

シラスの工業的利用に関する研究 (第7報)

シラス焼結体におよぼす添加物の影響

島田欣二*・小牧高志**・福重安雄***

(受理 昭和43年5月31日)

STUDIES ON THE INDUSTRIAL APPLICATION OF "SHIRASU" (Report 7)

Effects of Additional Components on the Sintered
Bodies of "SHIRASU"

Kinji SHIMADA, Takashi KOMAKI and Yasuo FUKUSHIGE

Effects of additional components on the color, physical properties and mechanical properties of the SHIRASU-kaolin sintered bodies were investigated. The partial amount of kaolin in SHIRASU-kaolin system is replaced with the portland cement, slaked lime, lithium carbonate or titanium oxide. These samples were sintered at 1000~1300°C in the electric furnace. A sudden decrease in the water absorption and simultaneous increase in the density, bending strength and hardness occurred at 1100 to 1200°C for the sintered bodies of SHIRASU. At above 1200°C, most of these samples were melted.

The properties of SHIRASU-kaolin-titanium oxide system (80 SHIRASU, 15 kaolin, 5 TiO₂) sintered at 1150 to 1200°C are as follow; specific gravity 2.3~2.4, water absorption 0%, Mohr's hardness 6~7, bending strength 429~434 Kg/cm.²

1. 緒 言

シラスを原料とする焼結体については既に野元ら¹⁾の詳細な研究があり、その実用化試験も成功しているが、筆者らはシラス焼結体の外観、物理的性質および機械的性質におよぼすカオリン、石灰、酸化チタン、セメントおよび酸化リチウムの影響について検討した。

2. 実験方法

2.1 原料

原料として用いたシラスは鹿児島市群元町唐湊地区

産のものをアトマイザーで微粉碎したものをを用いた。カオリンは薩摩郡入来町産のものでカオリナイトを主要粘土鉱物とし石英を少量含んでいる²⁾。セメントおよび消石灰は市販のもので、酸化チタンおよび炭酸リチウムは試薬1級のものを使用した。表1にシラス、カオリン、石灰およびセメントの化学成分を示した。

2.2 調合および成形

シラス80%に対し、カオリン、消石灰、セメント、酸化チタンおよび炭酸リチウム1種、2種あるいは3種を石川式搗潰機を用いて乾式混合を行なった。各種調合物に0.3~2.2%の水を添加し、ステンレス製円筒金型に充填し、500 kg/cm²で加圧成形を行なった。

表1 各種原料の化学成分(%)

	Ig. loss	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	SO ₃	K ₂ O	Na ₂ O	Total
シラス	3.56	71.44	13.42	3.15	1.60	0.40	—	5.62	—	99.19
消石灰	25.53	0.60	tr.	tr.	71.96	tr.	—	tr.	tr.	98.09
カオリン	12.16	47.70	40.64	0.32	0.30	0.17	N. D.	N. D.	N. D.	101.29
セメント	1.15	23.40	5.50	2.45	64.70	2.00	1.58	—	—	100.78

* 鹿児島大学工学部応用化学教室・教授

*** 鹿児島大学工学部応用化学教室・助手

** 鹿児島大学工学部応用化学教室・助教授

加圧速度は約 50 kg/sec で、なるべく一定となるよう

表2 各試料の配合比

試料グループ	シラス	カオリン	セメント	消石灰	炭酸リチウム	酸化チタン
A1~A8	80	20				
B1~B8	80		20			
C1~C8	80			20		
D1~D8	80				20	
E1~E8	80					20
F1~F8	80	15	5			
G1~G8	80	15		5		
H1~H8	80	15			5	
I1~I8	80	15				5
J1~J8	80	10	10			
K1~K8	80	10		10		
L1~L8	80	10			10	
M1~M8	80	10				10
N1~N8	80	10	5	5		
O1~O8	80	10	5		5	
P1~P8	80	10	5			5
Q1~Q8	80	10		5	5	
R1~R8	80	10		5		5
S1~S8	80	10			5	5

にした。試料1個の重量は約 50 g とし、直径 50 mm、厚さ 14 mm の円板状のものとした。表2に各試料の配合割合を示した。

2・3 焼成

成形試料は数日室温で自然乾燥後、エレマ電気炉(40×40×50 cm)で 800°C、1000°C、1050°C、1100°C、1150°C、1200°C、1250°C および 1300°C の各温度に焼成した。電気炉の上昇速度は 200°C/hr とし、最高温度に1時間保持後放冷した。

3. 実験結果

3・1 焼成物の性質

各温度に焼成した試料について外観、色調、収縮率、吸水率、気孔率、見掛比重およびかさ比重などの物理的性質、モース硬度および曲げ強さを測定し、その結果を表3に示した。表中の数値は試料2ヶの平均値である。

表3 シラスを原料とするタイルの性質

試料	焼成温度(°C)	色調	収縮率(%)	モース硬度	曲げ強さ(kg/cm ²)	見掛比重	かさ比重	気孔率(%)	吸水率(%)	備考
A-1	800	白茶	0	—	—	2.42	1.73	30.15	17.41	素焼
A-2	1000	"	0	2.0	15.5	2.43	1.81	25.65	14.15	"
A-3	1050	"	2	2.5	30.6	2.44	1.87	23.27	12.43	"
A-4	1100	"	3	3.5	112.8	2.44	1.99	18.17	9.13	"
A-5	1150	灰味茶	5	4.0	115.0	2.43	2.07	9.60	4.40	焼締り良好
A-6	1200	"	10	7.0	318.9	2.46	2.46	0.40	0.16	"
A-7	1250	"	9	7.0	357.0	2.22	2.22	0.16	0.07	"
A-8	1300	"	膨脹	8.0	—	1.66	1.55	1.31	0.85	発泡
B-1	800	白茶	0	—	—	—	—	—	—	素焼
B-2	1000	"	0	2.0	67.1	2.50	1.78	32.67	18.28	"
B-3	1050	"	0	2.0	70.0	2.52	1.72	31.88	18.60	"
B-4	1100	黄味灰色	0	2.5	120.0	2.39	1.72	27.76	16.12	"
B-5	1150	"	7	7.0	510.0	2.19	2.13	2.54	1.19	焼締り良好
B-6	1200	"	7	7.5	380.0	2.21	2.17	1.77	0.82	"
B-7	1250	"	膨脹	7.5	—	1.60	1.54	2.50	1.15	発泡
B-8	1300	"	"	7.5	—	1.50	1.43	3.45	2.20	膨脹
C-1	800	白茶	0	—	—	—	—	—	—	素焼
C-2	1000	"	0	1.5	—	2.56	1.53	39.89	25.27	亀裂
C-3	1050	"	膨脹	2.5	21.9	2.59	1.56	39.73	25.42	"
C-4	1100	"	"	2.5	—	2.56	1.53	39.60	25.77	"
C-5	1150	"	"	2.5	—	2.51	1.53	39.15	25.62	"
C-6	1200	苔色	"	5.5	—	—	—	—	—	溶融
C-7	1250	"	"	5.5	—	—	—	—	—	"
C-8	1300	"	"	5.5	—	—	—	—	—	"
D-1	800	白	膨脹	6.5	—	—	—	—	—	亀裂
D-2	1000	緑白	"	7.0	—	—	—	—	—	溶融
D-3	1050	"	"	7.0	—	—	—	—	—	"
D-4	1100	"	"	7.0	—	—	—	—	—	"
D-5	1150	"	"	7.0	—	—	—	—	—	"
D-6	1200	"	"	7.0	—	—	—	—	—	"
D-7	1250	"	"	7.0	—	—	—	—	—	"
D-8	1300	"	"	7.0	—	—	—	—	—	"

試料	焼成温度 (°C)	色調	収縮率 (%)	モース硬度	曲げ強さ (kg/cm ²)	見掛比重	かさ比重	気孔率 (%)	吸水率 (%)	備考
E-1	800	白	0	—	—	—	—	—	—	素焼
E-2	1000	黄味灰	3	3.0	56.8	2.64	2.00	24.16	12.09	焼締り不足
E-3	1050	"	7	5.0	190.3	2.63	2.21	15.89	7.21	"
E-4	1100	"	9	5.5	272.9	2.63	2.38	9.46	6.99	"
E-5	1150	"	9	5.5	278.1	2.62	2.44	6.35	2.68	焼締り良好
E-6	1200	"	12	6.5	501.0	2.60	2.59	0.19	0.07	"
E-7	1250	"	10	6.5	486.7	2.56	2.55	0.21	0.08	"
E-8	1300	"	7	6.5	444.8	—	—	—	—	溶融
F-1	800	白茶	0	—	—	—	—	—	—	素焼
F-2	1000	"	0	2.0	59.5	2.49	1.80	27.77	15.45	焼締り不足
F-3	1050	"	0	2.0	58.5	2.54	1.83	26.83	14.11	"
F-4	1100	"	0	3.0	74.8	2.48	1.80	26.09	15.03	"
F-5	1150	"	2	3.0	141.6	2.46	1.82	26.29	14.50	"
F-6	1200	"	8	6.5	453.0	2.38	2.37	0.25	0.10	焼締り良好
F-7	1250	"	6	6.5	386.2	2.23	2.15	0.47	0.15	"
F-8	1300	"	膨脹	6.5	155.9	2.30	2.30	0.25	0.11	発泡
G-1	800	白茶	0	—	—	—	—	—	—	素焼
G-2	1000	"	0	2.5	67.9	2.51	1.75	30.33	17.29	焼締り不足
G-3	1050	"	0	2.5	97.2	2.43	1.71	28.78	16.78	"
G-4	1100	"	2	2.5	171.4	2.45	1.77	28.27	15.91	"
G-5	1150	灰味茶	4	3.5	204.4	2.45	1.86	23.30	12.62	"
G-6	1200	"	8	6.5	485.2	2.38	2.37	0.18	0.09	焼締り良好
G-7	1250	"	6	6.5	448.2	2.30	2.30	0.09	0.01	"
G-8	1300	"	膨脹	5.5	234.0	2.27	2.27	0.09	0.01	発泡
H-1	800	白茶	0	—	—	—	—	—	—	素焼
H-2	1000	"	0	2.0	234.9	2.36	1.73	28.58	16.54	焼締り不足
H-3	1050	"	0	2.5	222.9	2.21	1.71	23.09	13.25	"
H-4	1100	"	0	5.0	309.7	2.08	1.73	18.29	10.55	"
H-5	1150	"	4	6.0	359.4	1.98	1.96	0.45	0.23	焼締り良好
H-6	1200	灰味茶	4	6.5	327.2	1.98	1.97	0.54	0.23	"
H-7	1250	"	膨脹	6.5	108.8	1.98	1.97	0.54	0.23	小発泡
H-8	1300	"	"	6.5	—	—	—	—	—	発泡
I-1	800	白茶	0	—	—	—	—	—	—	素焼
I-2	1000	黄味灰	1	2.0	23.4	2.50	1.81	27.35	15.10	焼締り不足
I-3	1050	"	2	2.5	66.3	2.49	1.90	23.61	12.50	"
I-4	1100	"	4	4.0	242.5	2.50	2.20	19.07	8.17	"
I-5	1150	"	9	7.0	429.0	2.48	2.33	3.83	1.63	焼締り良好
I-6	1200	"	9	7.0	434.2	2.48	2.20	2.92	1.25	"
I-7	1250	"	8	6.5	432.3	2.34	2.33	0.17	0.06	"
I-8	1300	"	膨脹	6.5	410.5	2.33	2.32	0.20	0.07	発泡
J-1	800	白茶	0	—	—	—	—	—	—	素焼
J-2	1000	"	0	1.5	79.6	2.53	1.77	29.96	16.89	焼締り不足
J-3	1050	"	0	2.5	172.8	2.50	1.78	26.96	16.26	"
J-4	1100	灰味茶	3	4.5	388.4	2.45	1.96	19.84	10.17	"
J-5	1150	"	4	6.5	569.6	2.40	2.39	0.20	0.08	焼締り良好
J-6	1200	老緑	4	6.5	503.6	2.40	2.39	0.20	0.08	"
J-7	1250	"	膨脹	5.5	214.5	2.08	2.07	0.17	0.06	発泡
J-8	1300	"	"	5.5	—	2.08	2.07	0.17	0.06	"
K-1	800	白茶	0	—	—	—	—	—	—	素焼
K-2	1000	"	2	3.0	105.0	2.53	1.78	28.54	16.00	焼締り不足
K-3	1050	"	2	3.0	125.6	2.53	1.78	29.39	16.50	"
K-4	1100	"	2	5.0	131.7	2.52	1.82	24.53	13.58	"
K-5	1150	灰味茶	8	5.5	550.3	2.53	1.82	24.53	13.58	"
K-6	1200	老緑	8	5.5	529.3	2.45	2.40	2.55	1.23	焼締り良好
K-7	1250	"	膨脹	5.5	406.1	2.30	2.28	0.16	0.06	溶融
K-8	1300	"	"	5.5	—	2.05	2.05	0.05	0.05	"
L-1	800	白茶	0	—	—	2.43	1.59	34.53	21.69	焼締り不良
L-2	1000	灰味茶	6	5.0	395.4	2.23	2.05	8.12	4.28	"
L-3	1050	緑白	膨脹	7.0	—	—	—	—	—	溶融
L-4	1100	"	"	7.0	—	—	—	—	—	"

試料	焼成温度 (C°)	色調	収縮率 (%)	モース硬度	曲げ強さ (kg/cm ²)	見掛比重	力サ比重	気孔率 (%)	吸水率 (%)	備考
L-5	1150	緑白	膨脹	7.0	—	—	—	—	—	溶融
L-6	1200	"	"	6.5	—	—	—	—	—	"
L-7	1250	"	"	6.5	—	—	—	—	—	"
L-8	1300	"	"	6.0	—	—	—	—	—	"
M-1	800	白茶	0	—	—	—	—	—	—	素焼
M-2	1000	黄味灰	1	1.5	63.4	2.55	1.83	27.92	17.23	焼締り不足
M-3	1050	"	3	2.5	65.7	2.56	1.95	23.60	12.18	"
M-4	1100	"	5	3.0	101.3	2.55	2.11	17.20	8.40	"
M-5	1150	"	6	7.5	361.4	2.54	2.48	2.25	0.91	焼締り良好
M-6	1200	"	10	7.0	342.0	2.53	2.47	2.22	0.90	"
M-7	1250	"	7	6.5	456.3	2.41	2.40	0.15	0.06	"
M-8	1300	"	膨脹	6.5	373.7	2.34	2.28	0.32	0.14	発泡
N-1	800	白茶	0	—	—	—	—	—	—	素焼
N-2	1000	"	0	2.5	8.3	2.52	1.76	30.17	17.11	焼締り不足
N-3	1050	"	0	2.5	118.3	2.53	1.77	30.13	17.12	"
N-4	1100	"	2	3.5	192.2	2.46	1.80	24.37	13.34	"
N-5	1150	"	4	5.5	515.4	2.36	2.34	0.20	0.08	焼締り良好
N-6	1200	老緑	4	6.0	584.5	2.36	2.35	0.15	0.06	"
N-7	1250	"	膨脹	5.5	314.8	2.13	2.12	0.36	0.07	発泡
N-8	1300	"	"	5.5	—	—	—	—	—	溶融
O-1	800	白茶	0	—	—	2.46	1.66	32.34	19.45	素焼
O-2	1000	"	0	3.0	286.1	2.41	1.69	30.00	17.79	"
O-3	1050	灰味茶	4	5.5	236.9	2.27	1.97	12.90	7.54	焼締り不足
O-4	1100	"	4	5.5	419.6	2.22	2.22	0.29	0.13	焼締り良好
O-5	1150	苔色	膨脹	5.5	205.2	2.20	2.20	0.15	0.05	小発泡
O-6	1200	"	"	4.5	—	—	—	—	—	溶融
O-7	1250	"	"	4.0	—	—	—	—	—	"
O-8	1300	"	"	4.0	—	—	—	—	—	"
P-1	800	白茶	0	—	—	—	—	—	—	素焼
P-2	1000	"	0	2.5	62.5	2.53	1.81	28.45	15.72	焼締り不足
P-3	1050	"	0	2.5	73.8	2.55	1.83	28.36	15.49	"
P-4	1100	"	1	2.5	109.3	2.54	1.84	27.26	14.78	"
P-5	1150	灰味黄茶	6	5.5	533.7	2.51	2.17	13.15	7.50	"
P-6	1200	黄茶	6	6.0	378.2	2.52	2.38	5.35	2.25	焼締り良好
P-7	1250	"	膨脹	6.0	237.4	2.30	2.25	2.20	0.50	発泡
P-8	1300	"	"	6.0	—	—	—	—	—	溶融
Q-1	800	白茶	0	—	—	—	—	—	—	素焼
Q-2	1000	"	0	1.5	114.9	2.32	1.67	27.80	16.65	焼締り不足
Q-3	1050	灰味茶	0	5.5	189.3	2.21	1.71	22.71	13.29	"
Q-4	1100	苔色	膨脹	4.5	395.0	2.20	1.69	0.29	0.13	焼結
Q-5	1150	"	"	4.5	183.0	—	—	—	—	溶融
Q-6	1200	"	"	4.5	—	—	—	—	—	"
Q-7	1250	"	"	4.5	—	—	—	—	—	"
Q-8	1300	"	"	4.5	—	—	—	—	—	"
R-1	800	白茶	0	0	—	—	—	—	—	素焼
R-2	1000	"	0	2.0	76.0	2.51	1.80	28.54	15.88	焼締り不足
R-3	1050	"	0	2.0	98.1	2.52	1.79	29.05	16.26	"
R-4	1100	"	1	3.0	97.3	2.50	1.81	27.26	15.03	"
R-5	1150	"	10	8.0	595.5	2.46	2.46	0.24	0.10	焼締り良好
R-6	1200	黄茶	8	6.0	544.7	2.47	2.46	0.25	0.10	"
R-7	1250	"	4	6.0	558.2	2.44	2.43	0.21	0.09	"
R-8	1300	"	膨脹	6.0	315.4	—	—	—	—	発泡
S-1	800	白茶	0	—	—	—	—	—	—	素焼
S-2	1000	"	0	2.5	216.5	2.35	1.72	26.69	15.53	焼締り不足
S-3	1050	"	2	5.0	242.6	2.20	1.89	16.55	9.21	"
S-4	1100	黄味灰	4	6.0	331.0	2.19	2.02	7.50	4.27	焼締り良好
S-5	1150	黄茶	3	6.5	568.5	2.17	2.15	0.57	0.26	"
S-6	1200	"	膨脹	6.5	359.2	2.13	2.12	0.46	0.22	発泡
S-7	1250	"	"	6.5	—	—	—	—	—	溶融
S-8	1300	"	"	6.5	—	—	—	—	—	"

3.2 シラススタイルの強度におよぼす添加物の影響

シラス 80%, カオリン 20% を基本とするタイルにおいて、カオリンの一部および全部をセメント、石灰、炭酸リチウム および 酸化チタン で置きかえた場合、シラススタイルの強度、溶化温度がどのように変化するかを検討した。

図1はシラス-カオリン系タイルのカオリンをセメントでおきかえた場合の強度および溶化温度の変化を示したものである。セメントの量を増加するにしたがって曲げ強度は増進するが、10%を越えるとかえって減少する。また、最大強度を発現する焼成温度もセメント量の増加にともなつて低下する。

図2は石灰の添加が強度および溶化温度におよぼす影響を示したもので、石灰の添加量の増加にともなつて曲げ強度は増進するが10%を越えると亀裂を生じ破壊する。これは、成分中に $2CaO \cdot SiO_2$ が形成するためと考えられる。 $2CaO \cdot SiO_2$ には α (高温形)、 α' (中温形)、 r (低温形) および β (単変形) の4つの変態が知られており、 $\alpha' \rightarrow r$ 転移は転移温度が $850^\circ C$ で転移速度はやや遅いが、冷却に際し12%の容積変化をとめない、この異状膨脹が粉塵化 dusting の原因となる⁴⁾。

図3は炭酸リチウムの添加が強度および溶化温度におよぼす影響を示したもので、炭酸リチウムの添加により急激に溶化温度は低下し、5%添加で $1150^\circ C$ で溶

化し、10%添加すると $1000^\circ C$ で溶化する。また炭酸リチウムの添加はシラススタイルの強度の増進には寄与しない。

図4は酸化チタンの添加が強度および溶化温度におよぼす影響を示したもので、酸化チタンの添加により、溶化温度が低下し、強度が増進するが5%以上の添加の効果は少ない。特に酸化チタンの効果は焼成温度領域を拡大することであつて、 $1150^\circ C \sim 1300^\circ C$ の領域での強度変化が少なく、約 $100^\circ C$ の焼成領域を示している。

以上のことからシラス-カオリン系タイルでカオリンの一部を石灰、セメントあるいは酸化チタンで置きかえることは溶化温度低下と強度増進に効果があり、その量も5%程度でよい。

3.3 シラススタイルの物理的性質におよぼす添加物の影響

シラス-カオリン系タイルのカオリンをセメント、石灰、炭酸リチウムあるいは酸化チタンで一部で置換した場合、タイルの物理的性質におよぼす影響について検討した。その結果は表3に示すとおり、吸水率、気孔率が、シラス-カオリン系の場合は焼成温度の上昇にともなつて徐々に減少して焼結するのに対し、カオリンの一部を石灰、セメント、炭酸リチウムあるいは酸化チタンでおきかえるといずれの場合もある温度で急激に減少する。このように物理的性質が急激に変

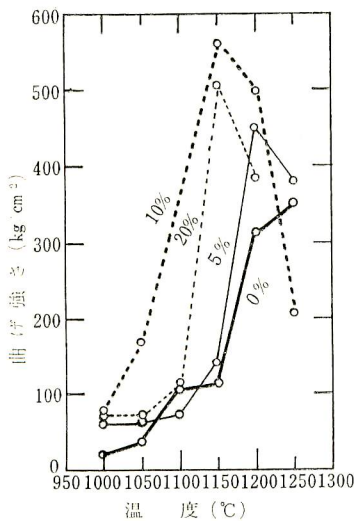


図1 シラス-カオリン系焼結体の強度におよぼすセメントの影響 (シラス 80-カオリン 20系のカオリンをセメントで置換)

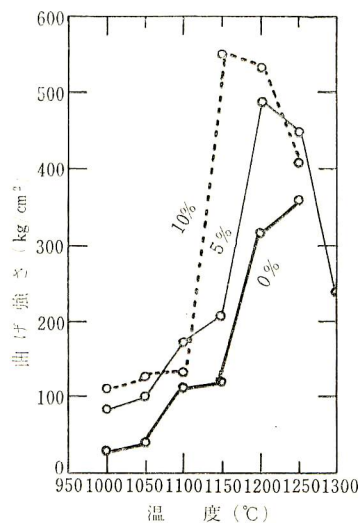


図2 シラス-カオリン系焼結体の強度におよぼす石灰の影響 (シラス 80-カオリン 20系のカオリンを石灰で置換)

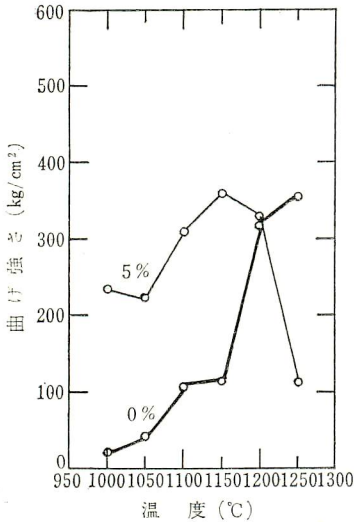


図3 シラス-カオリン系統結体の強度におよぼす炭酸リチウムの影響(シラス80-カオリン20系のカオリンを炭酸リチウムで置換)

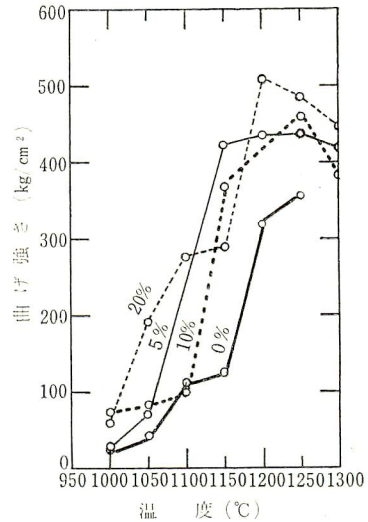


図4 シラス-カオリン系統結体の強度におよぼす酸化チタニウムの影響(シラス80-カオリン20系のカオリンを酸化チタニウムで置換)

化する温度は添加物質で異っており、炭酸リチウムでは1000°C、酸化チタン、セメントでは1100°Cおよび石灰では1150°Cである。

3・4 シラススタイルの色調におよぼす添加物の影響

シラス-カオリン系スタイルの色調は灰味茶系統であるが、これに酸化チタンが添加されると黄味を帯びてくる。セメントが添加されたものは少量の場合は白茶色を呈し、量の増加にともない老緑色、苔色となる。消石灰が添加されたものも少量の場合は白茶色で添加量の増加にともなつて老緑色、苔色と変化する。炭酸リチウムが添加されたものは少量の場合は白茶であるが、添加量の増加にともなつて緑白色に変化する。

4. 総括

シラス-カオリン系スタイルの色調、物理的、および機械的性質におよぼす添加物の影響について検討した。シラス-カオリン系スタイルのカオリンの一部をセメント、石灰、炭酸リチウムあるいは酸化チタンで置きかえることにより、炭酸リチウム以外は焼結温度の低下と強度増進に効果が認められた。しかし、吸水率および気孔率などの物理的性質は1100~1150°Cで急激に変化するので、均一な製品の製造上問題がある。

シラススタイルの色調は添加物質により、いちじるしく変化し、酸化チタンは黄味色、セメント、消石灰は白茶~苔色、炭酸リチウムは緑白色を発色する。

一般にシラススタイルは1100~1200°Cで焼結して吸

水率、気孔率が急激に減少する。それとともに比重が増大し、モース硬度および曲げ強度が増大する。しかし、1150~1250°Cから溶化するため強度および硬度は低下し、1250°C以上では発泡膨張する。

シラススタイルの問題点は色調の不統一と焼成温度範囲の狭少な点であるが、シラス-カオリン-酸化チタン系スタイルは黄色系の色調で焼成温度範囲も比較的広く、曲げ強さ、硬度ともに大きい。たとえば、シラス80%、カオリン15%、酸化チタン5%の配合物は1100°Cで焼結し、焼結温度も低く、その機械的、物理的性質も良好で焼成温度範囲も100°Cで比較的広い。すなわち、1150°C~1250°Cの焼成物の曲げ強度は429~434 kg/cm²、モース硬度6~7、比重2.3~2.4、吸水率0%である。

本研究費の一部は鹿児島県未開発資源企業化対策協議会によるものである。本研究の一部を担当した国生徹郎君の労を感謝します。

文 献

- 1) 野元：粘土を用いない赤煉瓦の製造について(第1報)、鹿児島県企画室、1952年6月
- 2) 野元、松浦、中田、大島：シラス利用スタイルの電熱焼成、九州電力総合研究所、研究期報、Vol. 20, p. 133 (1962)。
- 3) 野元：入来カオリンについて、セラミックス Vol. 2, No. 12, p. 972 (1967)。
- 4) 吉木：鈹物工学、昭和38年、p. 490、技報堂。