

— 経常研究 —

非可塑性無機素材を用いた多様な形状をもつ多孔体の成形技術開発 (その1)

環境・機能材料科 浦郷 寛康、高松 宏行

要約

非可塑性無機原料を用いた多孔質セラミックスの新たな成形技術として、機械ろくろおよびローラー成形の適用性を検討した。機械ろくろでは、成形性に優れる有機系バインダーの有効性に加え、細粒骨材を用いることで成形体表面に優れた意匠性が得られることを確認した。吸水率は骨材粒径と結合材配合量により制御可能であった。ローラー成形では改良型装置を用いることで、大型平板の量産に適した成形をはじめとする製造条件が整備された。

キーワード：非可塑性、機械ろくろ、ローラー成形、多孔質セラミックス、バインダー

1. はじめに

県内の陶磁器産地は、これまで陶磁器製品（和飲食器）を中心に発展してきたが、近年、陶磁器和食器の出荷額は低迷しており、産地の売上拡大には食器以外の新たな分野への参入が求められている。こうした状況のもと、当センターが注目したのが、多孔質セラミックス（以下、多孔体）と呼ばれる機能性無機素材である。多孔体は、無機原料粒子間に形成される気孔をもつ陶磁器素材であり、軽量性、吸着性、吸湿性、断熱性といった多様な機能を発現する。これにより、軽量建材や吸湿タイル、断熱材など、食器以外の多様な用途が考えられる。また、多孔体は耐熱性や耐薬品性にも優れており、過酷な熱・化学環境下での使用など、工業用途としても有望である。

当センターではこれまでに、珪砂や陶磁器くず（以下、セルベン）などの非可塑性無機素材を用いたコースターや植栽鉢などの多孔体を試作しており、これらは高い吸水性や透水性を示すことが確認されている¹⁾。県内企業においても、こう

した多孔体への関心が高まりつつあり、製品化に対する要望が増加している。しかしながら、多孔体の製造には、珪砂やセルベンなどの非可塑性無機素材が用いられており、これらの原料は天草陶石のような可塑性を持たないため、成形時には可塑性を補う成形助剤の添加による坏土調製が必要である。現在は、この坏土を手作業による押し固めや単純なプレス成形など、効率が低く、形状も限定された手法に頼っており、生産性の面でも課題がある。

本研究では、非可塑性の無機素材を用いながらも、高い生産性と多様な形状を実現する成形技術の確立を目的とする。可塑性等を付与する成形助剤を活用した坏土設計と、機械ろくろ成形およびローラー成形の適用性について検討し、県内企業での製品化が可能となる成形技術の実現を目指す。本稿では、小型平板形状や意匠的要素を付与可能な機械ろくろ成形、および大型平板形状の量産に適したローラー成形に焦点を当て、その有効性を評価した。

2. 研究内容

2.1 機械ろくろによる多様形状成形及び評価

原料には、セルベン(粒径:<106 μ m、106-300 μ m、106-500 μ m、300-500 μ m)を骨材として使用し、無機系結合材として長石系原料 A を配合した。配合条件は、長石系原料 A の割合が多いものを「条件 I」、少ないものを「条件 II」とした。可塑性付与のため、有機系バインダー a、b、c、d および水を配合した。各原料は袋内で均一に乾式混合した後、加水量をそれぞれの坏土の触感が同程度となるまで段階的に調整しながら混練した。

調製した坏土は、多様形状に対応できるよう改良した専用機械ろくろ成形装置に投入し、金属製のヘラにより上方から圧縮して直径 120 mm×厚さ 10 mm の円板状に成形した。また、装置には線幅 2 mm 程度の模様(英字ロゴ)を施した意匠型を組み込み、成形体表面に模様を付与した。成形中は、露出表面に少量の水滴を散布し、表面平滑化を図った。

成形品のキレの状態(成形性)、模様の再現性(意匠)を、○、△、×による定性評価にて記録した。

成形品は 100℃で約 1 h 予備乾燥後、脱型し、自然乾燥によって残留水分を除去した。乾燥体は電気炉にて 1200℃、1 h 保持の酸化焼成を行った。

焼成後試料の吸水率 (W_A) は、乾燥重量 W_{dry} と飽水重量 W_{sat} を測定し、 $W_A(\%) = (W_{sat} - W_{dry}) / W_{dry} \times 100$ により算出した。

2.2 ローラー成形による大型平板形状の試作

骨材には非可塑性の無機素材(詳細非公開)を用い、無機系結合材として長石系原料 A を使用した。骨材と長石系結合材については、あらかじめ適正な配合比にて調整したうえで、有機系バインダー 3 mass% および水分約 38 mass% を外割りで添加した。混練工程においては、ニー

ダー混練機(入江商会製、PNV-5H)を使用し、骨材・結合材・有機系バインダーを 5 min 乾式混合した後、水を 6 回に分割して段階的に加水し、湿式混練を行った。

得られた坏土は、菊練りにより脱気および均質化を行い、一塊に整えたのち、既存のローラー成形機(橘鉄工所(たちばなろくろ)製)に、本実験用に設計・作製した改良型ローラー成形装置に設置した。ローラー成形により、坏土を引き延ばすことで、約 510 mm×410 mm×10 mm の板状成形体を得た。

成形後にはドライヤーを用いて表面の余剰水分を飛ばし、次に石膏ボード上に成形体を裏返して(乾燥面を下面に)配置し、除湿乾燥機内にて 50℃で約 24 h 乾燥させた。十分に乾燥された成形体は電気炉を用いて 1200℃、1 h 保持の酸化焼成を行った。

3. 結果と考察

3.1 機械ろくろ成形による成形性の評価

表 1 には、セルベン粒子径の違い(<106 μ m、106-300 μ m、106-500 μ m、300-500 μ m)、有機系バインダー種(a、b、c、d)、配合量(4~5 mass%)、および水分量(35~45 mass%)の違いが、成形性および意匠性に与える影響を示す。

成形性は、配合条件 I・II において、粒子径が大きい粗粒試料(>106 μ m)の方が、良好な成形性(○評価)を示す傾向が確認された(A3,5,6,8,9、B2,3,5,6,9)。一方で、粒子径の小さい細粒試料(<106 μ m)では、△評価が多く見られた(A1,4、B1,4,7)。細粒では、粒子径が小さいことで比表面積が大きくなり、同じ水分量でも水分が不足しやすく、塑性が低下したことが原因と考えられる。成形時には、十分な水分がないと、ろくろ成形中のせん断により坏土が切れやすく、原料同士が再付着するような現象が起こりにくくなり、滑らかに成形できなかった可能性がある。一方、粗粒(>106 μ m)では水分量が相

表 1 試料の組成及び条件と評価結果一覧

試料No.	条件					評価結果	
	セルベンの 粒子径 (μm)	結合材の 配合区分	有機系 バイン ダー種	有機系バ インダー 配合量 (mass%)	水分 (mass%)	成形性 (キレ)	意匠性 (模様 再現)
A1	< 106	条件 I	a	5	45	△	○
A2	106 - 300	条件 I	a	5	45	△	○
A3	300 - 500	条件 I	a	5	45	○	△
A4	< 106	条件 I	b	5	40	△	○
A5	106 - 300	条件 I	b	5	35	○	○
A6	300 - 500	条件 I	b	5	35	○	○
A7	< 106	条件 I	c	5	45	○	○
A8	106 - 300	条件 I	c	5	45	○	○
A9	300 - 500	条件 I	c	5	45	○	△
B1	< 106	条件 II	a	5	45	△	○
B2	106 - 300	条件 II	a	5	45	○	○
B3	100 - 500	条件 II	a	5	45	○	○
B4	< 106	条件 II	b	4	40	△	○
B5	106 - 300	条件 II	b	4	37	○	○
B6	100 - 500	条件 II	b	4	36	○	○
B7	< 106	条件 II	d	4	40	△	○
B8	106 - 300	条件 II	d	5	40	×	△
B9	100 - 500	条件 II	d	5	45	○	△

【成形性】

- : 端部に割れ等の欠陥がなく成形できている
- △: 端部に割れや剥離あり。坏土が伸びにくい
- ×: 成形時に割れが多発。塑性不足。

【意匠性】

- : 模様(アルファベット)が鮮明に転写
- △: 模様の一部が不鮮明な箇所がある
- ×: 模様が認識困難。

対的に適正またはやや多く、流動性や可塑性が良好で、原料の型に対する充填性も良好だったものと考えられる。また、有機系バインダーによる違いにおいては、特にバインダーc(A7,8,9)は全体として成形性が安定しており、適切な水分量であったことが示唆される。逆に、バインダーd(B7,8,9)はやや扱いにくい配合であり、水分量が適切でないものと考えられる。以上より、たとえ坏土を同程度の触感に調整しても、粒子径と水分量、有機系バインダー種の組み合わせによって成形性に大きく影響することが明らかとなった。

3.2 意匠性(模様再現性)の評価

意匠性は、成形体表面の滑らかさや模様(英字ロゴ)の再現性をもとに評価した(図1)。表1に

示すように、細粒(<106μm)が最も○評価が多く、良好な傾向が見られた(A1,4,7、B1,4,7)。これは、細粒粉体が模様の凹凸により均一に充填されやすく、模様のエッジがくっきりと再現されたためと推察される。一方、中粒(106-300μm)および粗粒(300-500μm、106-500μm)では、粒子が粗く隙間が大きいため、表面仕上がりや模様の細部が再現されにくく、欠けが生じやすい傾向が見られた。有機系バインダーa および b を用いた条件では、比較的高い意匠性が得られた。これらの有機系バインダーは、添加量が 4~5mass%の条件下において、表面の凹凸が少なく、均一な模様を保持できたことから、粘着性や表面流動性に優れていたと考えられる。以上よ

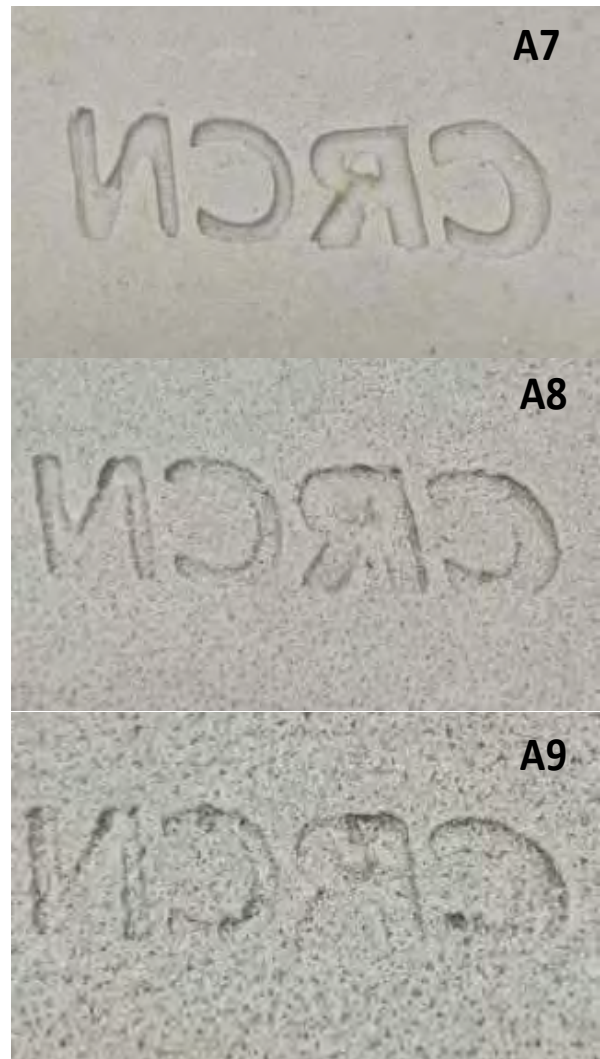


図 1 各粒径における意匠性(模様の再現性)の一例(写真は焼成後の外観)

り、意匠性の観点では、細粒($<106\mu\text{m}$)系と適切な有機系バインダー及び水分との組み合わせが最も有利である。

3.3 焼成体の吸水率評価

焼成体の吸水率を図2(I群)および図3(II群)に示す。吸水率は、骨材粒径と長石系結合材の配合量により大きく異なった。細粒($<106\mu\text{m}$)では、結合材の量にかかわらず吸水率が低く(I群で0.1~0.6%、II群で9~10%)、これは細粒による緻密な気孔構造と結合材による気孔の閉塞が原因と考えられる。一方、粗粒($300\sim 500\mu\text{m}$ 、 $106\sim 500\mu\text{m}$)では気孔が多く形成され、特に結合材量の少ないII群で吸

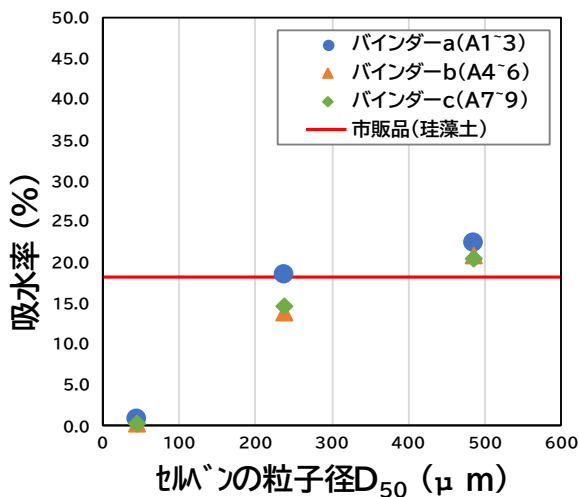


図2 配合条件Iにおける焼成体の吸水率

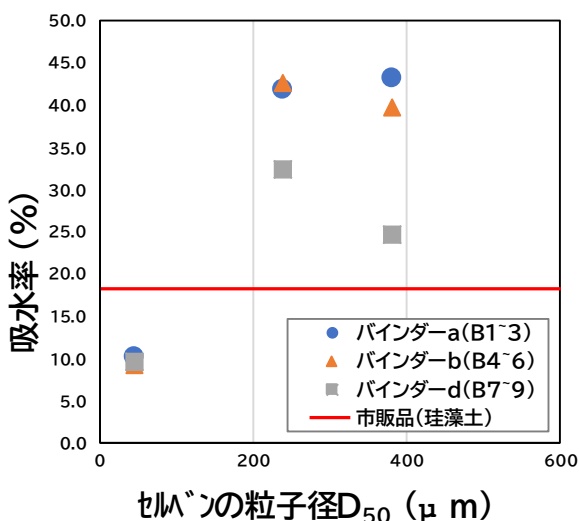


図3 配合条件IIにおける焼成体の吸水率

水率が25~43%と高くなった。市販品の珪藻土製コースター(吸水率18.2%)と比較すると、I群(長石系結合材が多い)よりも、II群(長石系結合材が少ない)の方が、全体的に吸水率が高くなる傾向が見られた。特にII群では、粗粒($106\sim 500\mu\text{m}$)よりも中粒($106\sim 300\mu\text{m}$)の方が高い吸水率を示した。これは、中粒径領域において、結合材が気孔をふさぐことなく均一に分布し、かつ結合材の量が適切であったため、粒子間で形成する気孔量が増大し、より効果的に吸水性を発現したことが要因と考えられる。このことから、骨材粒径と結合材量の組み合わせにより、吸水性の制御が可能であることが確認できた。特に、結合材の配合割合が少ないII群の中粒($106\sim 300\mu\text{m}$)および粗粒($106\sim 500\mu\text{m}$)の配合では、吸水率が高くなる傾向が確認され、高吸水性が求められる用途に適しているものと考えられる。

3.4 ローラー成形における試作条件の適用

本実験においては、非可塑性の骨材に無機系結合材(長石系原料A)および有機系バインダーを添加し、段階的な加水による混練、成形を行った。得られた坯土は、菊練りによる均質化後、改良型ローラー成形装置を用いて成形した。

成形時における引き延ばし工程では、坯土の良好な可塑性により、所定の寸法(約 $510\text{mm}\times 410\text{mm}\times 10\text{mm}$)を得ることができた。乾燥工程では、成形体の反り、割れなどの重大な欠陥は確認されず、加熱乾燥条件(50℃ 、 24h)により、均一な水分除去がなされた。焼成工程(1200℃ 、 1h)においても、明らかな変形やクラックの発生は見られず、成形から焼成までの一連の条件が、骨材と長石系結合材、有機系バインダーの組み合わせにおいて実用的であることが示唆された。

なお、本実験の目的は、骨材と長石系結合材を主体とした大型の平板成形体の基礎的な成形・焼成条件の検証にあり、現時点では物性評価(気孔率、強度など)は未実施である。

今後は焼成体の気孔率や機械的強度などの物性を評価することで、より詳細な適正配合条件の把握が可能になると考えられる。

3) 長崎県窯業技術センター研究報告、No.71、10-14(2023)。

4. まとめ

本研究では、非可塑性原料に適応可能な新たな成形技術の確立を目的として、機械ろくろ成形およびローラー成形について検討し、以下の知見を得た。

- (1) 機械ろくろ成形においては、改良した機械ろくろ成形装置を用いて、小型の平板形状を高い生産性で成形可能であることを確認した。また、成形体表面に意匠性(模様やロゴ等)を付与することができる点でも有効であり、多様形状製品の成形技術としての適用性が示された。
- (2) 焼成体の吸水率は、骨材粒径と長石系結合材の配合量の影響を大きく受けた。特に、中粒骨材(106-300 μ m)と低結合材(Ⅱ群)の組み合わせでは、適切な気孔構造が形成され、高い吸水率が得られた。これにより、多孔体の吸水特性を設計可能であることを確認できた。
- (3) ローラー成形においては、専用成形装置を用いて、非可塑性の骨材と長石系結合材を含む坏土を板状(約 510×410×10 mm)に成形ができた。乾燥および焼成工程においても、著しい反りや亀裂は生じず、工程条件は概ね良好であった。

以上により、機械ろくろ・ローラー成形の双方に適合する坏土設計と成形工程の方向性を見出した。今後は、成形工程の再現性の確認や得られた焼成体の物性評価を通じて、配合条件の最適化を図る。

文 献

- 1) 浦郷寛康、高松宏行、秋月俊彦、陶磁器関連製造技術を活用した多孔質素材の開発(その1)