

# 可塑性原料の探索とそれを用いた陶磁器素材の開発 (その2)

陶磁器科 吉田 英樹、稲尾 恭敬  
窯業技術センター元職員 武内 浩一

## 要 約

本県陶磁器産地の技術支援の充実を図るため、日用食器製造に必要な陶磁器原料（天草陶石、可塑性原料、釉薬原料）の調査を実施するとともに、今後利用頻度の増加が見込まれる脱鉄陶石に可塑性を付与した新陶土の開発を行う。本年度は、脱鉄陶石に土橋セリサイトを配合した陶土を試作し、物性評価（化学組成、鉱物組成、粒度分布、湾曲度、吸水率、焼成収縮、熱膨張）及び成形性評価を実施した。その結果、配合陶土は、複雑形状製品の成形性向上や、焼成腰の強さを活かした器物の肉薄化による製品の軽量化が期待できることがわかった。

キーワード：陶磁器原料、可塑性原料、天草陶石、天草陶土、脱鉄陶石、土橋セリサイト、物性評価

## 1. はじめに

既報<sup>1)</sup>でも述べたように、可塑性がやや乏しく天草陶土の原料として主体的に使用されていない天草脱鉄陶石をより有効的に活用することを目的に、本研究では可塑性付与原料として土橋セリサイトを選定した。選定の理由は、耐火度が高く、可塑性にも優れ、肥前地区独特の製土工程であるスタンパー粉碎と水篩分級に適した原料だからである。可塑性が良好な新陶土の開発を目的に、天草脱鉄陶石に土橋セリサイトを配合した配合陶土を試作し、物性及び成形性について検討したので報告する。

## 2. 実験方法

本研究では、熊本県天草郡の木山陶石鉱業所で採掘、塩酸処理されている木山脱鉄陶石と岡山県備前市の土橋鉱山で採掘されている土橋セリサイトを原料として使用した。

木山脱鉄陶石単味陶土、及び配合陶土（木山脱鉄

陶石：土橋セリサイト＝70wt%：30wt%）は、佐賀県嬉野市の陶土メーカーに依頼し、通常の天草陶土と同じ工程で作製した。陶土製造工程の各段階（陶石、スタンパー（はたき粉）、砂、珪、陶土）で評価用試料をサンプリングし、蛍光 X 線分析装置（スペクトリス社製、Zetium）を用いて化学組成、粉末 X 線回折装置（スペクトリス社製、EMPYREAN）を用いて鉱物組成を分析した。陶土については、さらに X 線透過式粒度分布測定装置（マイクロメリティックス製、SediGraph III PLUS）で粒度分布を測定した。

成形性については、セリサイトの配合効果を確認しやすい複雑な製品形状を選定し、伝統工芸士による手口口成形を実施して成形性を調査した。

焼成体特性を評価するため、木山脱鉄陶土と配合陶土の他、比較として天草撰上陶土について、排泥鑄込成形で 150 mm（長さ）×20 mm（幅）×6 mm（厚み）の長板状試料を作製し、素焼き後 SK10 還元焼成を行った。上記 3 種類の焼成後の試験体について、焼成呈色、透光性、焼成歪み、湾曲度、吸水率、焼成収縮、熱膨張を評価した。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 原料特性

原料(木山脱鉄陶石、土橋セリサイト)、スタンパー(はたき粉)、砂、珪の化学分析結果を表1に示す。原料に用いた木山脱鉄陶石の化学組成は  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  : 0.36%、 $\text{TiO}_2$  : 0.01%、 $\text{K}_2\text{O}$  : 2.71% で、鉄とチタンの含有量が少ない。また耐火度を低下させるカルシウムやナトリウムも含んでおらず、化学成分的には天草陶石の2等クラスの品質である。

配合用の副原料に用いた土橋セリサイトの化学組成は、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  : 0.05%、 $\text{TiO}_2$  : 0.09%、 $\text{K}_2\text{O}$  : 4.23% で、鉄の含有量が極めて少なく、カリウムの含有量が多い特長がある。また耐火度を低下させるカルシウムやナトリウムも少ない。一方、焼成後の白色度に影響を及ぼすチタンを脱鉄陶石の10倍近く含んでおり、副原料として使用する場合には添加量を考慮する必要がある。

原料である土橋セリサイト、木山脱鉄陶石、両者を配合してスタンプ粉碎した配合陶土(はたき粉)、製品となった木山脱鉄陶土、配合陶土の5試料について、化学分析値に基づいて陶磁器坯土の一般的な調合計算で用いられる長石(F)、カオリン(K)、石英(Q)の3種類の鉱物組成に分解するノルム解析を行った結果を表2に示す。土橋セリサイトは、木山脱鉄陶石に比べて石英成分が少なく、長石とカオリンの成分が多い原料であることがわかる。また、木山脱鉄陶石から木山脱鉄陶土に精製する過程で、石英成分が減少し長石成分とカオリン成分が増加していること、配合陶土(はたき粉)から配合陶土に

精製する過程でも、石英成分が減少し長石成分とカオリン成分が増加していることが示されており、特に配合陶土は長石成分とカオリン成分が最も多くなっている。

表3はさらに5試料を、長石、カオリン、石英に加え、セリサイトを加えた4種の鉱物でノルム解析を行った結果である。土橋セリサイトのノルムセリサイトが36%と、木山脱鉄陶石の1.5倍量に達しており、土橋セリサイトが計算上より多くのセリサイトを含有することが示唆された。

表2 原料及び陶土の3種類の鉱物によるノルム解析結果

試料名	長石 F	カオリン K	石英 Q
土橋セリサイト 特級	27%	30%	43%
木山脱鉄陶石	18%	27%	55%
木山脱鉄陶土 製品	23%	34%	43%
配合陶土 はたき粉	20%	27%	53%
配合陶土 製品	25%	36%	39%

表3 原料及び陶土の3種類の鉱物にセリサイトを加えたノルム解析結果

試料名	セリサイト S	長石 F	カオリン K	石英 Q
土橋セリサイト 特級	36%	1%	8%	55%
木山脱鉄陶石	23%	2%	13%	62%
木山脱鉄陶土 製品	29%	2%	17%	52%
配合陶土 はたき粉	25%	2%	12%	61%
配合陶土 製品	32%	2%	16%	50%

表1 化学分析結果

試料名		$\text{SiO}_2$	$\text{Al}_2\text{O}_3$	$\text{Fe}_2\text{O}_3$	$\text{TiO}_2$	CaO	MgO	Na <sub>2</sub> O	$\text{K}_2\text{O}$	Ig.loss	Total
土橋セリサイト	特級	74.51	17.50	0.05	0.09	0.12	0.02	0.09	4.23	2.72	99.33
木山脱鉄陶石		78.50	14.58	0.36	0.01	0.07	0.04	0.19	2.71	3.13	99.59
木山脱鉄陶土	砂	79.88	13.54	0.40	0.02	0.07	0.05	0.28	2.54	2.90	99.68
	珪	91.10	5.85	0.21	0.01	0.03	0.03	0.14	1.17	1.22	99.76
	製品	73.07	18.32	0.51	0.02	0.06	0.08	0.18	3.41	3.88	99.53
配合陶土	はたき粉	77.95	14.94	0.31	0.03	0.07	0.04	0.18	2.99	2.94	99.45
	砂	79.26	13.98	0.32	0.04	0.07	0.04	0.18	2.84	2.70	99.43
	珪	89.95	6.56	0.20	0.02	0.03	0.03	0.16	1.36	1.34	99.65
配合陶土	製品	71.73	19.38	0.42	0.04	0.06	0.08	0.16	3.84	3.91	99.62
天草陶石	2等	78.00	15.10	0.32	0.01	0.02	0.06	0.08	3.03	3.14	99.86

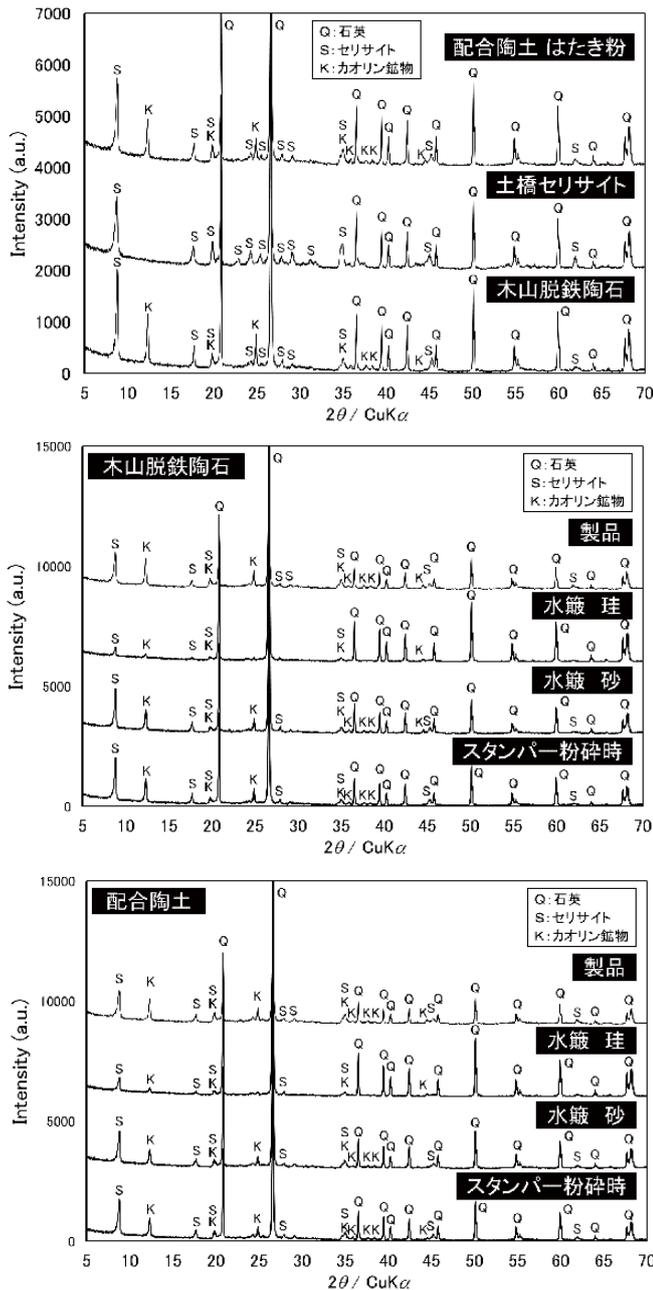


図1 X線回折パターン

X線回折パターン及び鉱物組成を図1に示す。

原料に用いた木山脱鉄陶石の鉱物組成は石英・セリサイト・カオリンからなり、長石や方解石などの耐火度を低下させる鉱物は含んでおらず、通常の高草陶石と違いはなかった。

配合用の副原料に用いた土橋セリサイトの鉱物組成は石英・セリサイトで、高草陶石のようなカオリンは含まれていなかった。

木山脱鉄陶土の鉱物組成は石英・セリサイト・カオリンからなり、その他の鉱物を含んでおらず、通常の高草陶土と違いはなかった。配合陶土の鉱物組

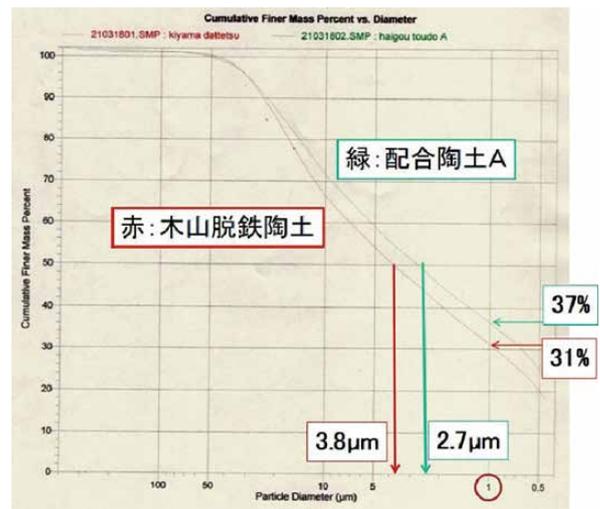


図2 木山脱鉄陶石及び配合陶土の粒度分布測定結果

成も同様に石英・セリサイト・カオリンからなり、X線回折パターンのピークの強度を比較しても木山脱鉄陶土と大きな違いは認められなかった。

図2に木山脱鉄陶石及び配合陶土の粒度分布測定結果を示す。陶土の平均的な粒子サイズを表す累積50%粒度(D50)は、木山脱鉄陶土: 3.8μmに対して配合陶土: 2.7μmで約1μm小さく、超微粒部分の割合を示す1μm以下の粒子の累積量は、木山脱鉄陶土: 31%に対して配合陶土: 37%であった。このことは土橋セリサイトの添加により、微粒領域でのセリサイトの量が増えたことを表しており、その配合効果が現れている。微粒セリサイトの増加は可塑性の向上につながることを期待される。

陶土メーカーに依頼し、通常の高草陶土と同じ工程で試作した配合陶土の真空土練土の荷姿を図3に示す。

### 3.2 成形性

図2に示したように、配合陶土はセリサイトの微粒子を多く含んでおり、木山脱鉄陶土よりも可塑性が向上していると考えられる。

図4に伝統工芸士による手口ろ成形品をSK10還元焼成した試作品の写真を示す。試作試験の結果、繊細な作業が可能であり、ホテル手のような細工物の製造や、陶芸愛好家向けの外販用陶土としても利用が期待できる。



図3 配合陶土の真空土練土の荷姿



図4 配合陶土による成形試験後焼成品

### 3.3 焼成体特性

焼成呈色と透光性は市販の天草撰上陶土を使用した磁器製品と同等レベルであった。

また、顕著な焼成歪みは認められなかったが、一部の製品で高台近くに巻きクラックの発生が認められた。成形時に発生したものか、焼成時に発生したものかは判断できなかった。

湾曲度、収縮率、吸水率、線膨張係数の結果を表4に示す。配合陶土は湾曲度が小さく、天草陶土よりも焼成腰が強いことが示されている。焼成腰が強いと焼き曲がりやが抑制されるので、器物の厚みを薄くすることができ、重量が軽い製品の製造への応用が期待できる。

## 4. まとめ

本研究では、脱鉄陶土への可塑性付与を目的に、試作した土橋セリサイト配合陶土の各種特性を評価

表4 試作陶土の焼成体特性

試料名	湾曲度 (%)	収縮率(%)			吸水率 (%)	線膨張 係数 ( $\times 10^{-6}$ )
		乾燥 収縮	焼成 収縮	全収縮		
天草撰上陶土	28.5	3.4	8.1	11.3	0.07	8.06
木山脱鉄陶土	27.1	3.3	8.6	11.6	0.05	7.71
配合陶土	26.1	3.2	7.9	10.8	0.05	7.21

し、以下の知見を得た。

- (1) 木山脱鉄陶石は、鉄とチタンの含有量が少なく、耐火度を低下させるカルシウムやナトリウムも含まれておらず、化学成分的には「天草2等石」クラスの品質であった。
- (2) 土橋セリサイトは、鉄の含有量が極めて少ないが、焼成後の白色度に影響を及ぼすチタンが脱鉄陶石の10倍近く含まれていた。
- (3) ノルム解析の結果、土橋セリサイトはノルムセリサイト含有量が36%で木山脱鉄陶石の1.5倍量含まれていた。
- (4) 木山脱鉄陶石の鉱物組成は石英・セリサイト・カオリンからなる一方、土橋セリサイトは石英・セリサイトからなっており、天草陶石のようなカオリンは含まれていなかった。
- (5) 累積50%粒度(D50)は、木山脱鉄陶土:  $3.8\mu\text{m}$  に対して配合陶土:  $2.7\mu\text{m}$  で約  $1\mu\text{m}$  小さく、 $1\mu\text{m}$  以下の粒子の累積量は、木山脱鉄陶土: 31% に対して配合陶土: 37% であった。
- (6) 配合陶土はセリサイト微粒子を多く含み、木山脱鉄陶土よりも可塑性が向上したため、ホタル手のような細工物の製造や、陶芸愛好家向けの外販用陶土としての利用が期待できる。
- (7) 焼成呈色と透光性は市販の天草撰上陶土を使用した磁器製品と同等レベルで、顕著な焼成歪みも認められなかった。
- (8) 配合陶土は天草陶土よりも焼成腰が強いことから、器物の厚みを薄くでき、製品の軽量化への応用が期待できる。

## 謝 辞

本研究を実施するにあたり、波佐見陶磁器工業協同組合、肥前陶土工業協同組合、及び関係者の皆様に深く感謝いたします。

## 文 献

- 1) 吉田英樹, 稲尾恭敬, 長崎県窯業技術センター研究報告, No.67, p19-22 (2019).