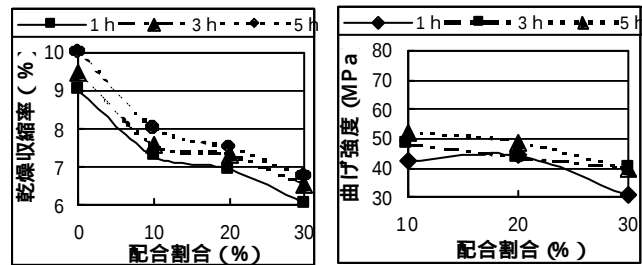


図3-2調整素地の性能評価結果 :花崗岩飛粉

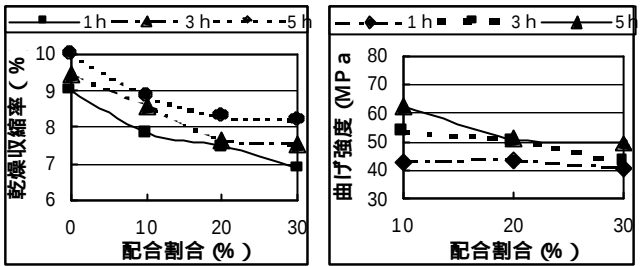


図3-3調整素地の性能評価結果 :天草陶石

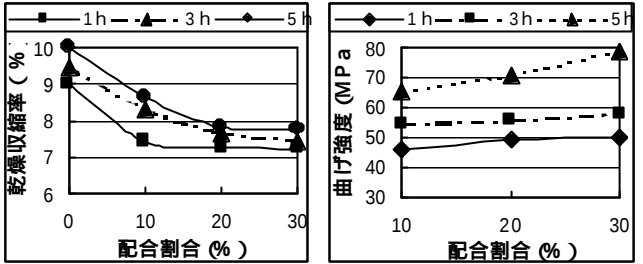


図3-4調整素地の性能評価結果 :京都半磁器

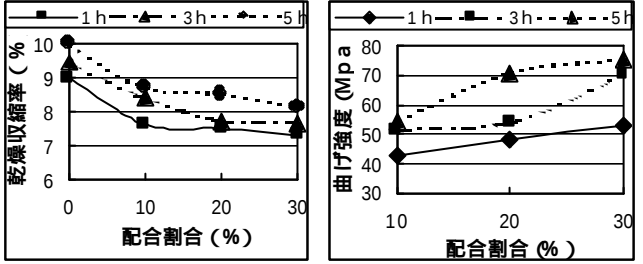


図3-5調整素地の性能評価結果 :AAカオリン

粉碎時間については 1hr では曲げ強度が目標に達せず、5hr では乾燥収縮率が目標値を満足しないことがわかり、湿式粉碎時間は 3hr が適正であると判断しました。

副原料別では、脱粘材料である珪石、花崗岩飛粉及び天草陶石は乾燥収縮率を改善しましたが、配合割合が 20%を越えると曲げ強度が低下する事が分かりました。

京都半磁器及び A A カオリンは、曲げ強度が向上し、配合割合が 10%までは乾燥収縮率も改善しました。

全収縮率と煮沸吸水率について、3 時間粉碎素地に副原料を 30%配合した結果について図 4-1 及び 4-2 に示しました。

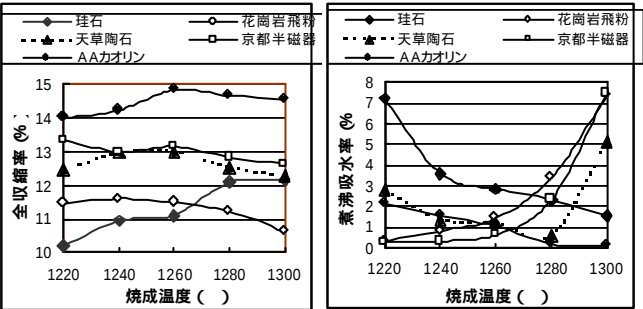


図4-1 副原料30%配合・3hr粉碎素地の全収縮率

図4-2 副原料30%配合・3hr粉碎素地の煮沸吸水率

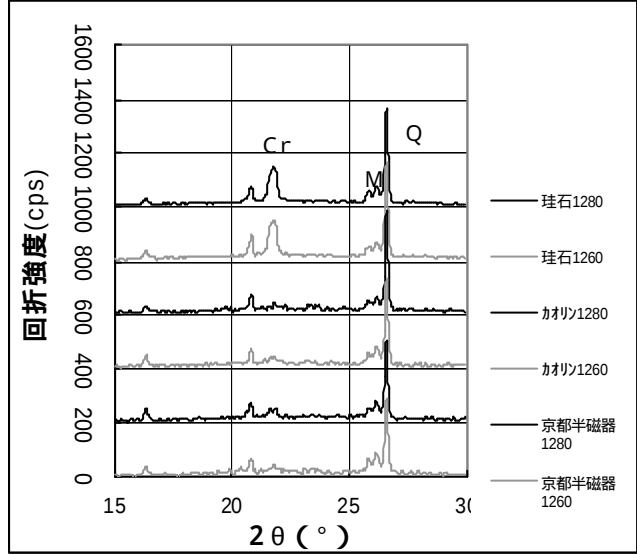
A Aカオリンは全収縮率が 14%台と最も大きいものの煮沸吸水率は広い焼成温度幅で 2%以下であることから焼成幅の広い焼成しやすい素地になることが推察できました。

珪石は 1300 で全収縮 12%前半，煮沸吸水率 2%未満となり，配合量が多いと耐火度が上がりことが分かりました。

これ以外にも試験用素地を作る際に珪石と花崗岩飛粉は配合割合が 10%を越えると可塑性が悪化することが分かりました。

5.4 焼成素地中の鉱物組成

副原料の配合し焼成した素地の粉末 X 線回折試験の結果を図 5 に示しました。



Q:石英 Cr:クリストバライト M:ムライト
図5 焼成素地のX線回折試験結果

珪石配合素地で石英が多く残留し，クリストバライトも多く生成したこと及びA Aカオリン配合素地焼成でクリストバライトがほぼ消失したほかは明確な差異認められませんでした。またムライトの生成はA Aカオリン配合素地で回折強度の比較でやや多く生成していると思われましたが，曲げ強度とムライトや石英の関係は明確ではなく素地中の各鉱物種の定量や組織について検討を行わなければならないと思われました。

5.5 副原料の効果

副原料の効果を明らかにするため，主原料に副原料を 20%後混合で配合した素地の評価を図 6 に示しました。なお，各項目の評価基準を表 2 に示しました。

評価点	製造上の性能			製品としての性能		
	乾燥収縮率	焼成幅	成形性	煮沸吸水率	曲げ強度	副原料価格
5	7%未満	1230 ±80 で安定	優	1230 ±60 で 2%未満	70MPa以上	¥50/kg未満
4	7%以上	1230 ±60 で安定	良	1230 ±40 で 2%未満	60MPa以上	¥50/kg～
3	7.5%以上	1230 ±40 で安定	可	1230～1250 で 2%未満	50MPa以上	¥100/kg～
2	8%以上	1230 ±20 で焼結	難	1230～1250 で 3%未満	40MPa以上	¥200/kg～
1	8.5%以上	範囲内で焼結せず	不可	1230～1250 で 3%以上	40MPa未満	¥300/kg～

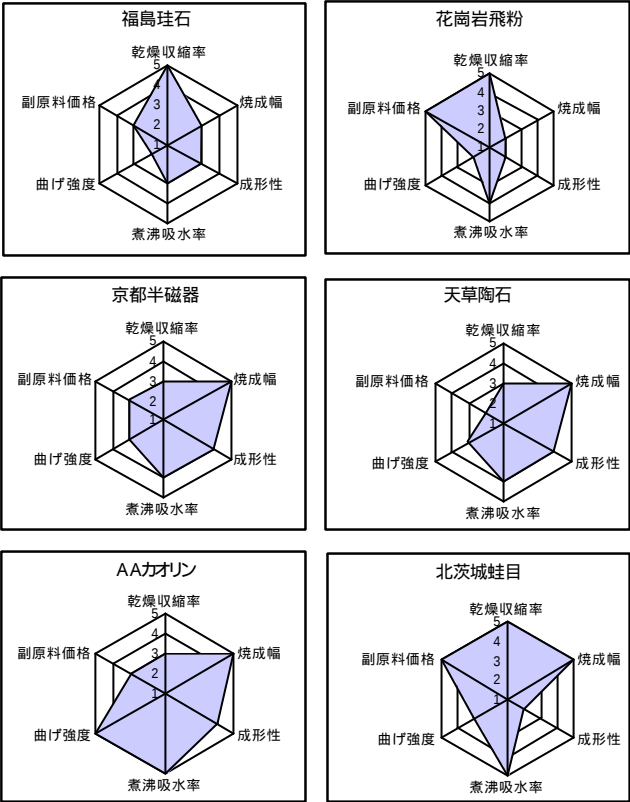


図6 配合素地の評価結果 副見料を20%配合した場合

乾燥収縮率の改善に効果のある副原料は，珪石，花崗岩飛粉及び次に述べる素地調整に用いた北茨城蛙目粘土でした。

曲げ強度に効果のあるものはA Aカオリンで，やや効果は落ちるものの京都半磁器及び北茨城蛙目粘土でした。

煮沸吸水率についてはA Aカオリン及び北茨城蛙目，焼成幅はA Aカオリン，北茨城蛙目及び天草陶石が効果が高い副原料でした。

6 素地調整

6.1 素地の調整 1 (開発A素地)

5 に述べた検討結果から主原料の粉砕時間は 3hr，副原料の配合割合は 30%が適正であると考えました。

また，配合する副原料は曲げ強度の向上にA Aカオリンを，乾燥収縮の改善に珪石 5 %を加えた素地を調整しました。この「開発A素地」とし，その性能評価

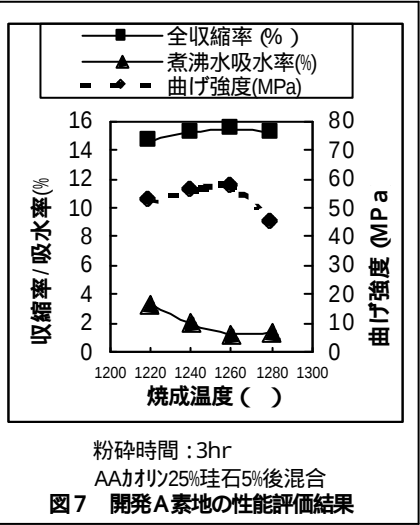


図7 開発A素地の性能評価結果

結果を図7に示しました。

開発A素地は、曲げ強度と煮沸吸水率は目標を満足しカオリン-珪石系の副原料配合が有効性を確認できました。しかし全収縮率が目標の13%を越えるので、さらに改良試験を行いました。

6.2 素地の調整2 (開発B素地)

カオリン-珪石系の組み合わせに原料組成が近似している地場産原料に北茨城で産出する蛙目粘土があります。この蛙目粘土は粘土分と珪石分を多く含むので副原料として有望と考えました。北茨城蛙目粘土の組成を図1に示しました。

A素地で配合した副原料30%を北茨城蛙目粘土で置換えた素地調整を行いました。可塑性が非常に悪く、実用に耐えないため主原料と混合後、湿式粉碎を3hr行い素地調整を行ないました。開発B素地の性状は図8に示しました。

結果はA素地に比べ全収縮率が13%台に改善し、曲げ強度と煮沸吸水率も目標を達成できました。

しかし、可塑性が不十分なので、可塑性向上のための調整を行いました。

6.3 素地の調整3 (開発C素地)

B素地では、可塑性に難があり実用に耐えないため、可塑性を改善するための配合調整を行いました。

主原料70%に北茨城蛙目粘土15%を配合し3hr湿式粉碎を行った後、蛙目粘土を15%配合し「開発C素地」としました。開発C素地の性状を図9に示めました。

C素地の乾燥収縮率は7%、SK7-8焼成で曲げ強度50MPa台、全収縮率13%後半、煮沸吸水率1%未満でほぼ目標を満足しました。

可塑性は、B素地に比べ向上し実用上問題がない状態になりましたが、全収縮率が若干大きくなりました。

笠間素地及び開発C素地の乾燥収縮曲線を図10に示しました。笠間素地では恒率乾燥期が終了した後も緩やかに収縮し減率乾燥期に入っても収縮が続き、乾

燥管理や化粧掛が難しい素地であることがわかりました。これに対し、開発C素地は含水率約10%で収縮が止まり、乾燥管理など容易な素地に改良できました。

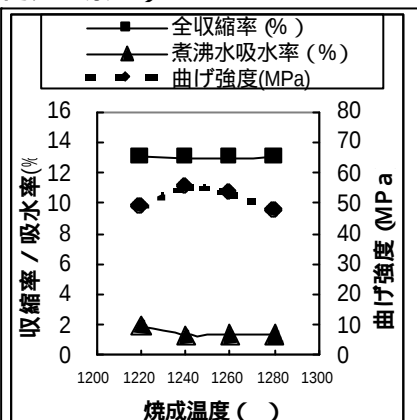


図8 開発B素地の性能評価結果
粉碎時間: 3hr
北茨城蛙目粘土30%同時粉碎

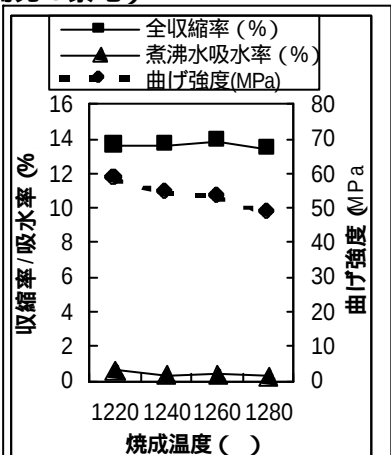


図9 開発C素地の性能評価結果
粉碎時間: 3hr
北茨城蛙目粘土15%同時粉碎
蛙目粘土15%後混合

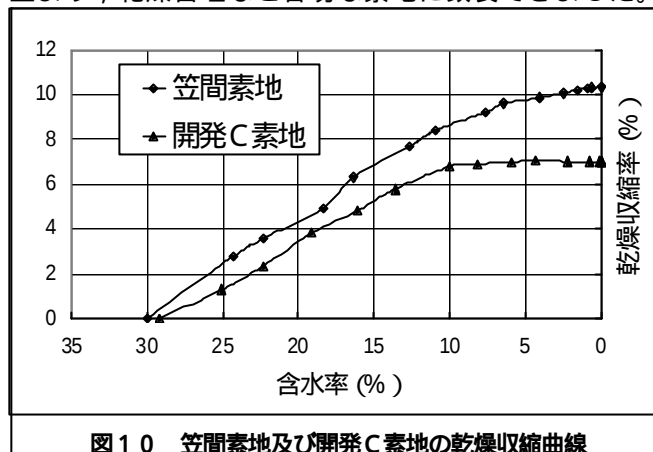


図10 笠間素地及び開発C素地の乾燥収縮曲線

7. 結言

曲げ強度や乾燥収縮率が大きく、扱いが難しい笠間素地の改良方法の研究を行い以下の知見を得ました。

- 1) 粗い粒子を多く含有する素地をミル等で粉碎し粒度分布を小粒径側に調整することにより、曲げ強度が向上するものの耐火度が低下し、また乾燥収縮率が大きくなることわかりました。
- 2) 笠間素地の様に長石分が多い素地はカオリン-珪石系の副原料を配合することにより、曲げ強度と収縮率が改善し耐火度を大きくする事ができることわかりました。
- 3) カオリン-珪石系原料の一つとして北茨城蛙目粘土を30%配合した素地は可塑性に難があるものの、曲げ強度及び乾燥収縮率は目標値を満足しました。
- 4) 笠間素地-北茨城蛙目系の可塑性を向上する手法として、笠間素地-北茨城蛙目の3hr湿式粉碎処理に加え市販蛙目粘土の配合により、可塑性を向上させることができる。

以上の知見から笠間素地70%に北茨城蛙目15%を配合し3hr湿式粉碎処理を行ったものに蛙目粘土15%を配合し、乾燥収縮率7%、SK7-8焼成で曲げ強度50MPa台、全収縮率13%後半、煮沸吸水率1%未満の開発C素地目標を満足する「開発C素地」を得ました。また、笠間素地の欠点の一つであった難しい乾燥管理や化粧掛け時ののはがれ等に対する改善効果も得ることができ、実用に供することができる素地が開発できました。

参考文献

- 1) 茨城県工業技術センター研究報告第29号 P64~(2001)
- 2) (社)日本セラミックス協会編、セラミックス工学ハンドブック、1413、(1993)