

## — 経常研究 —

# 可塑性制御技術の開発

陶磁器科 吉田英樹

## 要 約

陶磁器や無機材料の成形時に重要な原料の可塑性を制御する技術を確立するため、配合原料において可塑性に影響を及ぼす要因を検討し、可塑性データベースを構築した。本年度は、種々の陶磁器用可塑性原料について行ったクリープ試験の結果から可塑性付与効果を検討し、可塑性指数を定義するとともに、配合計算における可塑性の数値化を試みた。その結果、可塑性原料の可塑性付与効果は、原料により大きく異なり、本研究においては、村上セリサイトがもっとも効果が大きかった。可塑性を示す可塑性原料の最低配合割合から可塑性指数を定義し、その可塑性指数を用いて、複数の粘性原料を用いる配合陶土の可塑性を数値化する手法を構築した。

キーワード：陶磁器原料、陶土、可塑性、成形性、クリープ試験、粘性率、可塑性指数

## 1. はじめに

陶磁器や無機材料を製品化するには、機械ろくろ、ローラーマシン、押出、造粒等、様々な成形方法を用いる必要がある。それらの成形方法に応じた陶土の可塑性が大変重要である。可塑性とは、固体に降伏応力以上の外力を加えると変形し、外力を取り去っても変形後の形状を保持する性質のことで、粘性と弾性の両方の性質を持つ。特に成形時に陶土に変形を与える際の粘性の度合いが、成形歩留まりを大きく左右する。成形性を制御するには、用いる原料の可塑性を把握しておく必要がある。可塑性を考慮しながら複数の原料を配合するには長年の経験に基づく豊富な知識を必要とする。しかし、近年、熟練技術者の減少により、技術の伝承がうまくいかないケースが増加している。経験蓄積型の技術を継承するために、可塑性データの集積と可塑性予測の手段、並びにそのマニュアル化が求められている。

そこで本研究では、陶磁器や無機材料の成形時に重要な原料の可塑性の中でも特に粘性を制御する技術を確立するため、可塑性データベースを構築し、配合原料において可塑性に影響を及ぼす要因を検討した。

昨年度は、可塑性データベースの基本データとな

る可塑性の指標を定めるための可塑性評価方法について検討した。その結果、レオメーターを用いたクリープ試験によって求めた粘性率が、陶磁器原料の可塑性の特徴を示すひとつの指標となりうることを示唆された。

そこで本年度は、種々の陶磁器用可塑性原料について行ったクリープ試験の結果から可塑性付与効果を検討し、可塑性指数を定義するとともに、配合計算における可塑性の数値化を試みた。

## 2. 実験方法

本研究で可塑性評価方法として用いたクリープ試験は、材料の変形時の変位－荷重－時間の関係を直接的に測定する方法のひとつで、物体に一定荷重を負荷したときの変形と時間の関係を求め、試料に一定荷重を負荷したときの変形率を縦軸に、経過時間を横軸にプロットして得られるクリープ曲線から弾性率および粘性率を求めることができるものである。本研究では、可塑性原料単体あるいは可塑性および非可塑性原料の配合物について、配合割合と水添加量を変化させ、可塑性が発現する範囲をクリープ試験により探索した。

可塑性原料として、木節粘土、ニュージーランド

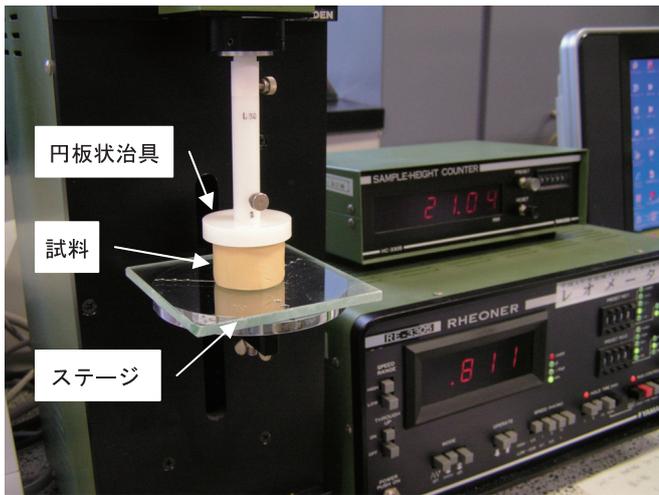


図1 レオメーター

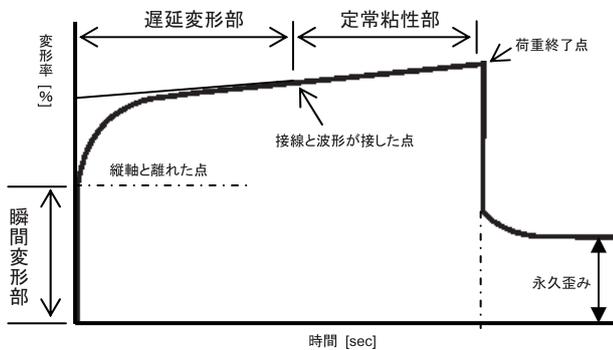


図2 クリープ曲線の模式図

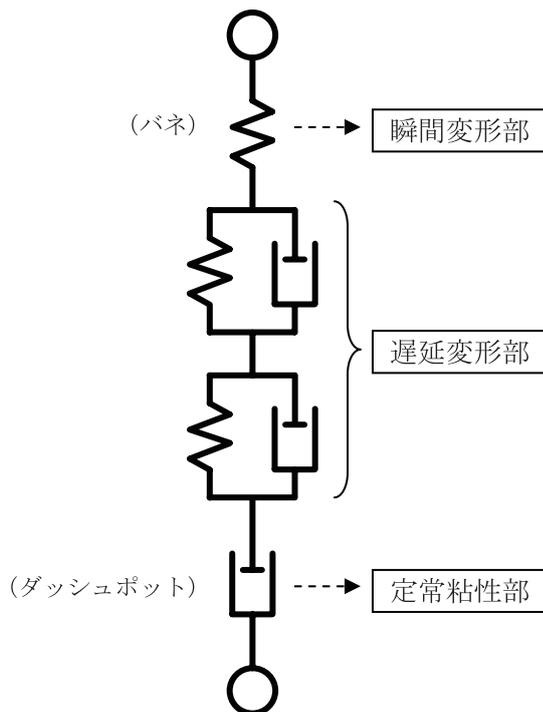


図3 クリープ曲線の6要素モデル

カオリン (以下、NZカオリン)、および村上セリサイトを用い、さらに比較としてロクロ成形用として市販されている天草撰中陶土を用いた。非可塑性原料として平均粒径  $40\mu\text{m}$  のペタライトを用いた。

可塑性原料単体、すなわち可塑性原料配合割合が 100mass% の試料は、乾燥した可塑性原料粉末に水を外割で 30~60mass% 添加して混練した後、ビニール袋に封入して 24 時間養生した。養生した試料を金型により直径 20mm、高さ 20mm の円柱状に成形してクリープ試験用試料とした。比較用の天草撰中陶土は、乾燥したのち水を外割で 20~35mass% 添加し、同様の方法でクリープ試験用試料を作製した。一方、配合物は、非可塑性原料に対して、15~70mass% の可塑性原料を混合し、その混合物に水を外割で 20~57.5mass% 添加して混練した。以後、可塑性原料単体と同様の方法により、クリープ試験用試料を作製した。

クリープ試験は、図 1 に示すレオメーター (RE-3305、山電製) を用いて行った。ステージに乗せた円柱試料を円板状治具で上からはさみ、一定荷重を加えることで試料が次第に潰れて試料高さが減少する過程において、試料の初期高さに対する高さの変化量から試料の変形率を求めた。負荷荷重は 2.94N (300gf) とし、300 秒間荷重した後除荷し、引き続き 300 秒間試料の変形率を測定し回復状態も確認した。

図 2 にクリープ曲線の模式図を示す。横軸が荷重開始からの経過時間、縦軸が試料高さの変形率を示す。クリープ曲線は、図中に示すように瞬間変形に対応する瞬間変形部と、徐々に変形速度が遅くなる遅延変形部と、変形速度が一定となる定常粘性部に分けられる。一例として弾性体要素であるバネと粘性体要素であるダッシュポットの 6 つの組み合わせでクリープ曲線をモデル化した 6 要素モデルを図 3 に示す。瞬間変形部はバネで示したフック弾性体モデルに、遅延変形部はバネとダッシュポットで示した 2 組の並列型フォークト粘弾性体モデルに、定常粘性部はダッシュポットで示したニュートン粘性体モデルにそれぞれ近似的に対応するものとみなせる。この 6 要素モデルを定式化すると式 (1) となり、測定したクリープ曲線に対して近似計算を行うことで試料の弾性率及び粘性率を求めることができる<sup>1)</sup>。

$$\varepsilon(t) = \frac{P_0}{E_0} + \frac{P_0}{E_1} (1 - e^{-\frac{t}{\tau_1}}) + \frac{P_0}{E_2} (1 - e^{-\frac{t}{\tau_2}}) + \frac{P_0}{\eta_N} t \quad (1)$$

ここで、 $\epsilon(t)$ は変形率、 $t$ は経過時間、 $P_0$ は応力、 $E_0$ は瞬間変形部の弾性率、 $E_{1,2}$ は遅延変形部の弾性率、 $\tau_{1,2}$ は遅延時間、 $\eta_N$ は定常粘性部の粘性率を示す。本研究では、陶磁器や無機材料の成形時に重要な原料の可塑性の中でも特に粘性の評価を目的とするため、定常粘性部の粘性率により可塑性を検討した。

### 3. 結果および考察

図4に水を30mass%添加した天草撰中陶土のクリープ曲線を示す。荷重開始から110秒後に変形速度が一定となる定常粘性状態へと移行した。荷重開始300秒後に除荷すると、変形率が低下する挙動を示した。これは変形した試料が回復したことを示している。このクリープ曲線から(1)式により求めた粘性率は $1.2 \times 10^9 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ であった。

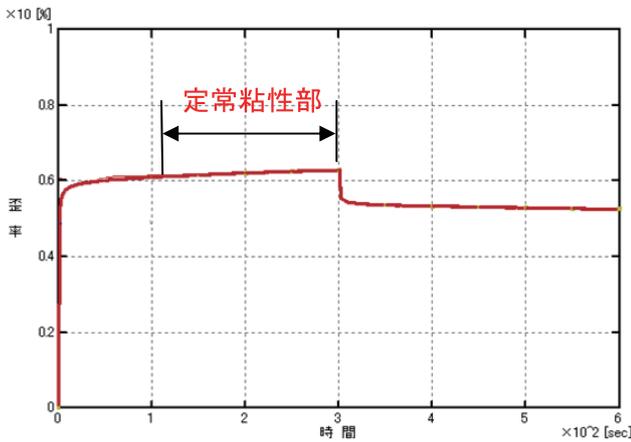


図4 天草撰中陶土(水添加量30mass%)のクリープ曲線

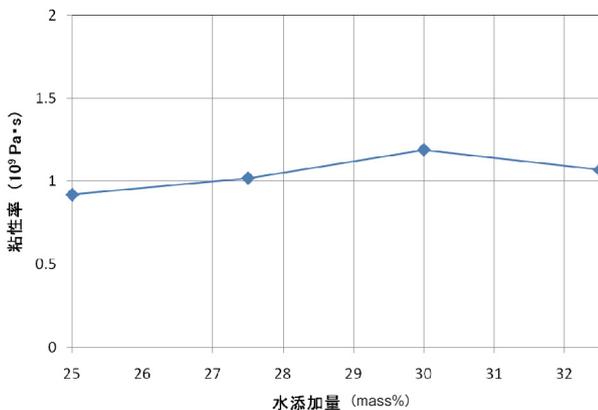


図5 天草撰中陶土の水添加量と粘性率の関係

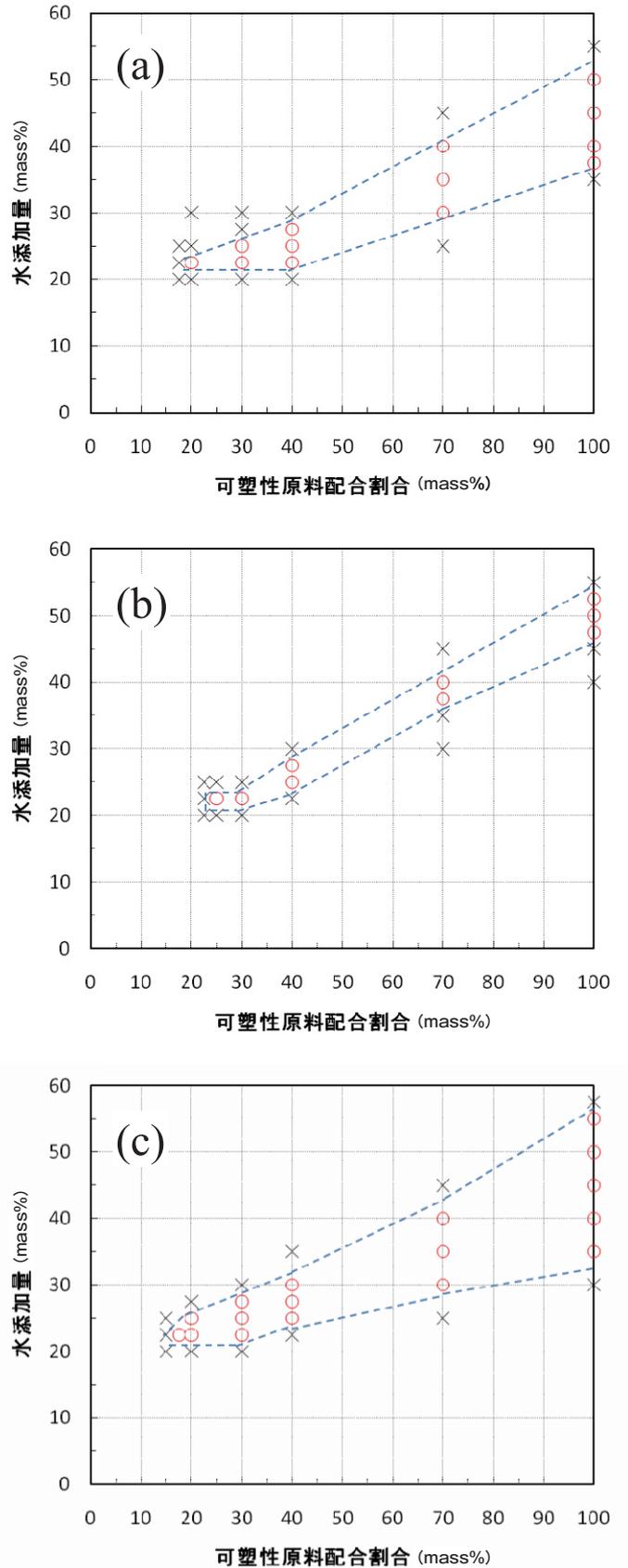


図6 可塑性原料の配合割合と水添加量に対する可塑性発現領域  
 ((a)木節粘土 (b)ニュージーランドカオリン (c)村上セリサイト)

次に天草撰中陶土に対する水添加量と粘性率の関係を図5に示す。天草撰中陶土の粘性率は $0.9 \sim 1.2 \times 10^9 \text{Pa}\cdot\text{s}$ の範囲で、水添加量にほとんど依存していない。すなわち、今回入手した天草撰中陶土においては、機械ロクロやローラーマシン成形などの可塑成形が可能となる粘性率は $10^9 \text{Pa}\cdot\text{s}$ オーダーであった。なお、図に示す水添加量の範囲以外では、水分不足あるいは水分過剰によりクリープ試験体が作製できなかったため測定していない。

以上の結果から、他の可塑性原料において、単体及び非可塑性原料との配合物についても同様のクリープ試験を実施して粘性率を求め、粘性率が $10^9 \text{Pa}\cdot\text{s}$ オーダーとなる配合を○、それ以外を×として判定して可塑性の評価を行った。

木節粘土、NZカオリンおよび村上セリサイトについて、ペタライトに対する可塑性原料の配合割合および水添加量の関係を図6に示す。図中の破線は○と×の境界を示し、破線内の○の領域が可塑性を発現した領域となる。図からわかるように、原料によって可塑性発現領域の面積や最低必要な配合割合が大きく異なった。図6(a)の木節粘土は、最低配合割合が20mass%で、配合割合100mass%、すなわち木節粘土単体における水分範囲は約15mass%であった。図6(b)のNZカオリンは、最低配合割合が25mass%で、NZカオリン単体における水分範囲は約5mass%であった。図6(c)の村上セリサイトは、最低配合割合が17.5mass%で、村上セリサイト単体における水分範囲は約20mass%であった。すなわち、NZカオリンは最低配合割合が高く、水分範囲が狭いのに対し、村上セリサイトは最低配合割合が低く、水分範囲が広いことがわかる。木節粘土はそれらの中間的な特性であった。最低配合割合が低い可塑性原料は、少ない配合量で可塑性を与える効果が高いので、今回用いた可塑性原料の中では、村上セリサイトがもっとも可塑性付与効果が高いといえる。

以上のように、可塑性原料の最低配合割合は、可塑性付与効果と密接な関係があることから、最低配合割合を指標として可塑性指数を検討した。なお、可塑性原料単体の結果は、可塑性原料配合割合100mass%として示す。

最初に、可塑性原料及び非可塑性原料それぞれ1種ずつの2元系配合原料の可塑性指数算出方法について検討した。まず、可塑性原料を最低配合割合添加

したときの配合原料の可塑性指数が1となるよう以下のとおり $P_1$ を規格化した。

$$X_{min} \times P_1 = 1 \dots\dots\dots (2)$$

$$P_1 = \frac{1}{X_{min}} \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 $X_{min}$ は最低配合割合(mass%)である。上記にしたがい算出した $P_1$ は可塑性原料1mass%あたりの可塑性指数と定義する。木節粘土、NZカオリンおよび村上セリサイトの最低配合割合を上式に代入すると、可塑性指数 $P_1$ はそれぞれ0.050、0.040および0.057となる。さらに、原料100mass%あたり、すなわち原料単体の可塑性指数を $P_{100}$ と定義すると、 $P_{100}$ は次式で求められる。

$$P_{100} = P_1 \times 100 \dots\dots\dots (4)$$

したがって、木節粘土、NZカオリンおよび村上セリサイト単体の可塑性指数 $P_{100}$ は、それぞれ5.0、4.0および5.7となる。また、同様に求めた天草撰中陶土単体の可塑性指数 $P_{100}$ は1.50であった。

次に、この可塑性指数 $P_1$ を、複数原料を用いた配合計算に適用した。配合原料の可塑性指数は次式により算出する。

$$P_{mix} = \sum_i X_i \times P_{i1} \dots\dots\dots (5)$$

ここで、 $P_{mix}$ は配合原料の可塑性指数、 $X_i$ は原料 $i$ の配合割合、 $P_{i1}$ は原料 $i$ の可塑性指数である。可塑成形が可能な低温焼成磁器の配合例に(5)式を適用した例を表1に示す。ここで使用した原料の可塑性指数 $P_1$ は、上記と同様の方法で最低配合割合から求めたものである。計算の結果、表1の配合原料の可塑性指数は1.52となった。前述したように、天草撰中陶土単体の可塑性指数 $P_{100}$ が1.50であることから、配合陶土の可塑性指数 $P_{mix}$ を1.50程度に調整すれば、可塑成形が可能な陶土の配合割合を迅速に計算可能と考えられる。

表1 低温焼成磁器の配合例

原料	インド長石	KC2 カオリン	NZ カオリン	村上 セリサイト	皿山 低火度陶石	珪石	合計
可塑性指数 ( $P_i$ )	0	0.033	0.040	0.057	0.011	0	
配合割合 ( $X_i$ ) %	21.80	7.07	16.53	3.98	36.68	13.94	100.00
$X_i \times P_i$	0	0.23	0.66	0.23	0.40	0	1.52

#### 4. まとめ

可塑性予測方法の確立を目的として、可塑性データの収集と、可塑性原料添加効果から可塑性指数を定義し、配合計算における可塑性の予測を試み、以下の知見を得た。

(1) クリープ試験により測定した天草撰中陶土の粘性率は約  $1.0 \times 10^9 \text{ Pa}\cdot\text{s}$  であった。

(2) 可塑性原料の可塑性付与効果は、原料により大きく異なり、本研究においては、村上セリサイトがもっとも効果が大きかった。

(3) 可塑性を示す可塑性原料の最低配合割合から可塑性指数を定義した。

(4) 可塑性指数を用いて、複数の原料を用いた配合陶土の可塑性を数値化する手法を構築した。

(5) 可塑性指数と各種成形方法との対応を調査することが今後の課題である。

#### 参考文献

1) 中江利昭、レオロジー工学とその応用技術、フジ・テクノシステム (2001).