

—経常研究—

# 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1)

陶磁器科 吉田 英樹、稻尾 恭敬

## 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、天草陶土、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、新たに開発する陶磁器素材の仕様決定の指標とするため、現在流通している天草陶土について物性評価（鉱物組成、化学組成、粒度分布、焼成呈色）を実施した。その結果、次のことがわかった。1) 陶土の鉄含有量は、特上陶土が0.45%以下、撰上陶土が約0.45～0.55%、撰中陶土が0.55～0.8%、撰下陶土が1%以上の範囲にあった。2) 粒度分布は、平均のメディアン径が7.72μmで、主に3つの分布の組合せであった。3) 焼成呈色の指標に用いた明度L\*値は、鉄含有量の増加に比例して低下した。

キーワード：可塑性原料、天草陶石、脱鉄陶石、天草陶土、物性評価

## 1. はじめに

本県の代表的な陶磁器産地である波佐見焼と三川内焼は、熊本県の天草地方で産出する天草陶石を主要原料としている。天草陶石は、鉄含有量の少ないものから特等、一等、二等、三等、四等と等級分けされているが、近年は特等から二等の鉄分の少ない良質な陶石の産出が大きく減少しているのが現状である。そのため、図1に示すように鉄分が多くその

ままでは使用できない四等以下の低品位陶石を塩酸処理して特等から一等並みに鉄分を低下させる技術が確立され<sup>1)</sup>、脱鉄陶石として利用されるようになっている。しかし、脱鉄陶石は塩酸処理に起因すると思われる可塑性低下の懸念もあり、天草陶土の原料として主体的には使用されていないのが現状である。

一方、天草陶石を粉碎、水簸して調製された天草陶土にも、やはり鉄含有量の少ないものから特上、撰上、撰中、撰下という等級があり、特に生産数量が多い波佐見焼産地では比較的低コストな撰中陶土の需要が高い。しかし、等級ごとの鉄含有量の基準は明確には定められておらず、各陶土メーカーの判断に委ねられているのが現状となっている。

以上のことから、今後低品位の天草陶石を活用しながら、十分な可塑性を有し品質が安定した天草陶土の供給体制を構築することは喫緊の課題である。

そこで本研究では、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



図1 塩酸処理による低品位陶石の色の変化  
(左：処理前 右：処理後の脱鉄陶石)

(天草陶石、天草陶土、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。

本年度の研究では、新たに開発する陶磁器素材の仕様決定の指標とするため、現在流通している天草陶土の物性評価を実施したので報告する。

## 2. 実験方法

陶土は、長崎県内1社、佐賀県塩田地区7社の陶土メーカーから天草陶石立てや配合調製されたものなど20種の製品を取り寄せ、鉱物組成、化学組成、粒度及び焼成呈色の評価を実施した。なお、本報告では天草陶石立ての天草陶土8種について報告する。

いずれの試料も110°Cで10時間以上、恒量になるまで乾燥後、自動乳鉢で十分に解碎したものを評価に供した。

鉱物組成の同定には粉末X線回折装置（スペクトリス製 Empyrean）を用いた。成分分析には蛍光X線分析装置（スペクトリス製 Zetium）を用い、FP法による簡易定量を行った。粒度分布測定にはレーザー回折式粒度分布測定装置（マルバーン製 Mastersizer 3000）を用いて、湿式法により測定した。

焼成呈色の評価は、乾燥粉体をハンドプレス機で直径20mm、高さ10mmの円板状に成形した試料を、電気炉で1250°C焼成したのち、分光測色計（ミノルタ製 CM-3700d）で色の明度を示すL\*値を測定することにより行った。

## 3. 結 果

### 3.1 鉱物組成

粉末X線回折測定結果の一例を図2に示す。

この天草陶土に含まれる鉱物は、石英、カオリナイト、セリサイトであった。他の天草陶土についても、ピーク強度比に違いはあるものの含まれる鉱物はほぼ同様であった。

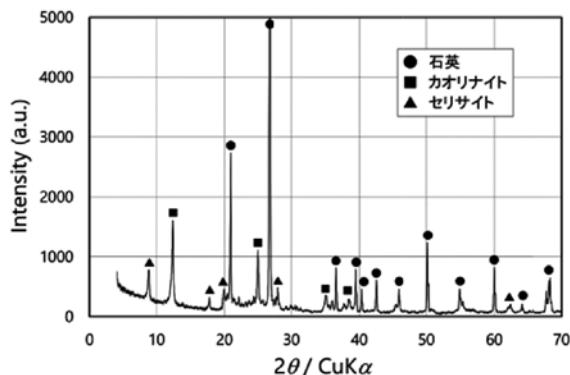


図2 天草陶土の粉末X線回折測定結果の一例

### 3.2 化学組成

特上、撰上、撰中及び撰下陶土の蛍光X線分析による簡易定量分析の結果を表1に示す。

陶土の等級に関係のある鉄含有量に着目すると、特上陶土は0.45%以下、撰上陶土は約0.45～0.55%、撰中陶土は0.55～0.8%、撰下陶土は1%以上の範囲にそれぞれ鉄含有量があることがわかった。

表1 市販天草陶土の簡易定量分析結果(単位:wt%)

試料名	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	CaO	MgO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O
特上1	76.3	18.0	0.43	0.01	0.07	0.09	0.09	3.84
撰上1	78.5	16.4	0.47	0.02	0.06	0.06	0.20	3.31
撰上2	75.3	18.9	0.53	0.05	0.09	0.07	0.35	3.26
撰中1	77.2	17.4	0.58	0.02	0.08	0.08	0.15	3.30
撰中2	74.3	20.0	0.60	0.19	0.12	0.47	0.67	2.23
撰中3	76.8	17.9	0.73	0.05	0.10	0.08	0.22	3.12
撰下1	75.5	18.6	1.05	0.08	0.10	0.08	0.16	3.10
撰下2	73.4	20.2	1.32	0.12	0.17	0.11	1.20	2.49

### 3.3 粒度分布

粒度分布測定結果の一例を図3に示す。積算分布(ふるい下)の解析結果から、この陶土のメティアン径(50%径)は6.72μm、10%径は2.20μm、90%径は29.1μmであった。他の天草陶土の解析結果を表2に示す。平均値は、10%径が2.31μm、50%径が7.72μm、90%径が31.6μmであった。また、水簸工程の効果により、粒度の最大径はいずれも90μm以下となっていた。

一方、図3中のヒストグラムの結果を見ると、全体として左右対称なガウス分布とはなっておらず、24μm、4.5μm、0.65μm付近を中心とする3つの分布の組合せからなっていた。これは、他のメーカー

表2 市販天草陶土の粒度分布解析結果(単位:μm)

試料名	10%径	50%径	90%径
特上1	2.36	8.09	37.2
撰上1	2.19	7.97	33.6
撰上2	2.20	6.72	29.1
撰中1	2.57	8.07	29.5
撰中2	2.50	9.37	32.8
撰中3	2.16	6.95	30.0
撰下1	2.24	6.77	25.3
撰下2	2.22	7.81	34.9

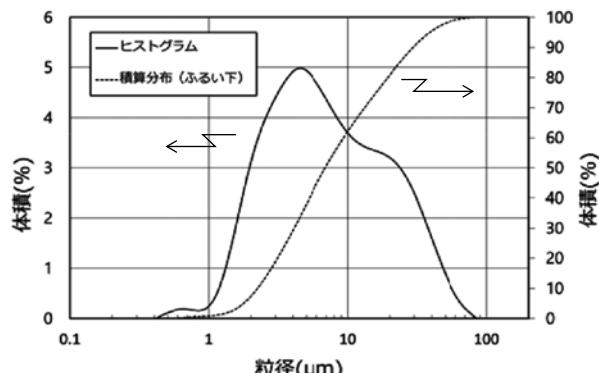


図3 粒度分布測定結果

表3 各試料の焼成呈色、L\*値及び鉄含有量

試料名	外観	L*値	鉄含有量 (質量%)
特上1		93.7	0.43
撰上1		92.3	0.47
撰上2		91.4	0.53
撰中1		91.3	0.58
撰中2		90.2	0.60
撰中3		88.2	0.73
撰下1		83.7	1.05
撰下2		76.7	1.32

の陶土でも同様の傾向を示しており、スタンパー粉砕した天草陶土に特有の粒度分布パターンと考えられる。

### 3.4 焼成呈色

1250°C 焼成した試料の外観と L\* 値及び簡易定量分析で得られた鉄含有量を表3に、また鉄含有量を横軸、L\* 値を横軸にとったグラフを図4に示す。

鉄含有量が減少するに従って焼成呈色は白さが増していた。この白さを数値化した L\* 値との関係でも、図4中の破線で示す近似線からもわかるように、鉄含有量が増加するにしたがって L\* 値が低くなり、ほぼ比例関係にあることがわかった。

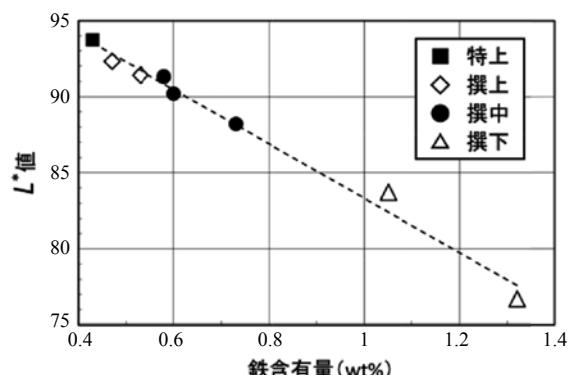


図4 焼成した陶土の鉄含有量と L\* 値の関係

#### 4. まとめ

新たに開発する陶磁器素材の仕様決定の指標とするため、現在流通している天草陶土について物性評価を実施し、以下のことが明らかとなった。

- 1) 陶土の鉄含有量は、特上陶土が 0.45% 以下、撰上陶土が約 0.45～0.55%、撰中陶土が 0.55～0.8%、撰下陶土が 1% 以上の範囲にあることがわかった。
- 2) 粒度分布は、平均のメディアン径が 7.72 $\mu\text{m}$ で、主に3つの分布の組合せからなることがわかった。
- 3) 焼成呈色の指標に用いた明度  $L^*$  値は、鉄含有量の増加に比例して低下することがわかった。
- 4) 今後さらに調査件数を増やすとともに、特に鉄含有量と可塑性を基本に指標を探索し、新陶土の開発に向けて仕様を決定する。

#### 文 献

- 1) 関 秀哉, 天草陶石の脱鉄, セラミックス, Vol.29, No.7, p577-578 (1994).