

高品質磁器素地の開発

— 磁器素地調製プロセスの改善による高品質化 —

水野 修*¹ 荒木次夫 久野 徹*²Improvement on Mechanical Property of Porcelain Body
by Grinding and Size Classification of Porcelain Materials

Osamu MIZUNO, Tsugio ARAKI and Toru KUNO

瀬戸地区の陶磁器産業は、当地で産出される木節・蛙目粘土等の窯業原料を使って、古くから生産され発展してきた。近年、消費者ニーズの多様化、高度化により、品質面でも機械的強度や耐衝撃性の向上など、高品質な磁器製品の開発が望まれている。そのため、機械的強度・耐衝撃性の向上が期待される原料調製プロセスの改善による高品質な磁器素地の開発を目指した。

- (1) 各種市販磁器坯土をさらに粉砕することにより、曲げ強さは 90~100MPaから110~130MPaに向上した。
- (2) 微粉砕による強度特性への影響は、市販磁器素地の中でサバ立て系よりも陶石立て及び白磁素地の方が効果があった。
- (3) 長石、珪石、粘土（蛙目粘土+NZカオリン）系において3:3:4の組成調合した磁器素地の曲げ強さは、長石及び珪石分を微粉砕することにより80~90MPaから130~140MPaに向上した。
- (4) ジェットミル粉砕した長石、珪石を風力分級した結果、分級精度（ $R = D_n / D_m$ ）は分級点を10 μm とした時、2.2~3.2の値を示した。

1. 緒言

陶磁器素地の高強度化をはじめとする機械的特性の向上は、品質向上の改善技術のなかでも重要なものである。古くはAustinらによって石英粒子のアルミナ粒子への置換添加技術の開発に始まり、構成マトリックス中への各種の粉体粒子の添加による強化技術が開発されてきた。

また、構成原料の粒子を微細化し、混合方法の改善等により素地のマトリックス分の均一化を促進すれば、高強度化の可能性もあるとされている。¹⁾

当センターでは磁器素地の高強度化を図るために、添加する粉体の種類と添加量について研究を実施²⁾してきたが、本研究では、各種の市販磁器坯土をさらに粉砕し微粉化することによって素地の機械的物性の改善の可能性を検討した。また、あらかじめ微細化した磁器原料を配合した素地や長石、珪石を細粒、粗粒に分級、配合した素地の強度変化を調べ、粒径分布が磁器素地強度に及ぼす影響を検討した。

2. 実験方法

2.1 磁器素地原料の粉砕操作による調製

2.1.1 市販磁器坯土の微粉砕操作

市販坯土の微粉砕方式による強度改善法を検討するため、陶石立て（A）、サバ立て（B）、罎子用（I）、半磁器（H）、白磁（W）の磁器素地を選び、ジェットミル粉砕機（セイシン企業製、STJ-100型）で乾式粉砕（J系列）、アルミナ製ポットミルで8時間湿式粉砕（P系列）した。以上の2系列と比較のため市販磁器素地坯土そのままの状態の試料（O系列）について各種の試験に供した。図1にそのフローを示す。

2.1.2 磁器素地の微粉砕操作

使用原料の微細化及び粉砕プロセスによる強度向上効果を調べるため、図2のようにあらかじめ長石、珪石分をジェットミルで粉砕し、長石：珪石：蛙目粘土+カオリンを3:3:4組成に調製（JA）した。同様に3:3:4組成に配合したものをジェットミルで粉砕（JB）を行った。また、同一組成坯土をポットミルで8時間粉砕（PB）した。

* 1 現環境調査センター

* 2 現常滑窯業技術センター

2.1.3 長石、珪石、粘土、カオリンの分級操作

粒径分布が磁器素地強度に及ぼす影響を調べるため、長石、珪石をジェットミルで微粉碎したものを強制渦流式風力分級機（ドナセック製300型、分級能 $0.5 \sim 50 \mu\text{m}$ ）を用いて粒径 $10 \mu\text{m}$ を境に粗粒、細粒分とに分級し、図3のように長石、珪石それぞれの粗粒分、細粒分を3:3:4に配合し、長石細粒、珪石細粒（FF）、長石粗粒、珪石粗粒（CF）、長石細粒、珪石粗粒（FC）の3種類の素地を調整した。

2.2 原料および焼結体の特性性状試験

2.2.1 粒度試験

使用した磁器素地用原料および粉碎・分級をした粉体の粒度分布をX線透過式粒度分析計（島津製作所製、セディグラフ5000-01型）で測定した。

2.2.2 原料及び坯土の粉碎・分級による形状変化

粉碎・分級プロセスによる粉体粒子の形状、粒径の変化をSEM（堀場製、EMAX3A型）によって観察撮影した。撮影倍率は500～2000倍で行った。

2.2.3 磁器素地坯土の粉碎による化学組成変化

粉碎工程で原材料の化学組成の変化をチェックする必要があり、ジェットミル粉碎での未捕集分の組成による変動並びにアルミナポットミル粉碎における粉碎媒体であるアルミナ球石の摩耗混入による組成の変動を調べるため蛍光X線分析法で定量した。

2.2.4 曲げ強度試験

鋳込成形（ $\phi 10 \times 65\text{mm}$ 円柱状）の後、所定の温度で焼成し、スパン50mm、クロスヘッド速度 $0.5\text{mm}/\text{min}$ の条件で三点曲げ強さを測定した。

3. 実験結果及び考察

3.1 磁器素地原料の微細化工程

珪石粉のジェットミル粉碎とポットミル粉碎による粒度分布の推移を表1に示す。これは、オリジナル試料（#300）をジェットミル粉碎1回バスの工程とアルミナポットミル

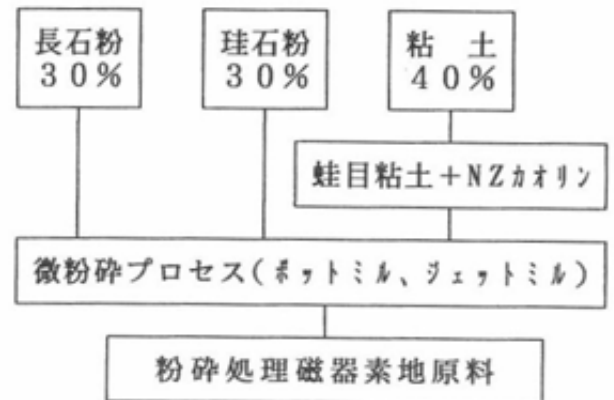


図2 長石・珪石・粘土系磁器坯土の調整フロー

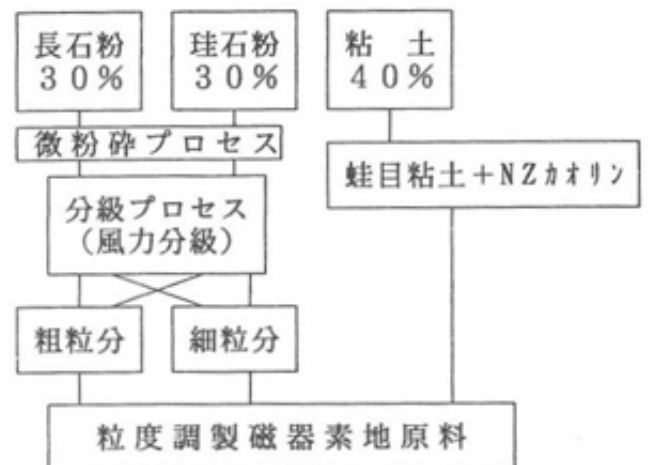


図3 分級操作を組込んだ調整フロー

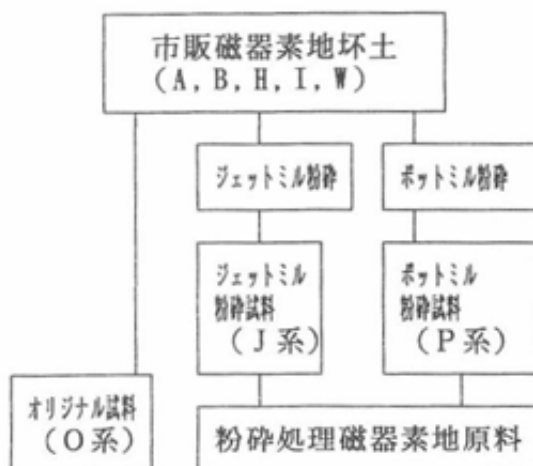


図1 市販磁器坯土の調整フロー

で12～108時間粉碎したときの粒度分布の変化を比較したものである。ジェットミルでは大きい粒径の粉体から選択的に粉碎される体積（選択）粉碎が支配的であり、一方、ポット（ボール）ミル粉碎は、すべての粉体が一様に表面から粉碎される表面粉碎が支配的であるため、ジェットミル粉碎の方が効果的である。今回の実験ではジェットミル粉碎1回バスの工程は、平均粒径ではアルミナポットミル5～10時間操作に相当すると言える。

3.2 市販磁器坯土の微細化による特性の変化について

市販の陶石立て（AO、AJ、AP）、サバ立て（BO、BJ、BP）、半磁器（HO、HJ、HP）、磚子用（IO、IJ、IP）、白磁（WO、WJ、WP）磁器素地坯土の粒度分布を表2に示す。ジェットミル粉碎（Jシリーズ）では $3 \mu\text{m}$ から $30 \mu\text{m}$ が選択的に粉碎されている。それに対しポットミル8時間粉碎（Pシリーズ）では、オ

リジナル試料(0シリーズ)の粒径分布曲線を細粒側に移動した形となり、先の珪石粉単体の粒度分布(表1参照)に近い表面粉碎の特徴を示した。また平均粒径(D50)はポットミル8時間粉碎のP系の試料の方がジェットミル1回バスの粉碎試料J系より小さな値であった。

各坯土の曲げ強度の変化は、原料の微細化にともない最大値を示す焼成温度が低温側に移行し、強度も向上した。

各磁器素地の曲げ強度は、図4、5、6、7、8に示すように陶石立ては100MPaが125MPaとなり、サバ立ては95MPaが115MPaに向上した。半磁器及び碍子用はともに90MPaが110MPaとなり、焼結温度が低温側へ移行した。また、白磁は110MPaが135MPaに増加した。これらのことから素地の種類の中ではサバ立て系よりも陶石立て及び白磁素地の方が変化が大きいことが分かった。また、粉碎方法について比較すると、白磁を除いてポットミル粉碎の方がジェットミル粉碎よりも強度は高くなった。

以上のことより、磁器素地原料を微細化することは、焼結後の磁器素地の機械的性質の改善方法のひとつとして効果があることが分かった。原料の微細化によって素地の粒度分布が均一化され、機械的強度を低める原因である粗粒の混在を抑える効果が生じたためと考えられる。

3.3 長石、珪石、粘土系坯土の微細化による特性変化

モデル坯土として、微粉碎した長石及び珪石分を用いて長石:珪石:粘土(珪目粘土+NZカオリン)を3:3:4の組成(JA)に調合したものと、あらかじめ3:3:4の組成調合した坯土をジェットミル粉碎(JB)及びポットミル粉碎(PB)したものについて比較検討した。粒度分布は表3に示すように未処理素地に比べて微細化し、強度は図9に示すように80~90MPaから125~140MPaに増加した。また、組成比40%の粘土成分(珪目粘土+NZカオリン)の量比が強度に及ぼす影響は、NZカオリン10~20%の範囲で検討した結果では、15%以上で高い強度を得た。

3.4 原料の粒径分級操作による磁器坯土の特性の変化

3.4.1 風力分級による分級精度・分級効率

ジェットミル粉碎した長石、珪石を風力分級した結果、それらの分級点を10μmとした時の粒度分布を表4に示す。分級精度を表わす方法の一つに(D₉₅/D₅)の値を用いる方法がある。それによれば長石粉は3.2を示し、珪石粉は2.2であった。目標指標が1.3~1.8とされており、分級精度の点では試料供給量の変化等種々の因子の検討の余地があった。

一方、分級収率に影響する分級効率の指針として、粗粒・細粒の粒度分布から、設定した分級点の累積%を読み取り、その比の大きさを比較することが考えられる。それによれば、長石粉は2.7(86%/31%)、珪石粉は3.3(90%/27%)であり、珪石粉の方が分級収率が良いことが分かった。

また、珪石粉の粗粒・細粒の電顕による形状撮影(写真1、2)では、細粒側は良く粒度調整されている。

3.4.2 粗粒・細粒配合による強度変化

長石:珪石:粘土を3:3:4に配合した長石、珪石について、分級操作によって得た粗粒の長石、珪石と細粒の長石、珪石を用いて、長石細粒に珪石細粒(FF)、長石粗粒に珪石粗粒(CF)、長石細粒に珪石粗粒(FC)を加えた素地の曲げ強さを測定した結果を図10に示す。

表1 珪石粉の粉碎による粒度分布(wt%)とD₅₀(μm)の推移

| 試料 | 粒径 | 40μm≥ | 30μm≥ | 20μm≥ | 10μm≥ | 5μm≥ | 1μm≥ | D ₅₀ (μm) |
|----------------|----|-------|-------|-------|-------|------|------|----------------------|
| 未粉末 | | 90 | 77 | 56 | 31 | 21 | 9 | 17 |
| ジェットミル粉碎物 | | 100 | 100 | 99 | 91 | 53 | 9 | 4.8 |
| ポットミル(12h)粉碎物 | | 100 | 100 | 100 | 87 | 57 | 18 | 4.1 |
| ポットミル(24h)粉碎物 | | 100 | 100 | 100 | 93 | 72 | 24 | 3.0 |
| ポットミル(36h)粉碎物 | | 100 | 100 | 100 | 99 | 92 | 31 | 1.8 |
| ポットミル(108h)粉碎物 | | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 58 | 0.85 |

表2 市販磁器素地の粉碎による粒度分布(wt%)とD₅₀(μm)の推移

| 試料 | 粒径 | 40μm≥ | 30μm≥ | 20μm≥ | 10μm≥ | 5μm≥ | 1μm≥ | D ₅₀ (μm) |
|-----------|----|-------|-------|-------|-------|------|------|----------------------|
| 陶石立磁器素地AO | | 100 | 98 | 91 | 70 | 58 | 35 | 2.5 |
| 陶石立磁器素地AJ | | 100 | 100 | 99 | 87 | 67 | 39 | 2.5 |
| 陶石立磁器素地AP | | 100 | 100 | 100 | 99 | 75 | 43 | 1.6 |
| サバ立磁器素地BO | | 99 | 98 | 93 | 77 | 63 | 38 | 2.5 |
| サバ立磁器素地BJ | | 100 | 100 | 99 | 92 | 73 | 42 | 1.8 |
| サバ立磁器素地BP | | 100 | 100 | 100 | 94 | 76 | 44 | 1.4 |
| 半磁器素地HO | | 100 | 98 | 94 | 80 | 64 | 38 | 2.5 |
| 半磁器素地HJ | | 100 | 100 | 99 | 87 | 69 | 38 | 2.1 |
| 半磁器素地HP | | 100 | 100 | 100 | 96 | 73 | 44 | 1.5 |
| 碍子素地IO | | 98 | 94 | 85 | 64 | 51 | 31 | 5.0 |
| 碍子素地IJ | | 100 | 99 | 94 | 71 | 56 | 32 | 3.6 |
| 碍子素地IP | | 100 | 100 | 100 | 93 | 75 | 38 | 2.0 |
| 白磁磁器素地WO | | 99 | 98 | 92 | 77 | 69 | 48 | 1.3 |
| 白磁磁器素地WJ | | 100 | 100 | 99 | 91 | 75 | 49 | 1.1 |
| 白磁磁器素地WP | | 100 | 100 | 100 | 97 | 87 | 54 | 0.85 |

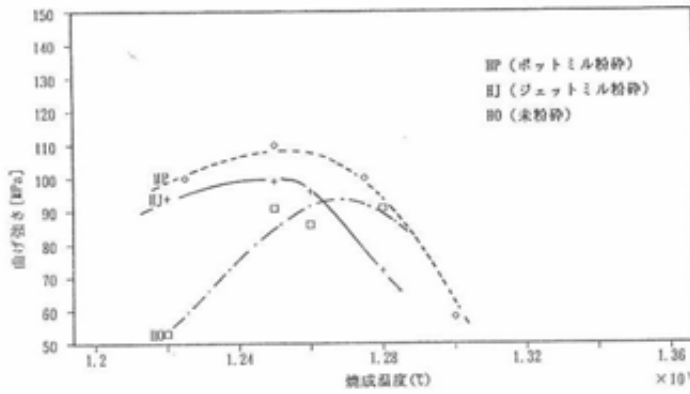


図4 陶石立磁器素地の曲げ強さの変化

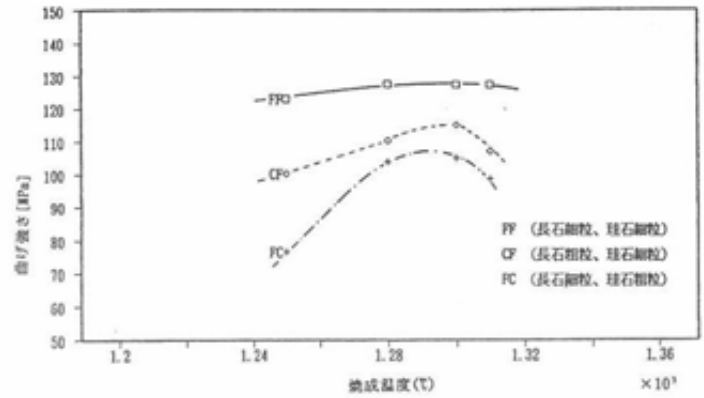


図8 白磁磁器素地の曲げ強さの変化

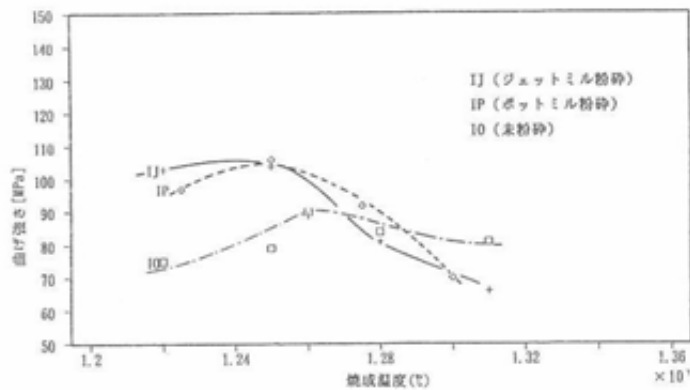


図5 サバ立磁器素地の曲げ強さの変化

表3 磁器モデル素地の粉砕による粒度分布(wt%)とD₅₀(μm)の推移

| 試料 | 粒径 | | | | | | D ₅₀ (μm) |
|-----|-------|-------|-------|-------|------|------|----------------------|
| | 40μm≥ | 30μm≥ | 20μm≥ | 10μm≥ | 5μm≥ | 1μm≥ | |
| 未粉砕 | 88 | 81 | 73 | 58 | 47 | 31 | 6.8 |
| J B | 99 | 98 | 97 | 84 | 67 | 38 | 2.3 |
| P B | 100 | 99 | 98 | 89 | 74 | 41 | 1.5 |

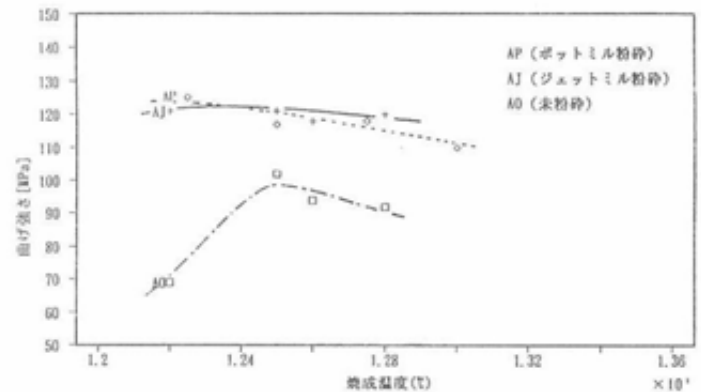


図9 磁器モデル素地の粉砕工程の違いによる曲げ強さの変化

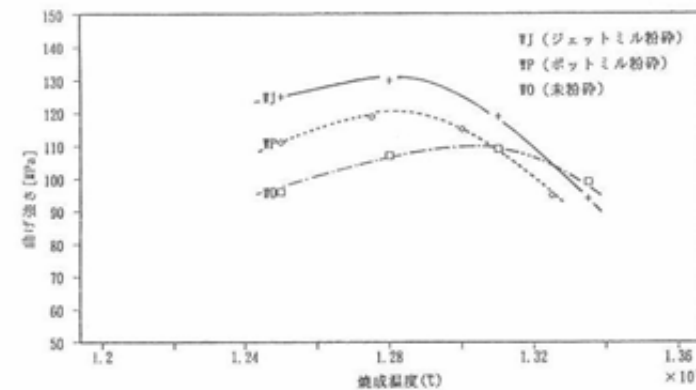


図6 半磁器素地の曲げ強さの変化

表4 珪石粉および長石粉の分級による粒度分布(wt%)とD₅₀(μm)の推移

| 試料 | 粒径 | | | | | | D ₅₀ (μm) |
|-----------|-------|-------|-------|-------|------|------|----------------------|
| | 40μm≥ | 30μm≥ | 20μm≥ | 10μm≥ | 5μm≥ | 1μm≥ | |
| 長石 (F:細粒) | 100 | 100 | 99 | 86 | 49 | 12 | 14 |
| 長石 (C:粗粒) | 96 | 92 | 78 | 32 | 16 | 8 | 5.2 |
| 珪石 (F:細粒) | 100 | 100 | 99 | 90 | 52 | 12 | 15 |
| 珪石 (C:粗粒) | 94 | 85 | 69 | 28 | 13 | 10 | 4.9 |

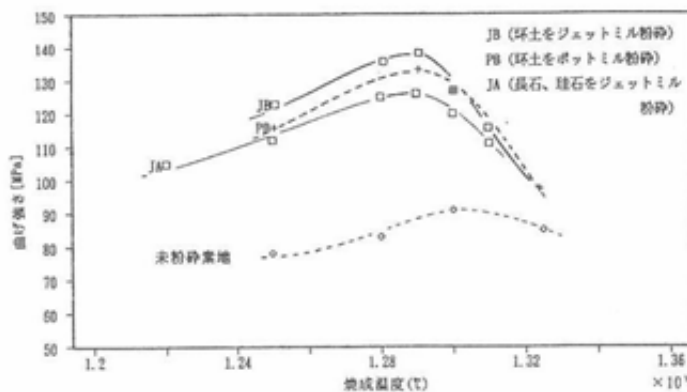


図7 罫子用磁器素地の曲げ強さの変化

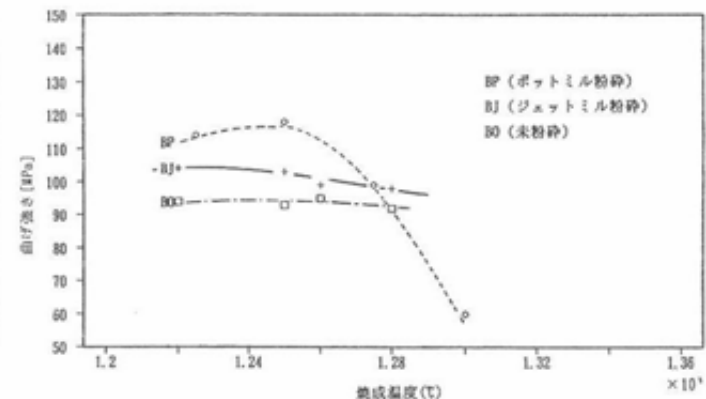


図10 分級後の粗粒・細粒を置換した磁器素地の曲げ強さ

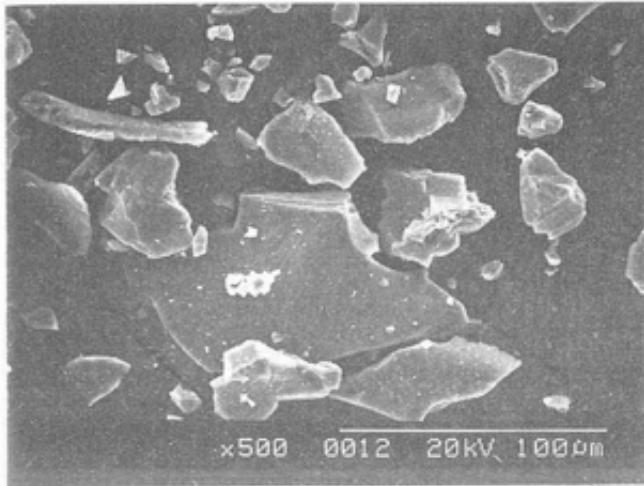


写真1 分級による粗粒側の珪石粉(500)

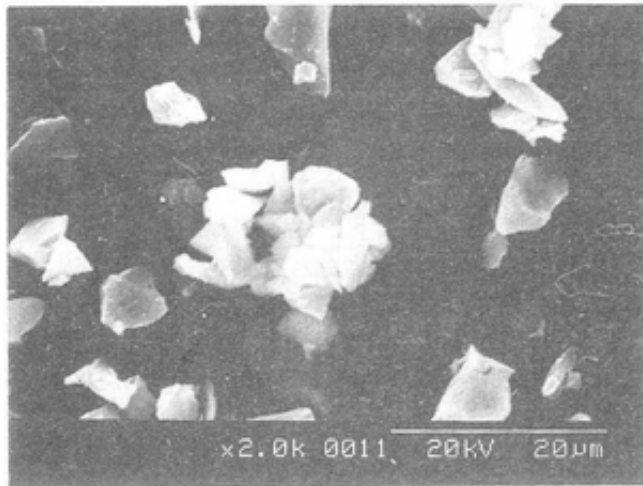


写真2 分級による細粒側の珪石粉(×2000)

粒度配合が強度に及ぼす影響は、珪石分が大きく、焼結への影響は長石が大きかった。また、長石、珪石共に細粒のものが焼成幅も大きく、安定した強度を示した。

4. 結 論

磁器素地の原料調製プロセスの改善による高品質化を目指し、次の結果を得た。

- (1) 各種市販磁器坏土を、さらに粉碎することにより、曲げ強さは、90~100MPaから 110~130MPaに増加した。
- (2) 長石、珪石、粘土(蛙目粘土、NZカオリン)系の磁器モデル坏土では、長石及び珪石分を微粉碎することにより、強度は、80~90MPa から 130 ~ 140MPa に向上した。
- (3) 微粉碎による強度特性の変化はサバ立て系よりも陶石立て及び白磁素地の方が効果があった。
- (4) 粉碎による粒度分布は、平均粒径ではジェットミル粉碎1回パスは、アルミナボットミル粉碎の5~10時間に相当した。
- (5) ジェットミル粉碎した長石、珪石を風力分級した結果、分級精度は検討の余地があったが分級効率・収率は良かった。
- (6) 磁器素地の長石及び珪石分の粒度配合が強度に及ぼす影響は、珪石分が大きく、焼結に及ぼす影響は長石が大きかった。

文 献

- 1) 渡辺 修, 石田秀輝, セラ協会誌, 101, 446-469 (1993)
- 2) 水野 修, 荒木次夫, 久野 徹, 愛知県瀬戸窯業技術センター報告, 23,18-22(1994)