陶磁器用粘土練土の圧縮変形

伴野 巧・佐野三郎・小田喜一・芝崎靖雄

名古屋工業技術研究所セラミックス応用部, 462 愛知県名古屋市北区平手町 1-1

Compression Deformation of Clay Green Body for Traditional Ceramics

Takumi BANNO, Saburo SANO, Kiichi ODA and Yasuo SHIBASAKI

National Industrial Research Institute of Nagoya, 1-1, Hirate-cho, Kita-ku, Nagoya-shi 462

A uniaxial compression test was carried out to investigate deformation behavior of clay green body for wet-pressing. Green bodies containing 25–35 mass% water were prepared from Hara gairome clay and distilled water. The samples were formed into column having various dimensions ($20\text{ mm}\phi \times 30\text{ mmh}$, $20\text{ mm}\phi \times 15\text{ mmh}$, $20\text{ mm}\phi \times 10\text{ mmh}$, $33\text{ mm}\phi \times 10\text{ mmh}$) and were largely deformed by compression under a compression rate of $1.0\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$. When the stress-strain curves were converted to the stress-diameter/height curves according to the plastic deformation theory, the yield points and the linear relationships between stress and diameter/height were observed, which were well represented by a plastic deformation equation of uniaxial compression under full-surface-sticking, since the ratio of the slope of the line over the yield point were close to 0.19. The yield points increased with decreasing water content. The sticking was due to the adhesion between the steel die and the samples. In conclusion, it is found that the compression deformation of clay green body can be well characterized by using a uniaxial compression test.

[Received July 4, 1996; Accepted September 19, 1996]

Key-words : Uniaxial compression, Clay, Plastic deformation, Yield point, Water content, Sticking, Stress-strain

1. 緒 言

陶磁器製造に使用される天然原料を混合した坏土練土は、可塑性を有し、さまざまな形状物を容易に作製できる。練土の変形特性や物性の発現因子を解明し、この技術をファインセラミックス粉体に適用して可塑性の良いファインセラミックス粉体の練土を作製できれば、複雑な形状のファインセラミックスを安価に製造することができる。

練土の変形特性はレオロジーの面から研究されており、その結果をもとに、練土の変形挙動を表現する粘弾性モデルが提唱されている^{1)~3)}。しかし、これらの研究は個々の現象を対象にしており、圧縮、引張り、ねじり等すべての現象に対してモデルを統一的に扱った研究はほとんど行われていない。更に、これらの研究では試験片に亀裂が発生するまでを対象にすることが多いが、実際の陶磁器の成形過程では「こねる」といった操作でも分かるように変形、破断、接着が連続的に発生していると考えられる。それゆえ、実際の成形過程に対応できる破断、接着を考慮した変形特性を明らかにすることが必要である。

粘土系材料の研究としては、金属材料の塑性加工の分野で、モデル材料として Plasticine という油粘土を使った研究が行われている。Plasticine は熱間での金属材料の変形特性に似た性質を有すると報告されている^{4),5)}。ところが、陶磁器用の坏土練土については製造法を想定した試験で力学的挙動を取り扱った研究は少なく、それは、製造工程において理論的に解明すべき問題が少なかったためであると考えられる。今後、成形の効率化、成形品の精度向上のためには、成形メカニズムの把握に対する理論的裏付けが重要となってくる。しかし、練土は変形試験を行ううえでいくつかの難点を有する。一つは練土に含まれる水分である。練土は水分がその変形特性に大きく作用するため、同一材料による試験が困難である。それゆえ成形法に適した水分を得るために Pfeifferkorn 試験等の経験に基づいた試験法が存在する⁶⁾。また別の難点として、練土の軟らかさ、粘着性が挙げられる。この性質のため練土で薄肉試験片を作製

するのは容易でなく、更に、変形試験において、試験片を固定したり拘束することが困難である。以上のようなことから、陶磁器用坏土の練土に対する変形特性試験法の体系化はあまり進んでいないのが現状である。

本研究ではプレス成形中における練土の変形挙動を解明するために、陶磁器製造に使用される天然粘土の練土の圧縮試験を行った。そして、変形特性に及ぼす練土の水分の影響を調べ、亀裂発生後を含めた大変形における練土の変形特性及び練土-工具間にはたらく変形抵抗について、また練土の変形特性の評価法としての圧縮試験法について検討した結果を報告する。

2. 実験方法

材料として陶磁器用坏土に用いられる原料の一つである原がいろめ粘土（愛知県瀬戸産）を使用した。練土は、固形分20 mass%程度の原がいろめ粘土粉体と蒸留水からなる泥しょうを約16h かくはん後、遠心分離器を用いた固液分離により余剰水分を除去して調製した。更に手で混練し、練土に含まれる水分を調整した。試験片は材料を金属製円筒型へ挿入し、両端面をナイロン糸で切断して作製した。本研究では水分30 mass%付近の練土での試験を行った。一軸圧縮試験には万能試験機（島津製作所製、AG-500D）を用いた。試験片の幾何学的形状は、圧縮前の形状が $\phi 20 \times 30$, $\phi 20 \times 15$, $\phi 20 \times 10$, $\phi 33 \times 10\text{ mm}$ のものを用いた。圧縮試験は圧縮速度一定 ($1.0\text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$) で、初期の高さの30%になるまで圧縮した。試験中の圧縮量と荷重の測定値をコンピューターに取り込んだ。練土に大変形を加えた場合、変形終了後のひずみ回復量は総変形量に対して非常に小さいことから、図1に示すようにひずみは対数ひずみを用い、圧縮方向を正として算出した。また応力は試験片が体積一定で円柱形状を維持するとして算出した。外形の変化はノギスを使用して測定した。また、温度の影響を避けるため圧縮試験は室温25°C、湿度50%の恒温恒湿室内で実施した。練土の水分は試験終了後に試験片の一部を105°Cで乾燥し、そのときの重量減少から求めた。

Fig. 1. Calculation of strain and stress.

3. 実験結果及び考察

3.1 応力-ひずみ関係

図2は圧縮前の形状がφ20×10 mmの試験片を圧縮速度1.0 mm・s⁻¹で高さ3 mmになるまで圧縮したときの応力-ひずみ曲線である。圧縮開始点とひずみの零点のずれは圧縮前の試験片高さが不均一なためである。土の一軸圧縮試験方法(JIS A 1216)では公称ひずみを用いた作図的な原点修正方法を示しているが、ここでは試験片作製時に設定した寸法を基準としてひずみを計算し、原点修正は行わなかった。この図から、水分が低い練土ほど応力が大きく、それにもかかわらず数 mass%の違いで大きく変化しており、水分が練土の変形特性に与える影響が大きいことが分かる。

梅屋⁷⁾によれば粉体と水の混合系は、粉体に対する水の量によって、粉体系、泥土系、泥しょう系と大きく分けられる。本研究での水分の領域(30 mass%付近)は泥土系に属し、図2の各応力-ひずみ曲線における応力増加は同様の傾向を示している。ただし、泥しょう系では流動性が増し形状を維持できず、また粉体系では連続体的扱いが困難になり、泥土系とは異なった性質を示すため、水分30 mass%付近の変形挙動がすべての水分域(0~100 mass%)で成立するものではない。厳密に言えば、泥土系においても、わずかな水分の違いが、練土の変形挙動に影響を与えることが考えられるが、同一水分の試験片作製が困難であるため、泥土系の性質を示す水分30 mass%付近の練土では、同一の変形モデルや構成式が成立するものとして

Fig. 2. Stress-strain curves of green bodies of Hara gairome clay.

考察を行った。応力はひずみの増加に対し、増加-停滞-増加の曲線を示し、全体を通しては増加の傾向を示した。応力は最終的に停滞時の2倍程度の値まで増加した。この応力増加は、変形中の材料硬化の影響も考えられるが、練土の調製時に混練作業があることから、材料が変形初期の2倍も硬化するとは考えにくい。つまり実験中に測定された荷重は材料の変形に要した力だけでなく、試験に使用した圧縮板と材料間の摩擦等の変形抵抗も含んでいると思われる。そのため接触面積が増加する圧縮工程後半において応力が計算上大きくなったと推察される。

3.2 原がいろめ粘土練土の変形特性

圧縮試験中は試験片の側面に亀裂が見られ、亀裂により材料中に不連続面が生成していることが考えられる。しかし、亀裂発生後に応力は増加していること、試験終了後に上下の圧縮板は練土により接着されることから、試験片側面では亀裂が観察されるものの、試験片内部までは亀裂が進展しない、あるいはいったん亀裂が入った後再び圧力により接着された状態で変形が進行していると考えられる。

試験片は圧縮により初期の円柱形状から樽型へと変形していく現象を示す。これは前述の圧縮板と試験片間に働く変形抵抗に起因するものである。しかし、試験片と圧縮板の間でのすべりや、圧縮板に接した試験片側面が巻き込まれて圧縮板との接触面になることにより、外見上、極端な樽型にはなっていない。そこで、試験片の圧縮板との接触面での直径と試験片中央部での直径を測定し、その比を図3に示した。試験片は亀裂を有することから厳密な測定ではないが、その比は1.0を大きくはずれた値ではなく、試験片の圧縮軸に垂直な面の断面積の分布は小さかったので、以後の計算においては円柱形状を維持するものと仮定し応力計算等を行った。

レオロジーの分野において、材料の変形はばね(弾性成分)、ダッシュポット(粘性成分)、スライダー(塑性成分)の3要素を組み合わせたモデルにより表現されることが多い。本研究の圧縮試験は、数十s程度で変形の終了する速い速度制御型の試験である。また大変形を伴うものである。変形試験では、材料は変形により硬化等の変形特性の変化を生じることが考えられるが、本試験に用いた練土は調製時に混練されていることから、大変形を受けた後の変形特性を保持している均質な材料として取り扱った。練土を均質な連続体の物質としてとらえた場合、練土の変形特性が前述の3要素の組み合わせで表されると仮定すれば、本研究における変形挙動の主成分は塑性成分に

Fig. 3. Ratio of maximum diameter to minimum diameter of the sample during the compression test.

Fig. 4. Stress-aspect ratio (diameter/height) curves at a compression rate of $1.0 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$ for various initial sample sizes; $20 \text{ mm}\phi \times 30 \text{ mm}h$, $20 \text{ mm}\phi \times 15 \text{ mm}h$, $20 \text{ mm}\phi \times 10 \text{ mm}h$ and $33 \text{ mm}\phi \times 10 \text{ mm}h$.

よって引き起こされると考えられる。そこで、代表的な塑性材料である金属材料に対して用いられている構成式を用いることとした。また、構成式には樽型変形を考慮して、圧縮板と試験片間の変形抵抗を含めることとした。ここでは、圧縮板と試験片間は全くすべりが起こらず、固着現象がおきているものと仮定した。これは、試験後に圧縮板が試験片により接着されていることが観察されており、圧縮板と試験片間には大きな接着力が働いているものと考えられたためである。

塑性材料に対して、圧縮板と試験片間に固着現象が起き、円柱試験片を圧縮したときの式は⁸⁾、

$$p_m = \left\{ 1 + \frac{1}{3\sqrt{3}} \left(\frac{d}{h} \right) \right\} Y \quad (1)$$

p_m : 軸方向の平均面圧, d : 試験片の直径,

h : 試験片の高さ, Y : 材料の降伏点

と表される。本研究での応力は(1)式での平均面圧と一致するものである。練土の変形挙動が(1)式によって近似され、変形中の硬化がないとすれば、応力と試験片のアスペクト比(直径/高さ)とは比例関係を示す。

圧縮前の形状で $\phi 20 \times 30$, $\phi 20 \times 15$, $\phi 20 \times 10$, $\phi 33 \times 10 \text{ mm}$ の試験片を $1.0 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$ で圧縮した結果を図4に示す。どの曲線も試験後半において応力とアスペクト比の関係がほぼ直線関係になっていることが認められる。

(1)式が成立する場合、直線部の延長とアスペクト比0との交点は降伏点を示し、直線の傾きを降伏点で除したものは $1/3\sqrt{3}$ となる。そこで各曲線の直線部から降伏点及び傾きを最小2乗法により算出し整理した結果が図5、図6である。図6に示したように、傾き/降伏点の値は $\phi 20 \times 30 \text{ mm}$ の場合を除き、 $1/3\sqrt{3}$ 近傍にプロットされている。また、降伏点についても $\phi 20 \times 30 \text{ mm}$ 以外のものは同一水分においてはほぼ一致した値を示している。圧縮前の形状が $\phi 20 \times 30 \text{ mm}$ の場合に、他の寸法のものとは異なった理由としては、図4の曲線で応力が近似直線より上まで増加した後、減少して直線と一致する現象と関連していると考えられる。応力値がピークを持つ現象は $\phi 20 \times 15$, $\phi 20 \times 10 \text{ mm}$ の場合においても若干見られることから、圧縮前の試験片直径に対する試験片高さが大きい場合

Fig. 5. Yield point of green bodies of Hara gairome clay.

Fig. 6. (Slope of the linear part in Fig. 4)/(yield point) vs. water content.

に初期形状に起因する不安定な現象が生じていることが予想され、安定した圧縮変形を行うためには試験片のアスペクト比を考慮する必要があることが分かる。以上のことから $\phi 20 \times 30$ mm の試験片で得られた結果は変形特性の考察から除外することとした。

降伏点は水分が 35 mass% から 25 mass% に減少する間に数倍高くなっている。降伏点は金属材料に比べ小さく、成形時におけるプレス能力が問題になることは少ない。しかし、水分の変化に対する降伏点の変化量が大きいことから、材料調製時における練土内部の水分の不均一が成形に大きく影響を与えることが予想される。

図 7 に実験から得られた降伏点を用いて、(1) 式から応力値を算出した結果を示す。実際には試験片-圧縮板でのすべりや、材料の粘性挙動等があり、実験値と完全には一致していないが、実験後半における応力増加が(1)式でよく表現されていることが分かる。このことから、圧縮試験は練土の変形特性の評価に対して有効であると考えられる。また、実際にプレスにかかる荷重は応力に面積をかけたものであり、荷重値は(直径の 3 乗)/(高さ)を含む式で表される。このことからプレス成形で薄肉の大面积の製品を成形する際に大きな力が必要とされ

ることが推測される。そのため、薄肉製品の製造に関し、プレス型と材料間をスムーズにすべらせる方法の開発が不可欠であると考えられる。しかし、本試験では金属製圧縮板を使用し、試験片と圧縮板間には潤滑剤等は使用しなかった。これは材料と圧縮板間にすべりが生じた場合には、全く樽型に変形しない場合を除いて、材料と圧縮板間に摩擦と固着が複合的に生じ、解析が困難になるためである。そこで、より完全な固着現象に近い状態での試験を行った。

4. 結 言

陶磁器原料の一つである原がいろめ粘土の水分 30 mass% 付近の練土について、練土を均質な連続体と扱った場合の変形特性を、高速度(衝撃試験にならない程度の速度域)の一軸圧縮試験の結果から検討し、以下の結果を得た。

- (1) 応力と試験片形状の関係は塑性材料の圧縮試験式により近似され、応力と試験片のアスペクト比は比例関係を示した。
- (2) 原がいろめ粘土の練土は塑性的性質を有し、その降伏点は水分により大きく変化した。
- (3) 圧縮時に練土と圧縮板間にはたらく変形抵抗が大きいことから、両者の接触面では固着に近い現象が起きていると考えられた。
- (4) 円柱試験片の初期のアスペクト比が変形の安定性に影響を与えた。また本研究中においては初期のアスペクト比が 4/3 以上ではほぼ同様の塑性変形の挙動が認められた。
- (5) 圧縮試験は練土の変形特性の評価に対して有用な方法であると考えられた。

文 献

- 1) N. F. Astbury, *Trans. Brit. Ceram. Soc.*, **62**, 1-18 (1963).
- 2) 素木洋一, 窯協, **63**, 421-29 (1955).
- 3) 小林種雄, 鈴木 傑, 河地千尋, 西山哲司, 窯協, **80**, 64-74 (1972).
- 4) A. P. Green, *Phil. Mag.*, **42**, 900-18 (1951).
- 5) 栗野泰吉, 塑性と加工, **1**, 203-10 (1960).
- 6) 日本粘土学会編, “粘土ハンドブック, 第二版”, 技報堂出版 (1987) pp. 530-31.
- 7) 梅屋 薫, 日本レオロジー学会誌, **13**, 145-66 (1985).
- 8) 後藤 學, “塑性学”, コロナ社 (1982) pp. 78-80.

Fig. 7. Calculated stress-strain curves according to Eq. (1).