

磁器素地の微粉碎化による機械的強度の向上

久野 徹 安井克幸 服部金司*

Improvement of Mechanical Strength of Porcelain Bodies
by Fine Grinding of Raw Materials

By

Toru KUNO, Katsuyuki YASUI and Kinji HATTORI*

磁器素地の強度向上については、配合する石英の粒度を制御することにより高強度化を図るなど、これまで多くの研究が行なわれている。本研究では瀬戸地区で使用されている珪石-長石-粘土系磁器素地及び愛知県藤岡産砂婆（花崗岩の風化物）-粘土系磁器素地について珪石、長石及び砂婆の粒度が磁器素地の機械的強度に及ぼす影響を曲げ強さを測定することにより検討した。その結果、珪石-長石-粘土系磁器素地においては長石の粒度を現在、企業で使用されている粒度である最大粒径 $50\mu\text{m}$ とジェット粉碎して最大粒径 $12\mu\text{m}$ 以下の2水準で検討した。その結果、長石の最大粒径 $50\mu\text{m}$ では珪石の粒度を細かくしても焼成素地の曲げ強さの増加は認められなかった。そのために長石の最大粒径を $12\mu\text{m}$ にして珪石の粒度について、最大粒径 $40\mu\text{m}$ 、 $20\mu\text{m}$ 、 $12\mu\text{m}$ の3水準とし、 1200°C 焼成における曲げ強さを測定した結果、各々 120MPa 、 141MPa 、 144MPa となった。このことから珪石を最大粒径 $20\mu\text{m}$ 以下にすれば磁器素地の高強度化に効果のあることが明らかとなった。また焼成温度については長石の最大粒径 $50\mu\text{m}$ の時は、 1250°C で最大曲げ強さを示し、最大粒径 $12\mu\text{m}$ では 1200°C で最大曲げ強さを示すことが明らかとなった。従って焼成温度を 50°C 程度下げられることが分かった。

砂婆-粘土系についても砂婆の粒度が磁器素地の焼成曲げ強さに及ぼす影響について砂婆の最大粒径 $40\mu\text{m}$ と $7\mu\text{m}$ の2水準について検討した。なお、砂婆-粘土の配合割合は7-3、6-4、5-5とした。その結果、砂婆の粒度が細くなることにより砂婆-粘土の配合割合が7-3では焼成温度 1200°C では約11%の曲げ強さの増加が認められた。焼成温度については、砂婆の粒度が細くなると低くなり、砂婆の最大粒径 $40\mu\text{m}$ では 1250°C で曲げ強さは最大になったが、最大粒径 $7\mu\text{m}$ では 1200°C になった。ただし、砂婆-粘土の配合割合が7-3の時は最大粒径 $40\mu\text{m}$ 及び $7\mu\text{m}$ でも 1200°C で最大曲げ強さを示した。

また、砂婆-粘土の配合割合により、焼成体の曲げ強さは異なり、砂婆の最大粒径 $7\mu\text{m}$ では今回試験した配合割合では砂婆の配合割合が多いほど曲げ強さは大きくなった。

1. 緒 言

磁器素地の機械的強度に関しては最近、浜野らにより石英の粒度が磁器素地の機械的強度に及ぼす影響を詳細に検討した報告が発表されている。¹⁾またその応用例として浜野らにより天草陶石を微粉碎して高強度の磁器素地の得られることが報告されている。²⁾

瀬戸地区では現在、強化磁器素地として磁器素地にアルミナを20~30%添加する方法が採用されているが、アルミナの比重が3.9と大きいために食器等に利用すると重くなったり、アルミナの熱伝導率が磁器素地の10倍近くあるために、断熱性の低下により熱い食べ物を入れた場合に手で触れられない等の問題も生じている。磁器素地の強度に関

して、従来は自動食器洗い機が普及しなかったために強度の向上についての研究も十分行われていなかった。

本研究では磁器素地の高強度化をアルミナ等の添加物を入れずに、珪石、長石等の原料を微粉碎することによりどこまで強度が向上するかを明らかにするために行った。原料の微粉碎は通常はボールミル粉碎で長時間粉碎する方法が一般的であるが、この方法では効率的な粉碎ができないので、ジェット粉碎方式を採った。この粉碎方式により珪石を $20\mu\text{m}$ 以下、長石の粒度を $12\mu\text{m}$ 以下にすることにより磁器素地の焼成曲げ強さを焼成温度 1200°C で 140MPa の強度までにすることが可能になったので報告する。

2. 実験方法

本研究では磁器素地として珪石-長石-粘土系と砂婆(花崗岩の風化物)-粘土系について検討した。使用した原料は福島長石、瀬戸産の珪砂、窯神木節粘土、藤岡産の砂婆である。これらは粘土を除いて瀬戸地区の工場で使用されている程度にボールミル粉砕したものである。これらの原料の粒度を更に細かくするためにジェット粉砕機により粉砕した。高強度の磁器素地にするためには長石の微粉砕効果が大きいのか、珪石の微粉砕効果が大きいのかを確認するために最初は長石はミル粉砕の粗粒により調合試験をした。なお、珪石-長石-粘土系の配合割合は3-4-3とした。また配合割合により強度がどのように変化するかを調べるために、ジェット粉砕機により粉砕した珪石、長石を使用して珪石-長石-粘土系の配合割合を4-3-3、5-2-3、4-2-4の調合についても調べた。

試験体の成形は石膏型に鑄込み成形する方法で試験体の大きさは10mmφ×60mmの棒状試験体とし、焼成温度は1180℃~1300℃とした。焼成後の試験体は収縮率、曲げ強さ、吸水率、かさ比重、見かけ比重、見かけ気孔率を測定した。試験体の焼成は昇温速度3℃/minで所定温度にて1時間保持した。また曲げ試験は3点曲げにより、支点間距離40mm、クロスヘッド速度0.5mm/minで行い、5本の平均値を求めた。

砂婆-粘土系の配合割合については7-3、6-4、5-5として、試験方法は珪石-長石-粘土系と同様の方法で実施した。

3. 実験結果と考察

3.1 使用原料のジェット粉砕機による微粉砕

使用原料の粒度分析の結果は図1のとおりである。珪石のミル粉砕したものはメジアン径が12μm、最大粒径40μm、2μm以下が14wt%、2~20μmが61wt%、20~40μmが25wt%であった。この珪石をジェット粉砕することにより、メジアン径は6μmになり、2μm以下が22wt%で20~22μmが1wt%となり、20μm以上の粒子はほとんどなくなった。更にもう一度ジェット粉砕するとメジアン径は4μmになり、最大粒径は12μmと更に微粉砕

化された。長石のミル粉砕物はメジアン径は10μm、最大粒径50μm、2μm以下が22wt%、2~20μmが52wt%、20~50μmが26wt%あった。このものをジェット粉砕することによりメジアン径は4μmになり、最大粒径は12μmとなった。長石は珪石に比べて粉砕効率が良好で、珪石を2回ジェット粉砕したものの粒度と長石を1回ジェット粉砕したものの粒度がほぼ同じ粒度分布を示した。

砂婆のミル粉砕したものの粒度はメジアン径は5.4μm、最大粒径は40μm、2μm以下が18wt%、2~20μmが76wt%、20~40μmが6wt%あった。珪石、長石のミル粉砕物に比べて砂婆のミル粉砕物の粒度は細かい。この理由は砂婆は珪石、長石に比べて風化が進行して粉砕が容易でミル粉砕でも微粉砕が容易なためである。この砂婆をジェット粉砕することによりメジアン径は3.1μmで、最大粒径は7μmとなり微粉砕化された。

3.2 珪石-長石-粘土系素地の焼成曲げ強さ

最初に長石をミル粉砕した粗粒の時の珪石の粒度が曲げ強さに及ぼす影響は図2のとおりである。長石、珪石がともにミル粉砕の時の焼成曲げ強さは焼成温度1250℃で最大値になり104MPaとなった。珪石を1回ジェット粉砕した時は焼成温度と曲げ強さとの関係は珪石をミル粉砕した時と同様の傾向を示し、1250℃で曲げ強さは最大で、107MPaとやや大きくなった。珪石を2回ジェット粉砕した時の焼成温度と曲げ強さとの関係は前述の結果と異なり、1200℃で曲げ強さは最大値の99MPaを示した。この結果から長石の粒度が粗粒では珪石を微粉砕しても磁器素地の強度向上には寄与しないことが分かったので、長石はジェット粉砕したものを使用して再度調合試験を行なった。その結果は図3のとおりである。1200℃で曲げ強さは最大になり、珪石をミル粉砕した時の曲げ強さは120MPaであったものが、珪石を1回ジェット粉砕することにより曲げ強さは141MPaと、17.5%の増加となった。珪石を2回ジェット粉砕した時の曲げ強さは144MPaとなり、ほとんど曲げ強さの増加は認められなかった。このことから珪石の粒度は最大粒径20μm程度にすれば磁器素地の強度向上に効果があり、さらに微粉砕しても曲げ強さの増加は期待できないことが分かった。また珪石を微粉砕することにより曲

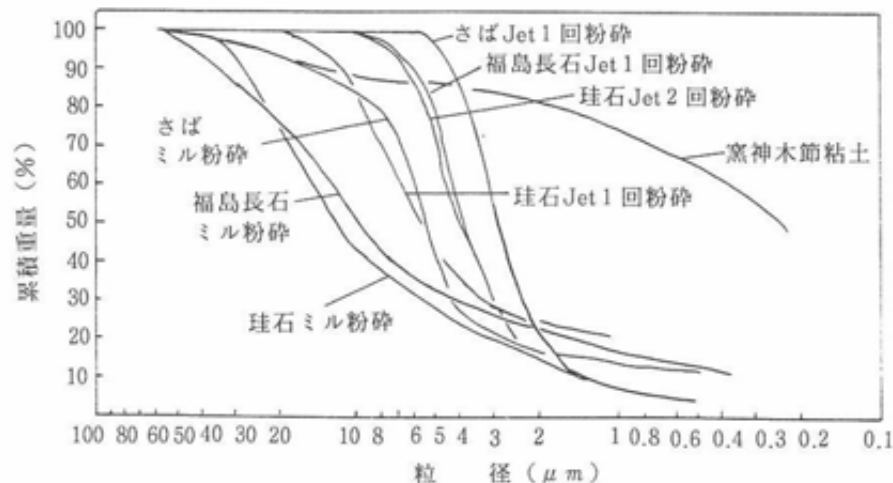


図1 使用原料の粒度分布

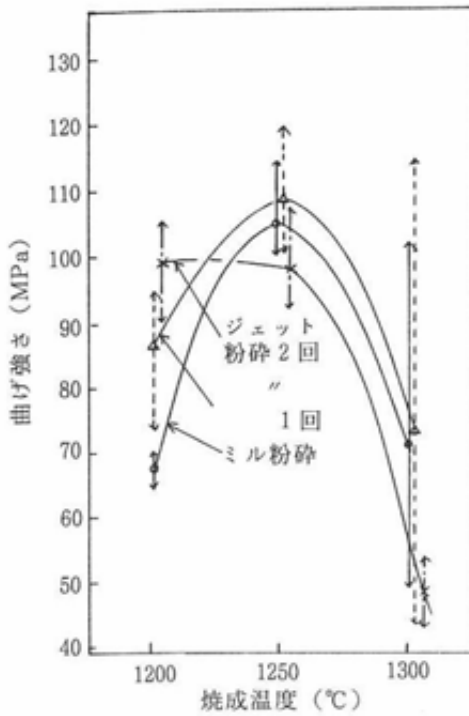


図2 珪石の粒度の曲げ強さに及ぼす影響 (長石:ミル粉砕)

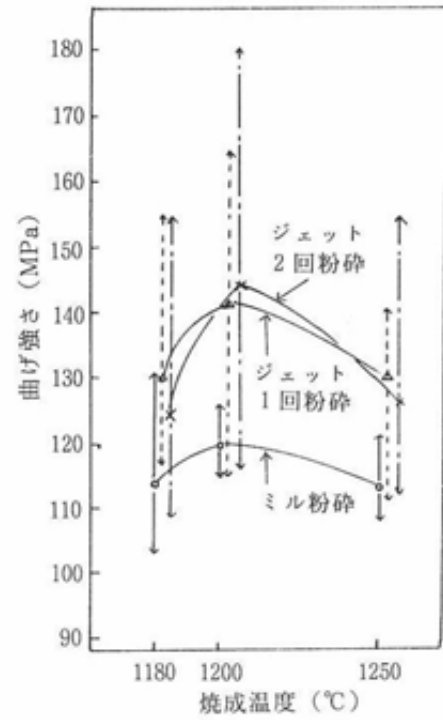


図3 珪石の粒度の曲げ強さに及ぼす影響 (長石:ジェット粉砕)

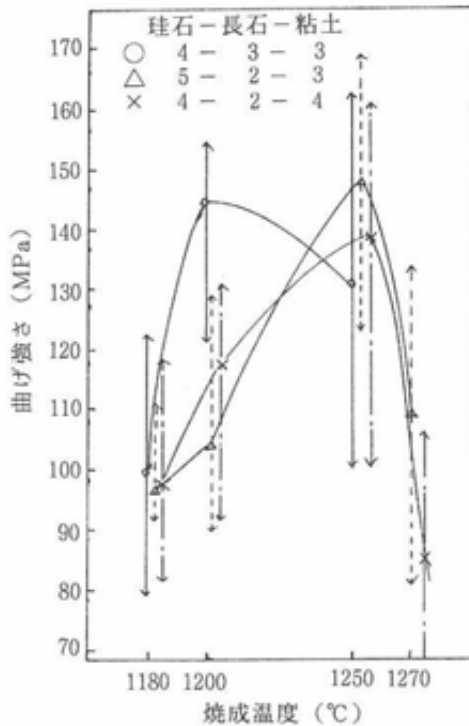


図4 磁器素地組成と曲げ強さとの関係

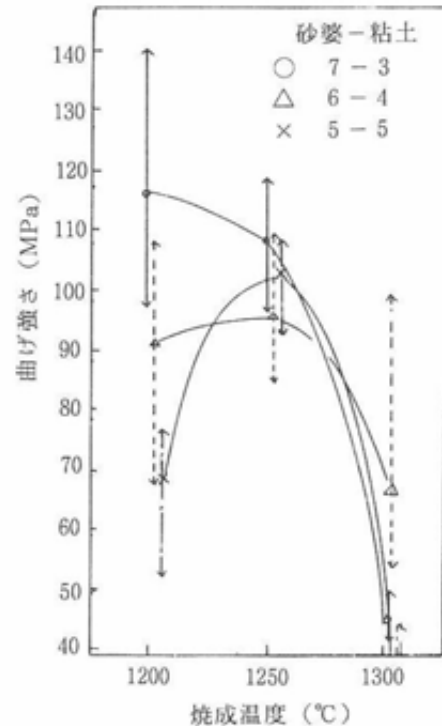


図5 砂婆の配合割合と曲げ強さとの関係 (砂婆:ミル粉砕)

げ強さのばらつきも大きくなるのが分かった。この原因については微粉砕原料中への粗粒子の混入によるものか、成形時における欠陥によるものかについては今後の課題としたい。長石、珪石の微粉砕により、曲げ強さのばらつきは大きくなったが、図3に示すように曲げ強さの最低値はすべて100MPa以上になっているので、図2に示す曲げ強さに比べて、明らかに大きくなっているものと判断される。

長石、珪石をともにジェット粉砕したものを使用して珪石-長石-粘土系の配合割合を4-3-3、5-2-3、

4-2-4と変化させた時の曲げ強さと焼成温度との関係の結果は図4のとおりである。なお珪石はジェット粉砕を2回行ったもので長石はジェット粉砕1回行った物を使用した。調合4-3-3の時は1200°Cで最大曲げ強さを示し145MPaであった。調合5-2-3の時は1250°Cで最大曲げ強さを示し148MPaであった。調合4-2-4の時は調合5-2-3と同様に1250°Cで最大曲げ強さを示し139MPaであった。以上の結果より、長石、珪石を微粉砕することにより曲げ強さの平均値137~147MPaの磁器素地

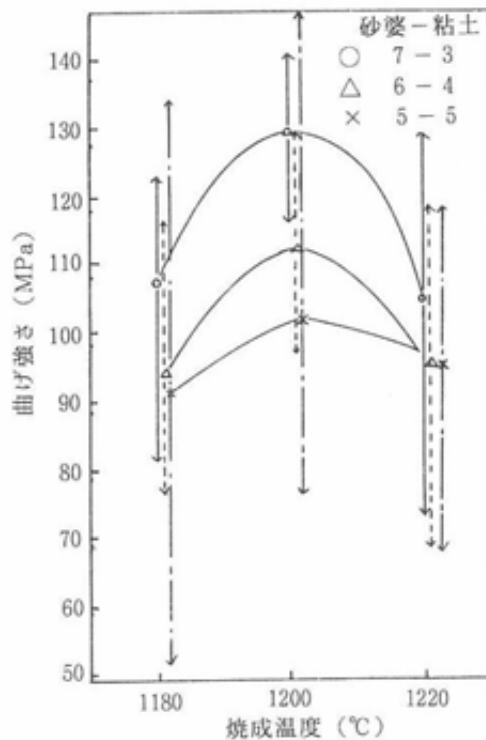


図6 砂婆の配合割合と曲げ強さとの関係 (砂婆:ジェット粉碎)

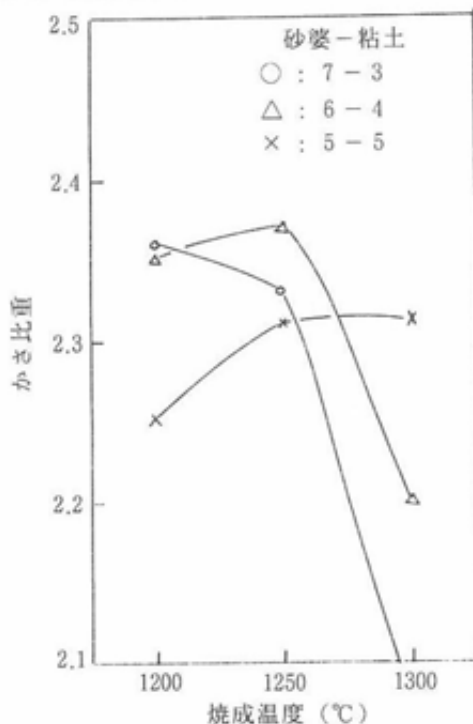


図9 砂婆の配合割合とかさ比重との関係 (砂婆:ミル粉碎)

を調製できることが明らかとなった。

3.3 砂婆-粘土系の焼成曲げ強さ

砂婆-粘土系の砂婆をミル粉碎した時の曲げ強さと焼成温度との関係の結果は図5のとおりである。砂婆をミル粉碎した時の曲げ強さは配合割合によって曲げ強さは異なり、割合7-3の時が曲げ強さは最大になり1200°Cで116MPaであった。割合6-4の時は最大曲げ強さは1250°Cと高温側に移り、最大曲げ強さは96MPaであった。割合5-5の時は最大曲げ強さは1250°Cで103MPaであった。砂婆をジェット粉碎した時の曲げ強さと焼成温度との関係の結果

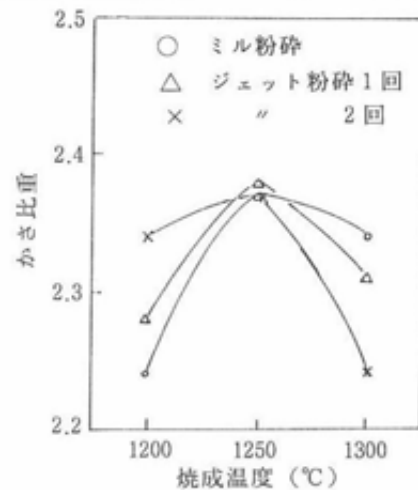


図7 珪石の粒度のかさ比重に及ぼす影響 (長石:ミル粉碎)

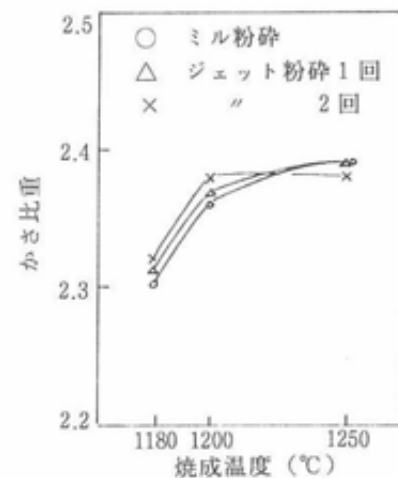


図8 珪石の粒度のかさ比重に及ぼす影響 (長石:ジェット粉碎)

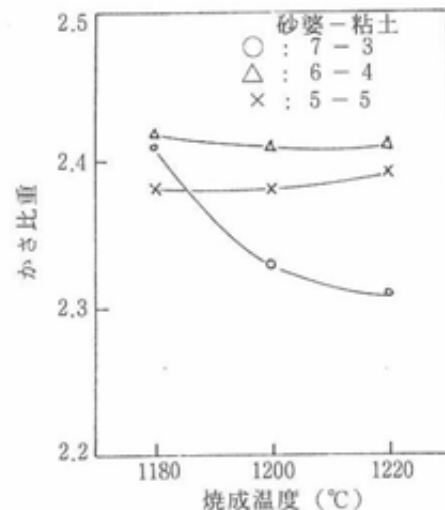


図10 砂婆の配合割合とかさ比重との関係 (砂婆:ジェット粉碎)

は図6のとおりで砂婆の粒度が細くなることにより曲げ強さは大きくなり最大曲げ強さはいずれの配合でも1200°Cで最大となった。割合7-3の時が曲げ強さは最大になり129MPaであった。砂婆の配合割合が減るにつれて曲げ強さは小さくなり、割合5-5の時で102MPaであった。以上のことから砂婆についてはミル粉碎物とジェット粉碎物との粒度分布の大きな差異がないために曲げ強さについても珪石-長石-粘土系で認められたほどの顕著な曲げ強さ

の向上は認められなかった。砂婆-粘土系の磁器素地の強度のばらつきは砂婆のミル粉碎したものを使用してもジェット粉碎したものを使用しても大きく、強度のばらつきを小さくすることが可能かどうかを検討することが今後の課題と考えられる。

3. 4 焼成体のかさ比重

かさ比重と焼成温度との関係は長石をミル粉碎した粗粒の時は図7に示すように1250℃で最大になり、珪石をミル粉碎した時とジェット粉碎を1回した時のかさ比重と焼成温度の関係は同様の傾向を示し、焼成温度の変化によるかさ比重の変化は大きかった。ジェット粉碎を2回した時は焼成温度の変化によるかさ比重の変化は小さくなった。この理由は微粒の珪石が粗粒の長石の間隙を埋めて磁器素地組織の気孔の量を減少させ、より低温で焼結したためと考えられる。長石をジェット粉碎した微粒の時は図8に示すように長石の微粉碎による焼結効果が大きくなり、珪石をさらに微粉碎した時の焼成温度の変化によるかさ比重の変化は小さくなった。このことから長石の粒度が粗粒の時は焼成温度の変化によりかさ比重の変化が大きく、長石を微粉碎することにより、焼成温度の変化によるかさ比重の変化が小さくなることが明らかとなった。

砂婆-粘土系については砂婆をミル粉碎したものを使用した砂婆-粘土の配合割合が7-3、6-4については図9に示すように焼成温度が1250℃を越えるとかさ比重は急激に小さくなり過焼状態となった。

砂婆をジェット粉碎した時は図10に示すように砂婆をミル粉碎した時と異なり、焼結温度は低下し、1180℃で砂婆-粘土の配合割合が7-3、6-4は各2.41、2.42となり、焼成温度の1180℃から1220℃の範囲では最大となった。このことから砂婆-粘土系についても、砂婆を微粉碎することにより、かさ比重は大きくなり、素地が緻密になること

が明らかとなった。

焼成収縮率については長石をミル粉碎した粗粒の時は1200℃焼成の時に9.1%、1250℃焼成の時に11.1%となり、1300℃になると、過焼で膨張して収縮は小さくなった。また珪石の微粉碎効果の影響は認められなかった。長石をジェット粉碎した微粒の時は1180℃で9.8%、1200℃で10.2%、1250℃で11.1%となり、さきと同様に珪石の微粉碎効果の影響は認められなかった。

4. 結 論

磁器素地組成で珪石、長石等の原料を微粉碎することにより高強度化を検討した結果、次のことが明らかとなった。

(1) 珪石-長石-粘土系では長石を12 μ m以下、珪石を20 μ m以下に微粉碎することにより曲げ強さが140MPaの磁器素地を調製できることが明らかとなった。また最大曲げ強さの焼成温度は配合割合によって異なるが珪石-長石-粘土の配合割合が3-4-3では1200℃、5-2-3及び4-2-4では1250℃であることが分かった。

(2) 砂婆-粘土系では砂婆を最大粒径7 μ m以下に微粉碎し、配合割合を7-3とすることにより砂婆の最大粒径40 μ mに比べて約11%の曲げ強さの増加が認められた。

(3) 焼成収縮に関しては長石、珪石の微粉碎化による収縮の増大は認められず、焼成温度の影響が大きかった。長石、珪石の微粉碎化により、成形時の密充填が促進されたためと推定される。

文献

- 1) 浜野健也、呉 岳峰、中川善兵衛、長谷川美憲、セラミックス論文誌、99、153-57 (1991)
- 2) 浜野健也、中川善兵衛、長谷川美憲、セラミックス論文誌、100、1066-69 (1992)