

陶磁器坯土の品質安定化に関する研究

窯業室 与座 範弘・赤嶺 欣也・宜野座 俊夫

1 はじめに

陶磁器の素地となる坯土は、陶磁器に適した粘土を複数配合し、製土して得られるのが一般的である。しかし、良質な粘土は賦存量が少ないうえ、使用量の増加による涸渇化や賦存地の農地化あるいは宅地化による採掘難など、年々、安定供給が難しくなる傾向にある。そのため、業界では質・量とも不安定な粘土の使用を余儀なくされている。また、こうした粘土や素地の基礎性状が把握されていない状況もあり、陶磁器坯土の品質が安定しない原因となっている。

そこで、本研究では製土工場で使用されている粘土について基礎性状を明らかにするとともに、配合素地の可塑性、焼成性状について試験したので報告する。

2 実験

2. 1 試料及び素地の調製方法

製土工場で使用されている粘土は、為又（ピーマタ）粘土、喜瀬武原粘土、金武粘土、掘出土、宜野座粘土及び市販の木節粘土などであり、おおむね次のような配合割合で白土素地及び赤土素地を製造している。

白土素地	為又粘土	47%	赤土素地	金武粘土	19%
	喜瀬武原粘土	47%		為又粘土	25%
	木節粘土	6%		掘出土	31%
				宜野座粘土	6%
				前兼久粘土	19%

そこで、試験では表1に示す配合表に基づいて各試料を配合し、図1のように調製して試験に供した。

表1 配合表

		配合番号 (%)							
		W-1	W-2	W-3	W-4	W-5	W-6	W-7	W-8
白土配合系	試料名								
	為又粘土	70	60	50	40	70	60	50	40
	喜瀬武原粘土	20	30	40	50	10	20	30	40
	木節粘土	10	10	10	10	20	20	20	20
赤土配合系	配合番号	R-1	R-2	R-3	R-4	R-5	R-6	R-7	
	試料名								
	金武粘土	50	40	30	20	40	30	20	
	為又粘土	10	20	30	40	10	20	30	
	掘出土	10	10	10	10	20	20	20	
	前兼久粘土	20	20	20	20	20	20	20	
	宜野座粘土	10	10	10	10	10	10		

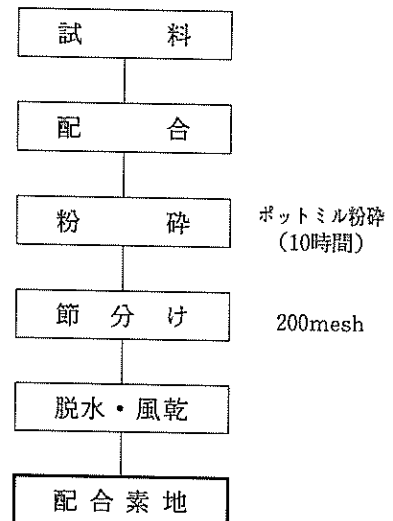


図1 素地の調製法

2. 2 素地の焼成方法

素地の焼成には電気炉 (TSY-18) を用い、1,200°C及び1,230°Cの各温度 (保持時間:30分) で酸化焼成した。

2. 3 測定方法

- (1) 化学組成 … 高周波プラズマ発光分析装置 (ICPS-1000Ⅲ) を用いて検量線法により測定した。
- (2) 鉱物組成 … X線回折装置 (XD-D1) を用いてCu管球20mA-30kvの条件で測定した。
- (3) 篩分析 … 試料100gを水500mlに分散させた後、目開きが1000 μ m、125 μ m、63 μ m及び45 μ mの篩で分級し、それぞれの重量を求めた。
- (4) 粒度分布 … 粒度分布測定装置 (SA-CP3L) で光透過法により測定した。
- (5) 可塑性値 … 円柱状の練土試料 (径:33mm ϕ 、高さ:40mm) に186mmの高さから重さ1192gの円盤を落下させ、変形後の試料の高さ (H) を求め、変形比 (40/H) が3.3の時の含水率を可塑性値とした。
- (6) 収縮率 … テストピースの乾燥後及び焼成後の長さの変化を測定して収縮率とした。
- (7) 吸水率 … 焼成後のテストピースを3時間以上煮沸し、JIS R 2205に準じて測定した。
- (8) 曲げ強度 … 収縮率測定用のテストピースについてオートグラフ (DSS-2000) を用いてスパン60mm、3点曲げ法により測定した。

3 結果及び考察

3. 1 試料の基礎性状

試料の化学組成を表2、X線回折による鉱物組成を表3にそれぞれ示す。

為又粘土の外観は白色であるが、白土素地の原料としては鉄分が2.74%と多い。赤土素地に用いられる粘土は5.10%~7.71%の鉄分を含み、各試料とも鉱物組成においてゲータイト ($\text{Fe}_2\text{O}_3 \cdot \text{H}_2\text{O} - \alpha$) の存在が認められるほか、掘出土では緑泥石が認められる。また、掘出土は鉱物組成においてカルサイト (CaCO_3) の存在が認められるが、これは試験結果から本部石灰岩や琉球石灰岩の混入によるものであることが確認されている。

表2 試料の化学組成

No	試料名	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	TiO_2	CaO	MgO	K_2O	Na_2O	Ig.Loss
1	為又粘土	69.7	17.1	2.74	0.76	0.03	0.59	2.19	0.49	5.40
2	喜瀬武原粘土	73.7	16.7	1.30	0.23	---	0.56	3.13	0.51	3.80
3	金武粘土	56.8	22.9	7.71	0.44	0.01	0.83	3.33	0.35	6.81
4	掘出土	63.5	14.6	5.92	0.35	4.06	0.75	1.50	0.30	7.88
5	前兼久粘土	60.4	22.8	5.10	0.78	0.04	0.67	0.72	0.30	8.05
6	宜野座粘土	66.9	16.5	5.51	0.76	0.03	0.58	2.26	0.49	6.47
7	木節粘土	48.1	33.0	1.45	1.03	0.16	0.08	0.63	0.95	15.5

表3 試料の鉱物組成

No.	試料名	鉱物組成
1	為又粘土	カオリン鉱物、雲母粘土鉱物、石英
2	喜瀬武原粘土	カオリン鉱物、雲母粘土鉱物、石英
3	金武粘土	雲母粘土鉱物、カオリン鉱物、石英、ゲータイト
4	掘出土	緑泥石、雲母粘土鉱物、カオリン鉱物、石英、ゲータイト、カルサイト
5	前兼久粘土	カオリン鉱物、石英、ゲータイト
6	宜野座粘土	雲母粘土鉱物、カオリン鉱物、石英、ゲータイト
7	木節粘土	カオリン鉱物、石英

また、表4に篩分析による原土の粒度分布、表5に原土のポットミル粉碎物（10時間）及び木節粘土の粒度分布を示す。

為又粘土及び金武粘土は、63 μ m以下のシルト分・粘土分が90%近い値を示し、比較的細かい粘土である。それに対し、喜瀬武原粘土では63 μ m以上の礫分や砂分が50%以上を占め、比較的粗な粘土である。そのほか、掘出土、前兼久粘土及び宜野座粘土は中間程度の粒度を示している。

粉碎物の粒度分布では、金武粘土が2 μ m以下の粒子を37.8%含んでおり、以下、掘出土が20.3%、為又粘土、喜瀬武原粘土、前兼久粘土及び宜野座粘土は10.0%~13.9%の範囲の値を示している。白土配合系と赤土配合系を比較すると、配合割合や粉碎物の粒度分布の結果から赤土配合系の方が2 μ m以下の粒子分を多く含み、細かい素地であることが言える。

表4 原土の粒度分布

No.	試料名	篩の目開き (μ m)				
		45 <	45~63	63~125	125~1000	1000 <
1	為又粘土	83.1	4.1	5.4	6.0	1.4
2	喜瀬武原粘土	43.5	3.4	7.8	15.3	30.0
3	金武粘土	85.5	3.0	6.1	3.4	2.0
4	掘出土	65.1	2.5	5.3	13.8	13.3
5	前兼久粘土	65.5	10.5	9.9	10.3	3.8
6	宜野座粘土	64.3	2.8	4.1	15.4	13.4

表5 粉碎物の粒度分布

No.	試料名	粒 径 (μm)					
		< 2	2~5	5~10	10~20	20~30	30<
1	為又粘土	12.8	26.5	28.4	21.3	8.6	4.4
2	喜瀬武原粘土	10.0	19.6	26.3	27.8	10.9	5.4
3	金武粘土	37.8	23.7	19.2	12.4	4.4	2.2
4	掘出土	20.3	20.0	19.7	26.1	9.4	4.5
5	前兼久粘土	11.8	18.1	22.2	30.4	11.6	5.9
6	宜野座粘土	13.9	18.7	22.3	28.4	11.6	5.1
7	木節粘土	44.6	22.3	19.1	8.4	3.8	1.8

3. 2 素地の可塑性

練土の可塑性は含水量、構成粒子の粒径、吸着イオン種、その他に影響される。ペッファーコーン法は、試験体の変形率(40/H)が3.3の時の含水率を以て可塑性指数とする方法であるが、具体的な例として蛙目粘土-長石系の素地において、長石の配合割合が増えると可塑性値も順次減少していくことが知られている¹⁾。

そこで、白土配合系及び赤土配合系の配合割合の違いによる可塑性値の変化について試験を行った。その結果を図2及び図3に示す。

白土配合系の可塑性値は23.9%~25.0%の範囲にあり、配合比の違いによる可塑性値の変化は小さい。赤土配合系では可塑性値は26.6%~30.0%の範囲の値を示し、為又粘土の配合割合が減り、粒度が比較的細かい金武粘土の配合割合が増えると可塑性値が増加する傾向がある。また、配合系の違いを比較すると赤土配合系の方が白土配合系よりも可塑性値が大きく、素地の粒度分布が影響しているものと考えられる。

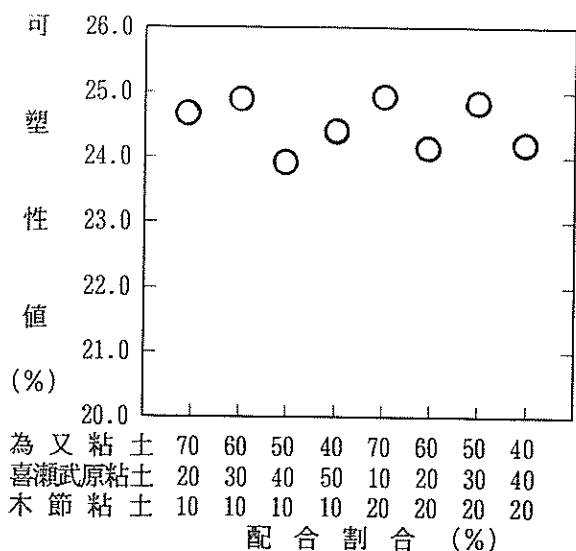


図2 白土配合系の可塑性値の変化

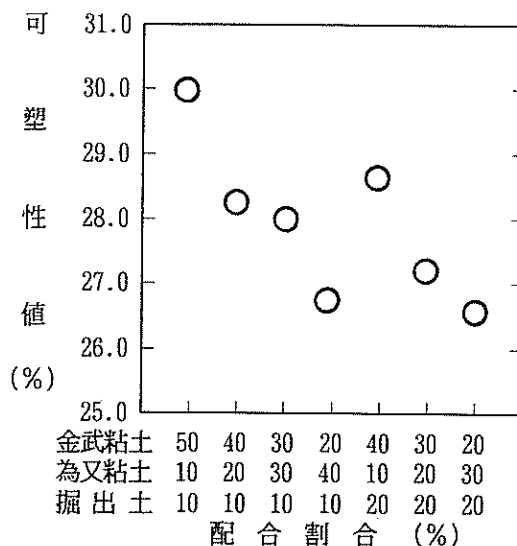


図3 赤土配合系の可塑性値の変化

3. 3 素地の乾燥性状

図4及び図5に白土配合系及び赤土配合系の乾燥収縮率と乾燥強度の変化を示す。

白土配合系では、各素地とも乾燥収縮率は5.79%~7.98%、乾燥強度は1.3MPa~2.2MPaの範囲の値を示し、配合比の違いによる特徴的な変化は認められない。赤土配合系では各素地とも乾燥収縮率が7.54%~9.07%、乾燥強度が1.3MPa~1.8MPaの範囲の値を示し、白土配合系と同様に配合比の違いによる変化が認められない。両配合系を比較すると、赤土配合系の方が白土配合系よりも乾燥収縮率がやや大きい。

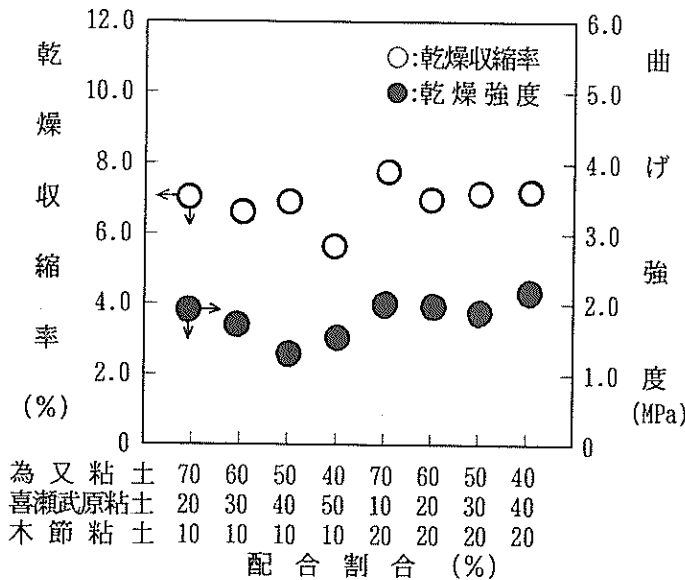


図4 白土配合系の乾燥収縮率及び乾燥強度の変化

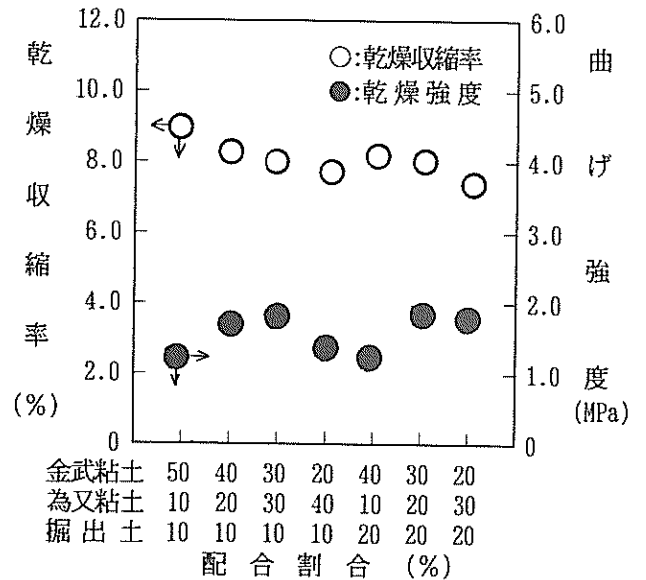


図5 赤土配合系の乾燥収縮率変化及び乾燥強度の変化

3. 4 素地の焼成性状

図6、図7及び図8に白土配合系の1,200℃及び1,230℃における焼成収縮率、吸水率、曲げ強度の変化を示す。

各素地の焼成収縮率は、1,200℃において6.24%~7.87%、1,230℃において7.22%~9.51%の範囲にあり、いずれの焼成温度でも配合割合の違いによる大きな変化は認められない。

吸水率は1,200℃において2.31%~4.06%、1,230℃において0.25%~1.28%の範囲の値を示し、為又粘土の配合が増え、喜瀬武原粘土の配合が減ると吸水率がやや高くなる傾向がある。

曲げ強度は1,200℃において41MPa~49MPa、1,230℃において48MPa~65MPaの範囲の値を示し、配合比の違いによる特徴的な変化は見られない。焼成温度の違いを比較すると、1,230℃

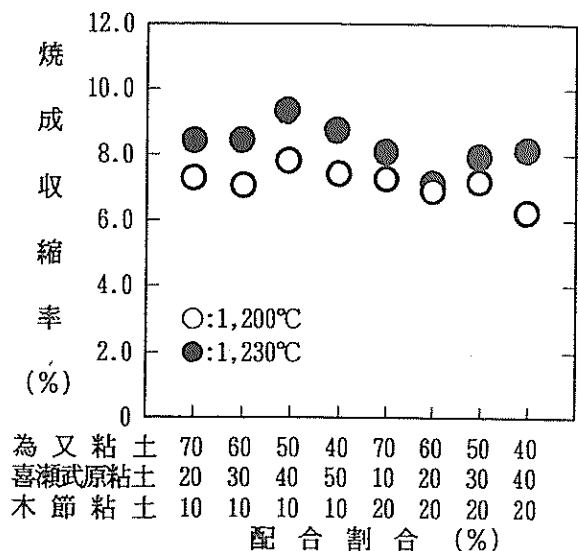


図6 白土配合系の配合比及び焼成温度の違いによる焼成収縮率の変化

では各素地とも1,200℃よりも焼成収縮率や曲げ強度が大きくなり、ほとんどの素地が0%に近い吸水率を示しており、焼結が進んでいることを示唆している。

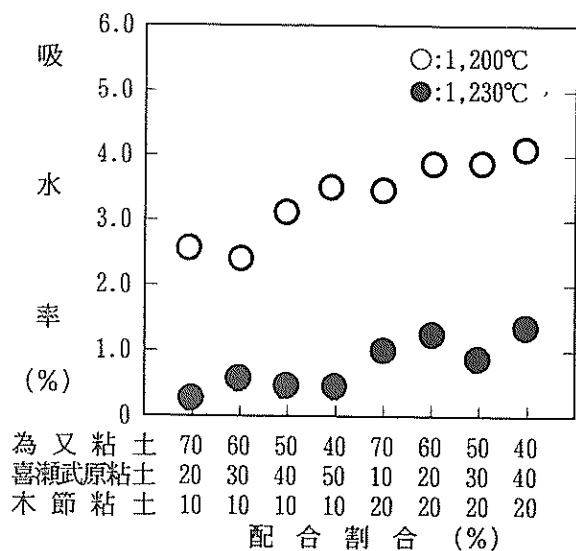


図7 白土配合系の配合比及び焼成温度の違いによる吸水率の変化

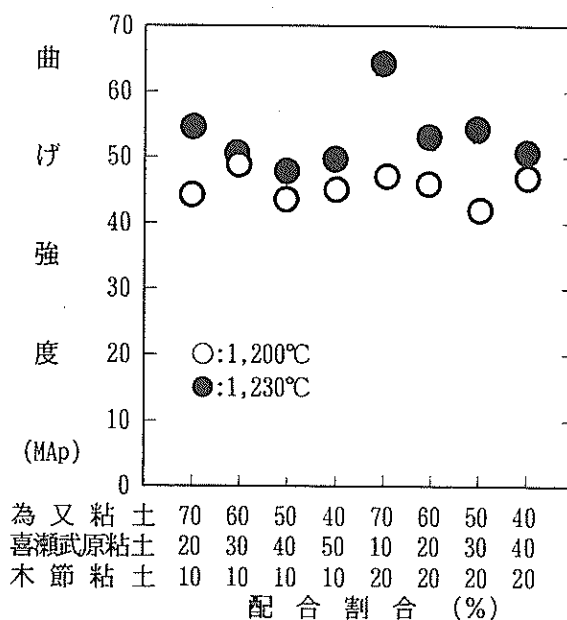


図8 白土配合系の配合比及び焼成温度の違いによる曲げ強度の変化

図9、図10及び図11に赤土配合系の1,200℃及び1,230℃における焼成収縮率、吸水率、曲げ強度の変化を示す。

各素地の焼成収縮率は、1,200℃において8.79%~11.0%、1,230℃において9.73%~11.9%の範囲にあり、いずれの焼成温度でも配合割合の違いによる大きな変化は見られない。

吸水率は1,200℃において1.13%~2.90%、1,230℃において0.12%~1.34%の範囲の値を示し、金武粘土の配合割合が減り、為又粘土や掘出土の配合割合が増えると吸水率がやや高くなる傾向がある。

曲げ強度は1,200℃において36MPa~48MPa、1,230℃において49MPa~63MPaの範囲の値を示し、配合比の違いによる特徴的な変化は見られない。また、焼成温度の違いを比較すると、1,230℃では各素地とも1,200℃よりも焼成収縮率や曲げ強度の値が大きくなり、ほとんどの素地が0%に近い吸水率を示しており、焼結が進んでいることを示している。

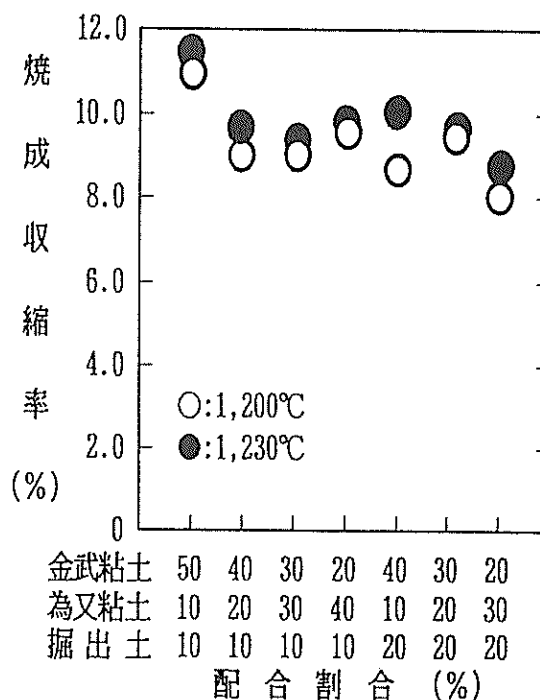


図9 赤土配合系の配合比及び焼成温度の違いによる焼成収縮率の変化

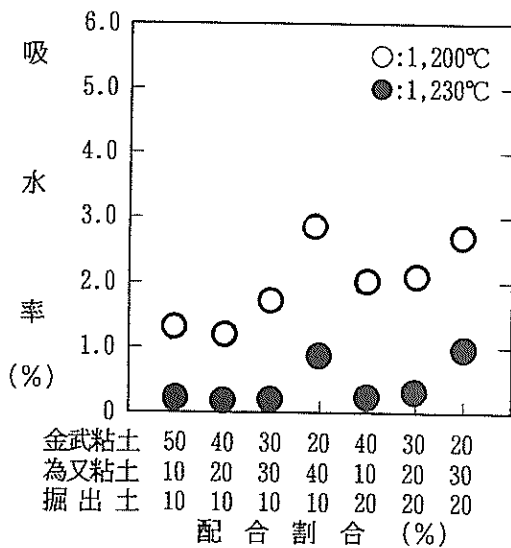


図10 赤土配合系の配合比及び焼成温度の違いによる吸水率の変化

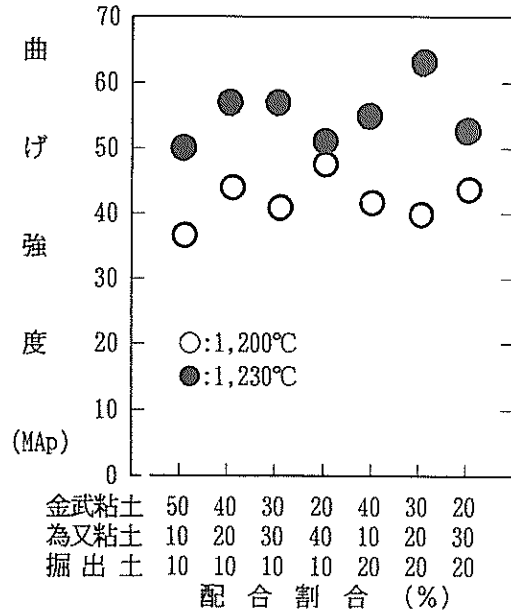


図11 赤土配合系の配合比及び焼成温度の違いによる曲げ強度の変化

4 まとめ

- (1) 掘出土は、石灰石の混入が認められる。石灰石は加熱していくと生石灰ができ、これが大気中の水分や炭酸ガスと反応して水酸化カルシウムあるいは炭酸カルシウムに変化する時に膨張する。そのため石灰石が微粉碎されずに残っていると、これが素地の表面近くにあれば表面層をはがしてしまい²⁾、焼成後に欠陥を生じさせることになる。したがって、原土の採掘及び運搬にあたっては石灰石の混入を防ぐよう留意する必要がある。
- (2) 粉碎物の粒度組成では2 μm以下の粒子の含有量は、金武粘土が37.8%と比較的多く、その他の粘土は10%~20%の範囲の値を示した。
- (3) 可塑性値は白土配合系より赤土配合系の方が高い値を示し、赤土配合系では金武粘土の配合割合が多い素地ほど高い値を示した。可塑性値が素地の粒度分布の影響を受けることから、可塑性値を高めるには粘土中の砂分・礫分の除去や粉碎、分級など、素地の粒度調整方法を検討する必要がある。
- (4) 乾燥収縮率及び乾燥強度は、両配合系とも配合比の違いによる特徴的な変化は認められず、配合系全体を比較すると白土配合系よりも赤土配合系の方が乾燥収縮率大きい。
- (5) 焼成性状では1,200°C、1,230°Cにおいて、いずれの配合系とも吸水率は5%以下、曲げ強度は36MPa~65MPaの範囲にあり、一般的な陶器がもつ特性値³⁾を示した。

参考文献

- 1) 金岡繁人、芝崎靖雄、前田武久、渡村信治、照屋善義、神野好孝、陶器素地のPfefferkorn法およびAttberg法による可塑性の評価、粘土科学、Vol.21、No2、1981
- 2) 素木洋一、建築用セラミック材料、技報堂、1973
- 3) 日本セラミックス協会編、セラミック工学ハンドブック、技報堂、1989

編 集 沖縄県工業技術センター

発 行 沖縄県工業技術センター

〒904-2234 沖縄県うるま市字州崎 12 番 2

T E L (098)929-0111

F A X (098)929-0115

U R L <https://www.pref.okinawa.lg.jp/site/shoko/kogyo/>

著作物の一部および全部を転載・翻訳される場合は、当センターにご連絡ください。