

## 特集 陶磁器産業を支援する取り組み

可塑性原料の現状と  
可塑性数値化の試み

Supply Crisis of Ceramic Raw Materials in Japan and the Development of the Quantitative Expression of Plasticity

Key-words : Ceramic raw materials, Supply crisis, Plasticity, Quantitative expression

## 吉田 英樹・武内 浩一

Hideki YOSHIDA\*<sup>1</sup> and Koichi TAKEUCHI\*<sup>2</sup>(\*<sup>1</sup>Industry & Labor Department, Nagasaki Prefecture, \*<sup>2</sup>Ceramic Research Center of Nagasaki)

## 1. はじめに

昭和時代に拡大の一途をたどっていた陶磁器業界は、バブル経済の崩壊とともに市場規模が縮小し、最近の工業統計では最盛期の7割台で推移している。特に食器類の落ち込みは激しく、出荷額は2割近くにまで減少した。生産量の減少は原料使用量の減少に直結しており、現在の国内の窯業原料の供給状態は、陶磁器産業が輸出の一翼を担っていた活気ある時代に比べて、かなり様変わりをしている。

ここでは日本の窯業原料の変遷を概観し、最近急に供給が危ぶまれ始めた可塑性原料の状況について紹介する。また、可塑性原料を配合してロクロ成形や押出成形等可塑成形に適した坯土を調製するために開発した、配合計算における可塑性値の数値化の試みについても紹介する。

## 2. 可塑性原料の現状

## 2.1 消えた銘柄品—「日本の窯業原料」に見る変遷—

昭和34年発行の一般向け教科書「陶磁器—楽焼から本焼まで—」には、川俣（福島）長石、朝鮮（河東）カオリン、泉山陶石、服部陶石等が代表的な原料として紹介されている<sup>1)</sup>。これらは現在全く利用されていないか、一部の限られた需用者だけに供給されているに過ぎない。良質な国内原料として長く全国的に利用されていた村上粘土と金丸長石は21世紀をまたずに閉山した。また20年前に彗星のごとく現れて世界を席卷した中国（龍巖）カオリンも、今は特定のルートだけで流通している状態である。さらには現在も国内産の長石原料として重要な存在である大平長石が、在庫品を出荷した後に事業から撤退することが決まっている。これら窯業原料界の銘柄品とされた多くの原料

表1 「日本の窯業原料」に見る原料産地数の変遷

種類	細目	2001年版 (Web版)	1992年版	1978年版	1965年版
けい石類	けい石				76
	炉材けい石	53	45	211	45
	軟けい石				45
	けい砂	46	38	103	70
長石類	バグマタイト	2	2		
	アプライト	13	14	91	77
	風化花崗岩	8	16		
	その他	7	5		
粘土類	蛙目粘土	32	32	86	75
	木節粘土	29	40	132	101
	耐火粘土	13	4	41	70
	カオリン	7	16	44	29
	せつ器粘土	46	55	132	43
陶石		34	37	139	97
セリサイト		1	6	12	8
ロウ石		19	32	135	102
石灰石		135	130	169	—
ドロマイト		11	8	31	—
滑石		3	2	32	30
ペントナイト		12	13	22	9
酸性白土		6	9	12	—
けい藻土		14	9	13	—
シラスおよび火山灰		11	5	2	—
パーライト		10	11	2	—
けい灰石		1	1	2	—
ゼオライト		16	16	—	—
紙紋岩		9	9	15	—
雑原料	副産粘土	20	12	—	—
	都市生活廃棄物	2	3	—	—
	工業副産物	7	4	—	—
その他	釉薬、着色原料等	2	3	3	—

が、次々と生産現場から消えている。

自治体の公設試と産総研で組織する産業技術連携推進会議セラミックス分科会（旧工業技術連絡会議窯業連合部会）は窯業原料に関する全国規模の調査を定期的に行っており、「日本の窯業原料」として1965年から2001年にかけて4回の改訂版を発行している<sup>2)~5)</sup>。この調査では19種31項目の原料が対象となっている。表1に原料種類別の約40年間の原料産地数の変遷を示した。各時代の産業構造を反映して、窯業原料の掲載項目にも少しずつ変化が見られる。鉄鋼の増産や都市のインフラ整備が最重要の課題であった高度成長期には、けい石の種類が用途別に細かく分類されている。最近では高層ビル建設用の軽量骨材や断熱材の原料であるパーライトやシラス類が、また環境関連産業の発展を反映してゼオライトや工業副産物の登録件数が増えている。その一方でロウ石は耐火物原料や農薬用資材としての需要減少により著しく減っている。

可塑性原料について見てみると、表1の分類では、粘土、陶石、セリサイト、ペントナイトの項目が該当する。それぞれの変化を1965年に対する2001年の登録数の割合で表すと、蛙目粘土（43%）、木節粘土（29%）、耐火粘土（19%）、カオリン（24%）、陶石（35%）、セリサイト（13%）、ペントナイト（133%）となり、ペントナイト以外のすべての項目で登録数が減少している。経済産業省の生産動態統計調査によると、台所・食卓用品の生産量は最高を記録した1977

年の53万5千tに対して、2001年は17万1千t(32%)となっている。可塑性原料はタイル、衛生陶器、磚子等幅広い陶磁器製品に利用されており、台所・食卓用品だけに供給されているのではないが、食器類の生産動向は「日本の窯業原料」に掲載された原料産地の変化と同じ傾向を示している。食器の生産量の減少とともに原料産地も少なくなっていることがわかる。食器生産量は2015年には5万tまで減少しており、原料需要はさらに縮小し、国内の陶磁器原料産地は存続の岐路に立たされている。なお、ベントナイトがあまり変動していないのは、利用分野が窯業だけでなく鑄造や製鉄用の副資材、また建設関係での需要が多いためと考えられる。

## 2.2 可塑性原料の現状

可塑性原料の産地の現状を少し詳しく見てみる。木節粘土と蛙目粘土について、岐阜県の調査<sup>6)</sup>や新聞情報によれば、岐阜県内に1992年に32ヶ所あった粘土鉱山が2011年には7ヶ所となった。2012年に小名田木節鉱山(小名田木節)が不採算により閉山した。最近ではオクムラセラム山又鉱山(小名田木節)が、2017年度完成予定の多治見長瀬テクノパーク内の工業用地として売却された。土岐口財産区中山鉱山(大洞木節)は、2019年度開業予定の大型商業施設用地として売却された。また、主として瀬戸地区で採掘されている、白磁用の良質蛙目粘土の採掘量も年々減少しており、2013年に供給量の制限が、2014年には販売価格の一部値上げが実施されている。

天草陶石は300年以上前から採掘されている最も有名な陶石原料である。1980年には11社が操業していたが、2004年以降は3社による採掘が続いている。生産量は1970年代の最盛期に10万t以上を出荷したが、2014年は1万3千tまで減少している。九谷焼原料の花坂陶石も枯渇が心配されたが、調査の結果十分な資源量が確認された。セリサイトは現在登録されているのは振草セリサイトだけである。村上粘土は可塑性に優れたセリサイト原料として、普通磁器だけでなくボンチャイナにも好んで使われていたが2000年に閉山した。埋蔵量は残っているが、地下50mでの坑内採掘であるため、再開発には多額の資金が必要になる。鳥根県の斐川セリサイトは2013年に豪雨災害のため坑内が水没したため採掘を終了し、現在は在庫品の出荷だけを行っている。

## 3. 可塑性の定量化

日本の陶磁器業界を支えてきた代表的な可塑性原料が枯渇し、入手できなくなる事態は確実に訪れる。天

然原料が持つこの本質的なリスクに対して、対応策を常に準備しておく必要がある。最も現実的な方法はこれらに代わる原料(代替原料)を、前もって探索しておくことである。また、坏土を調製するためには代替原料の配合割合を決める作業が必要となる。代替原料が従来原料と全く同じ性質を持っていれば単純に置き換えればいいが、そのような原料が手に入ることは極めてまれである。特に可塑性を評価して配合割合を決定する過程は、経験を積んだ技術者にとってもかなりの困難を要する作業である。具体的な評価手法も、配合試験で試作した多数の坏土について、技術者が官能試験で定性的に判断することになる。陶磁器技術者が減少している現状では、この面でも代替原料を選定する困難さが増大している。

これから直面することが予想されるこれらの問題を解決するためには、技能のアーカイブ化や技術の定量化が欠かせない。特に、材料特性の数値化は必須の課題である。用途に対応した坏土を調製するうえで、原料の化学組成は重要な特性であり、焼成温度が固定される工業的な陶磁器製造では基本的なデータである。ところが、これまでの原料調合計算では「可塑性」について、化学組成と同様な定量的な取り扱いが可能な数値データの類は、少なくとも学生用の教科書には掲載されていない。もし、例えば「指数3」であればローラマシン成形に使えるが機械ロクロ成形には向かない、というような使い方ができる「可塑性値」を個々の原料に対して割り振ることができれば、調合計算をするうえでたいへん便利な定量指標となり、経験が浅い技術者にとっても便利なツールとして利用できると思われる。

### 3.1 さまざまな可塑性評価法

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っている。特に陶磁器の成形歩留まりを大きく左右するのは、坏土が変形している時の粘性の度合いである。

陶磁器坏土の可塑性評価法はこれまでにさまざまな方法が提案されている<sup>7)</sup>。古くから用いられているのが「Pfefferkorn法」で、一定条件下での急速な圧縮変形試験において、坏土が特定の変形割合を示すときの含水比を求めるものである。「一軸圧縮試験法」は通常の圧縮試験機を用いて、緩やかな圧縮変形試験下での坏土の変形と反発力を、応力-ひずみ曲線で解析する試験法である。「ブラベンダープラストグラフ法」は熔融状態のプラスチックの粘性を測定する試験機を用いて、原料に水を添加しながら一定速度で混練し、

含水率と混練に要した回転トルクの関係から可塑性を評価する方法である。また、動的粘弾性測定装置を用いて坯土に小球を一定速度で圧入し、小球の圧入深さと計測された負荷力との関係で可塑性を評価する方法等がある<sup>8)</sup>。

### 3.2 動的粘弾性測定装置（クリープメータ）による可塑性の評価

長崎県窯業技術センターでは、クリープメータ（またはレオメータ）を用いたクリープ試験によって求めた粘性率を、可塑性の特徴を示す指標として採用し、可塑性の定量化を試みた<sup>9)</sup>。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である。物体に一定荷重を負荷したときの変形量と時間の関係を求め、縦軸に変形率を横軸に経過時間をプロットして得られるクリープ曲線に基づいて、材料の弾性率と粘性率を求めることができる。

図1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を、縦軸が変形率を示す。クリープ曲線は、図中に示すように荷重直後の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、変形速度が一定となる定常粘性部に分けられる。3区間の変形率をモデル化して定式化し、足し合わせた下記の式で、測定試料のクリープ曲線に対する近似計算が可能である。

変形率=瞬間変形部+遅延変形部+定常粘性部  
最適化された近似式の各変形部を表す式では、それぞれの弾性率と粘性率が算出されている。ここでは可塑性の中でも成形性に大きく関与している定常粘性部の粘性率に注目した。

実験では可塑性原料単体と非可塑性原料を配合した試験体について、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。可塑性原料に村上セリサイトとニュージーランドカオリン（NZカオリン）を用い、標準試料としてロクロ成形用の天草陶土を用いた。調合用の非可塑性原料には平均粒径40 $\mu\text{m}$ のペタライトを用いた。

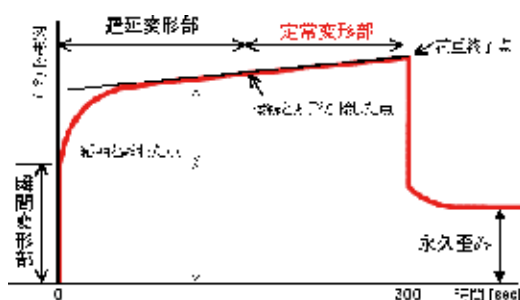


図1 クリープ曲線の模式図

クリープ試験は図2に示すレオメータを用いた。ステージに乗せた円柱試料を円板状治具で上から挟み、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での、試料の初期高さに対する変化量から試料の変形率を求めた。図3に水を30mass%添加した天草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したが、これは試料の高さが回復したことを示している。このクリープ曲線から求めた定常粘性部の粘性率は $1.2 \times 10^9 \text{Pa}\cdot\text{s}$ であった。さらに天草陶土に対する水添加量（25~32mass%）と粘性率の関係を調べたところ、粘性率は $0.9 \sim 1.2 \times 10^9 \text{Pa}\cdot\text{s}$ の範囲を示し、水添加量にはほとんど依存しなかった。これにより天草陶土では粘性率が $10^9 \text{Pa}\cdot\text{s}$ オーダーにあれば、機械ロクロやローラーマシン成形等の可塑成形が可能であることがわかる。

NZカオリンと村上セリサイトについても、単体および非可塑性原料との配合物のクリープ試験を行って粘性率を求めた。図4にペタライトとの配合割合と水添加量を変化させた実験の結果を示す。図中で粘性率が $10^9 \text{Pa}\cdot\text{s}$ オーダーとなる配合を○、それ以外を×とした。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、可塑性が発現するために必要な最低限の配合量が大きく異なっている。

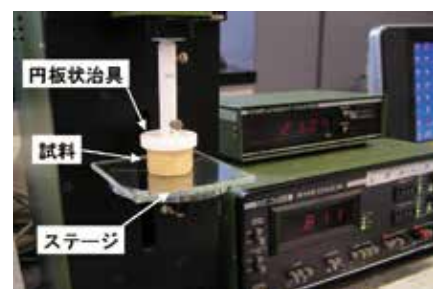


図2 動的粘弾性測定装置（レオメータ）

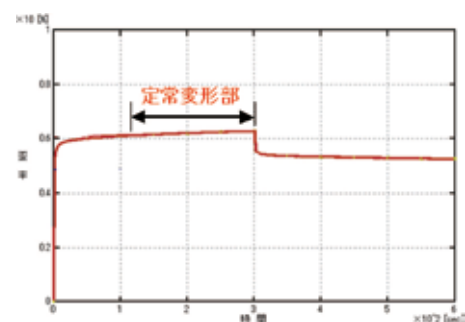


図3 天草陶土のクリープ曲線（水分量30mass%）

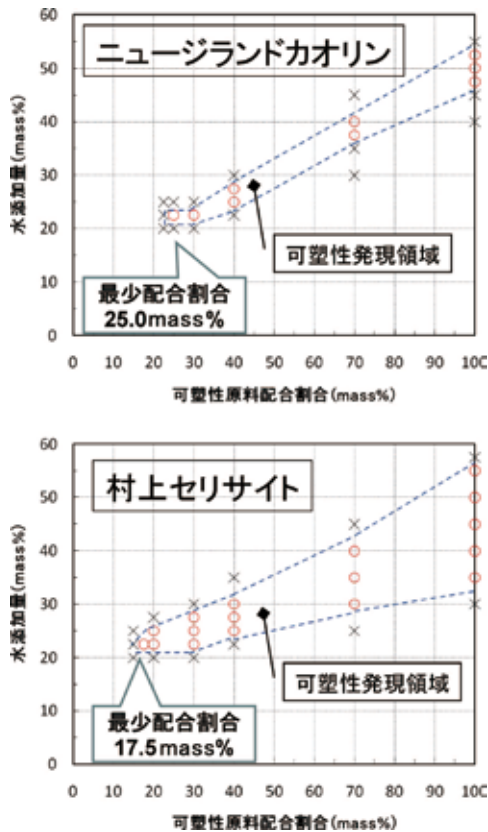


図4 可塑性原料の配合割合と水添加量に対する可塑性発現領域

る。NZカオリンは最少配合割合が25mass%，単体での許容含水範囲は約5mass%であった。村上セリサイトは最少配合割合が17.5mass%，単体での許容含水範囲は約20mass%であった。NZカオリンは最少配合割合が高く、許容含水範囲が狭いのに対し、村上セリサイトは最少配合割合が低く、許容含水範囲が広いことがわかる。最少配合割合が低い原料は少ない配合量で可塑性を与える効果が大きく、許容含水範囲が広いと坏土状態での土の硬度の選択領域を広くすることができる。

### 3.3 可塑性指数の導入と応用例

可塑性原料の最少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、最少配合割合を指標として、

定量的取り扱いが可能な「可塑性指数」の導入を検討した。まず、可塑性原料を最少配合量だけ添加したときの原料の可塑性指数が1となるように、以下の $P_1$ を定義した。

$$X_{\min} \times P_1 = 1, P_1 = 1 / X_{\min}$$

ここで、 $X_{\min}$ は最少配合割合（mass%）である。算出した $P_1$ は可塑性原料1mass%あたりの可塑性指数と考えることができる。NZカオリンおよび村上セリサイトの最少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0.040および0.057となる。さらに、原料単体（100mass%）あたりの可塑性指数を $P_{100}$ と定義すると、 $P_{100}$ は次式で求められる。

$$P_{100} = P_1 \times 100$$

したがって、NZカオリンと村上セリサイトの可塑性指数 $P_{100}$ は、それぞれ4.0および5.7となる。また同様に求めた天草陶土単体の可塑性指数 $P_{100}$ は1.50となった。

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。

$$P_{\text{mix}} = \sum X_i \times P_{1i}$$

ここで、 $P_{\text{mix}}$ は配合原料の可塑性指数、 $X_i$ は原料 $i$ の配合割合、 $P_{1i}$ は原料 $i$ の可塑性指数である。可塑性成形が可能な磁器坏土の配合表に、可塑性指数を適用した例を表2に示す。ここで使用した原料の可塑性指数 $P_1$ は、上述の方法で最少配合割合から求めたものである。計算の結果、この磁器坏土の可塑性指数は1.52となった。前述のように、天草陶土の可塑性指数 $P_{100}$ も1.50であることから、配合陶土についても可塑性指数（ $P_{\text{mix}}$ ）1.50程度を目標に調合計算すれば、可塑性の評価試験をすることなく、可塑性成形可能な坏土が製造できることを示している。

## 4. おわりに

ボーダレス化する経済のもとで、日本の陶磁器製品はより一層の高品質化が求められている。「白く、薄く、軽く、強く、透光性があり、耐熱衝撃性に優れた」陶磁器を作らなければ、国際競争のなかで生き残って

表2 「可塑性指数」による磁器坏土の配合計算例

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	けい石	合計
原料可塑性指数( $P_{1i}$ )	0	0.033	0.04	0.057	0.011	0	
配合割合( $X_i$ )	21.8	7.07	16.53	3.98	36.68	13.94	100
配合可塑性指数( $X_i \times P_{1i}$ )	0	0.23	0.66	0.23	0.4	0	1.52

いけない時代になっている。一方でそのような高付加価値製品が製造できる天然原料の開発は、今後は日本国内において期待することは難しい。良質な海外原料を見いだして輸入することが現実的な対応策であるが、輸送コストは全世界共通なので、中国や東南アジアの陶磁器メーカーとの価格競争にさらされることは必至である。

別の選択肢として、技術開発によって既存の国内原料を加工・精製し、用途を広げることも重要である。加工工程を加えることはコストアップにつながるが、高付加価値製品へのルートを開拓することで原料供給量が増大し、鉱山の経営体質の強化にもつながる。天草陶石の脱鉄技術の導入は、この方向で大きな成果を納めた成功例である<sup>10)</sup>。

さらに、可塑性メカニズムの解明による新しい可塑性付与技術の開発が、人工粘土の開発を通して試されている<sup>11)</sup>。このような可塑性発現に関する研究が進めば、可塑性に乏しい未利用の原料を「使える原料」に改質することも可能になる。改質技術の開発に際しては可塑性を定量的に記述することが必要になるが、そのような要請に対しても、今回紹介した「可塑性指数」の適用は有効な手法になると考えている。

#### 文 献

- 1) 宮川愛太郎，“陶磁器—楽焼から本焼まで—”，共立出版（1959）。
- 2) 工業技術連絡会議窯業連合部会編，“日本の窯業原料（1965）”，工業技術院名古屋工業技術試験所（1965）。
- 3) 工業技術連絡会議窯業連合部会編，“日本の窯業原料（1978）”，名古屋工業技術協会（1979）。
- 4) 工業技術連絡会議窯業連合部会編，“日本の窯業原料（1992）”，ティーアイシー（1992）。
- 5) 産業技術総合研究所，“日本の窯業原料（2001）”，産総研データベース（2001）。
- 6) 公益財団法人岐阜県産業経済振興センター，地場産業等調査「陶磁器産業 平成27年度」，（2016）。
- 7) 日本セラミックス協会編，“セラミック工学ハンドブック（第2版）[応用]”，技報堂（1989）pp.631-632。
- 8) 神尾 典，木村邦夫，VSI 研究会会報，21, 5-11（2006）。
- 9) 吉田英樹，長崎県窯業技術センター研究報告（平成21年度，1-5（2010））。
- 10) 林 文男，永田正典，セラミックス，14, 333-37（1979）。
- 11) 芝崎靖雄，セラミックス，51, 120-129（2016）。

#### 筆者紹介

##### 吉田 英樹（よしだ ひでき）

1995年九州大学大学院総合理工学研究科材料開発工学専攻修士課程修了。同年長崎県窯業技術センター研究員。2011年博士（工学）（九州大学）。専門は無機材料工学、コンピュータ利用技術、陶磁器製造技術。  
[連絡先] 〒850-8570 長崎市江戸町2-13 長崎県産業労働部企業振興課  
E-mail : hyoshida@pref.nagasaki.lg.jp



##### 武内 浩一（たけうち こういち）

1977年九州大学理学部地質学科卒業。1979年東京大学大学院修士課程修了。1981年長崎県窯業試験場勤務。2002年博士（九州大学）。窯業用天然原料の鉱物学的研究と、陶磁器製造に関する材料の変化や反応過程に興味を持っている。  
[連絡先] 〒859-3726 長崎県東彼杵郡波佐見町稗木場郷605-2 長崎県窯業技術センター  
E-mail : takeuchi@pref.nagasaki.lg.jp

