

中性子小角散乱を用いた笠間焼陶器の気孔サイズ評価

Pore Size Evaluation of Kasama Pottery Using Small-Angle Neutron Scattering

吉田 博和¹⁾、児玉 弘人¹⁾、松川 健²⁾、石垣 徹²⁾、杉田 剛³⁾、大場 洋次郎³⁾

Hirokazu YOSHIDA, Hiroto KODAMA, Takeshi MATSUKAWA, Toru ISHIGAKI, Tsuyoshi SUGITA, Yojiro OBA

¹⁾茨城県産業技術イノベーションセンター ²⁾茨城大学 ³⁾原子力機構

(概要)

陶磁器の物性は、焼成後素地中の気孔のサイズや数に大きく影響を受けることから、陶磁器の内部及び表面における気孔のサイズ分布を定量的に評価することは、良質な陶器製品の開発に重要である。本申請課題では、素地組成の異なる試料（笠間単味、笠間ブレンド土）について焼成温度を変化させ、気孔のサイズ分布の変化を中性子小角散乱により評価した。また、陶器の吸水率に影響を及ぼす素地表面に存在する開気孔のサイズ分布を評価するため、含水試料についても測定し、実際に水が吸収された気孔の測定を試みた。乾燥試料の測定結果より、笠間単味と笠間ブレンド土の間に散乱強度の差異がみられ、焼成後試料の nm オーダーの気孔サイズ分布が異なることが明らかとなった。また、含水試料は乾燥試料よりも散乱強度が減少し、焼成後素地表面の開気孔への水の吸収による散乱コントラストの低下が確認された。

キーワード：笠間焼、陶器、気孔サイズ分布、開気孔、中性子小角散乱

1. 目的

日本を代表する陶磁器の1つである笠間焼の製産地では、笠間産粘土のみからなる「笠間単味」と、他の粘土をブレンドした「笠間ブレンド土」が製造されている。笠間単味を素地とした陶磁器を純・笠間焼と称し、これを推進する取り組みを笠間焼協同組合が行っているが、申請者らのこれまでの検討により、笠間単味は1250℃を超える温度で焼成すると吸水率が上昇することが明らかとなっている（図1）。この現象は他地方の土の割合が多い素地では観察されず、焼成温度の上昇に伴い低吸水率となる。これは、一種類の粘土だけからなる素地では欠点を持つことが多く、産地の異なる土をブレンドすることによって短所を補ったり、長所を引き出したりできるためである。一般的に、陶器素地の製品性能（吸水性など）は、焼成後素地中の気孔のサイズや数に影響を受けるため[1、2]、素地の成分及び焼成温度が気孔サイズに及ぼす影響を調べることは、オリジナル陶器製品開発に向けたその素地（粘土を原料とした陶器の素材）の改良に不可欠である。

本研究課題の目的は、焼成温度に依存する気孔サイズ変化を小角散乱により明らかにすることである。中性子小角散乱を用いることで、SEMやX線プローブでは得られない表面・内部を含めた試料全体の nm オーダーの気孔サイズ・形状・大きさの分布などをマクロ評価が可能であり、mm オーダーの厚みを有する陶器について、実際の使用条件に近い条件で測定・評価が可能である。

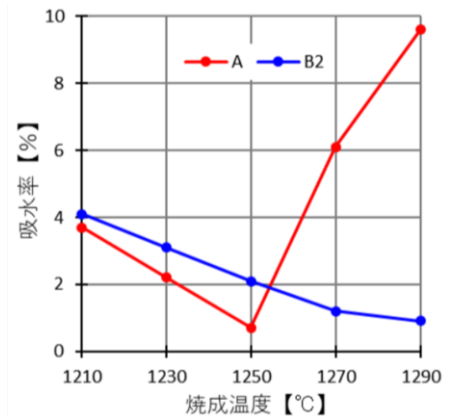


図1 煮沸吸水率
A. 笠間単味、B2. 笠間ブレンド土

2. 方法

笠間焼素地土試験体は、サイズ $2 \times 2 \times 0.2 \text{ cm}^3$ 程度のバルク体とした。測定条件は、室温・大気である。試験体は、笠間産 100%と笠間ブレンド土（笠間：特澁 = 3 : 7）とし、各種類について異なる加熱処理温度（1210、1230、1250、1270、1290 °C）の5条件とした。

また、水の入り込む気孔（開気孔）のサイズ分布を調べることを目的とし、 D_2O を吸水させた含水試料についても同様に測定した。

3. 結果及び考察

笠間単味および笠間ブレンド土について、1290℃焼成試料の散乱プロファイルを図2に示した。笠間単味と笠間ブレンドにおいて散乱プロファイルが異なり、素地成分による差異が見られた。また、笠間単味は q

= 0.05 nm⁻¹以上の比較的小さいサイズの内部構造に由来する散乱強度が高く、笠間ブレンド土は $q = 0.05$ nm⁻¹以下の比較的大きいサイズの内部構造に由来する散乱強度が低く、焼成後の各素地における内部構造変化に違いが見られた。ここで、 q は散乱ベクトルの絶対値である。

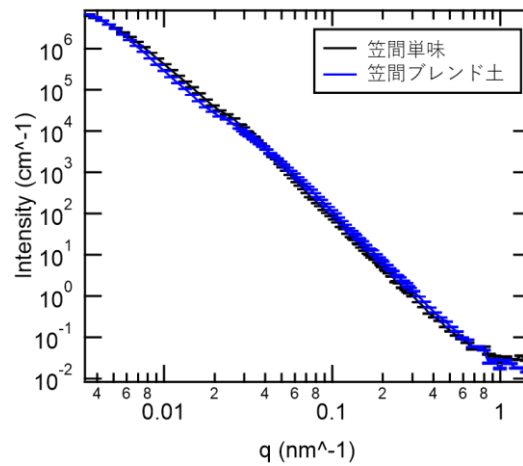


図2 笠間単味及び笠間ブレンド土の1290℃焼成試料の散乱プロファイル

図3に、笠間ブレンド土1270℃焼成試料における乾燥状態及び含水状態の散乱プロファイルを示した。含水サンプルは乾燥サンプルよりも散乱強度が減少した。これは、サンプルに存在する開気孔に重水が吸収されることで、散乱コントラストが減少したこと起因すると考えられる。全体的に散乱強度が減少していることから、様々なサイズの開気孔が存在することが示唆された。今後、得られた散乱プロファイルを詳細に解析し、散乱プロファイルと煮沸吸水率の相関を調べる。

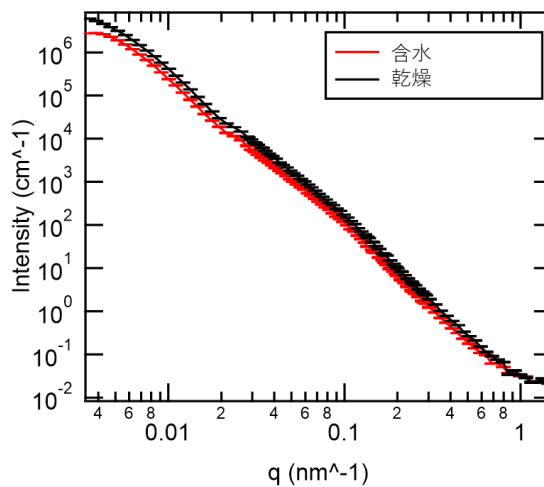


図3 笠間ブレンド土1270℃焼成試料における乾燥状態及び含水状態の散乱プロファイル

本研究課題によって、陶器の物性を左右する陶器内部及び表面に存在する気孔のサイズ分布に関する情報を得ることができた。また、含水状態の試料を測定したことで、表面に存在する実際に水が吸収される開気孔のサイズ分布情報を得られると期待している。今後、窒素ガス吸着法や水銀圧入法による細孔径分布の測定結果と比較するなどして、相互補完的に活用したい。また、中性子小角散乱法では、従来の細孔径分布測定法では得られない内部の気孔サイズ分布情報が得られることから、陶器の曲げ強度と気孔サイズ分布の相関等も評価していく予定である。

4. 引用(参照)文献等

- [1] 栗田、他、J. Ceramic Soc. Jpn.、1998、106、1208.
- [2] 小林、他、日本セラミック協会学術論文誌、1991、99、495.