

## 県産未利用粘土鉱物の活用\*

酒井 晃二\*\*、吉田敏裕\*\*、橘 秀一\*\*

県産未利用粘土鉱物の有効利用を図るため2種類の粘土鉱物について単味及び混合物の化学組成、鉱物組成、粒度分布、耐火度及び熱収縮などの諸物性を測定し、窯業建材への活用を検討した。その結果、焼成体の曲げ強さは現行原料土と同等またはそれ以上の値を示した。また、これらの吸水性はJISの粘土瓦や煉瓦の規格を満足し、粘土瓦、煉瓦などへの活用が可能であることが分かった。しかしながら、焼成収縮率が大きくや耐寒性が現行原料土に劣るなど改善を要する点も認められた。

キーワード：粘土鉱物、粘土瓦、煉瓦

## Utilization of the Unutilized Raw Porcelain Materials for Roof Tiles and Common Bricks Materials

SAKAI Koji, YOSHIDA Toshihiro and TACHIBANA Shyuichi

Chemical and mineral composition, particle size distribution, thermal resistance and thermal contraction were investigated in order to utilize two kinds of unutilized raw porcelain materials in Iwate prefecture. Those unutilized raw porcelain materials had equally or higher compression strength than the present materials. In addition the water absorption feature fulfilled Japanese Industrial Standard (JIS). So those materials can be utilized for roof tiles and common bricks. However, in respect to a high thermal contraction and a low frost resistance that should be improved.

key words : mineral clay , roof tiles , common bricks

### 1 緒 言

粘土瓦および煉瓦製造業などの窯業建材関連製造業は粘土の多消費型産業である。日本を代表する窯業関連建材の一大産地である愛知県においても年々粘土の確保が困難になってきており、フライアッシュ<sup>1)</sup>やスラッジ<sup>2)</sup>などの活用を試みている。原料粘土鉱物の不足は、県内事業所においても事業の存続を左右する深刻な問題となっている。一方、県内の未利用粘土資源の活用検討は少ない。本報では県内の未利用粘土資源の性状解析結果と

窯業建材、特に粘土瓦素地や煉瓦素地への利用検討結果について述べた。

### 2 実験方法

#### 2-1 使用原料

使用原料として、A.県内事業所廃泥、B.県内(紫波郡)より採取した粘土、C.県内事業所現行瓦原土、D.愛知県内で使用されている瓦原料土の4種類を用いた。A、Bが未利用であり、Bは採掘可能である。C、Dは

\* 県産資源の利用化事業(第3報)

\*\* 化学部

表1 試料の化学組成と耐火度

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	Ig.loss	耐火度
A	66.0	20.0	7.10	1.40	0.96	0.67	0.21	3.40	7.31	SK12
B	74.0	9.20	12.0	0.96	0.14	0.24	0.04	1.90	3.73	SK17
C	57.0	23.7	7.37	0.94	0.78	0.95	0.69	1.78	6.79	SK17
D	68.8	18.4	3.42	0.60	0.37	0.46	0.20	2.36	5.53	SK19

比較対照として選択した。それぞれ 110℃で恒量になるまで乾燥した後、450 μm以下に粒度調整したものを試料とした。試料A、B及びABの混合物を現行原料C及び産地原料Dと比較し、瓦原料や煉瓦原料としての利用可能性について検討した。

2-2 原料性状測定

使用原料の各種性状は以下のように測定した。鉱物組成(X線回折)は乾燥粉体を理学X-ray diffractometer RINT2000を用いて測定した。化学組成(蛍光X線回折)は強熱減量測定後の乾燥粉体を理学X-ray spectrometer 3270を用いて測定した。耐火度はJIS M8512により測定した。また、粒度分析は45 μm以上については湿式ふるい分けにより、それ以下についてはSEISHIN ミクロン・フォト・サイザーSKA-5000を用い遠心沈降法により測定した。

2-3 素地調整と成形及び焼成

原料の混合及び加水はポリエチレン製容器を用いて180rpm(約100回転/分)で2時間攪拌し、24時間室温で放置して原料全体をなじませた後試験に供した。試料の成形は、調整試料10gを直径30mmの円筒状金型を用い50kNで乾式で加圧成形した。また、曲げ強度測定用試料は、調整試料17gを10mm×60mmの金型に

10kNで半乾式加圧成形した。それぞれ厚さ10mm程度の試料を作成した。焼成試料は昇温速度192℃/hにより1150℃(現行焼成温度)で1時間焼成して作成した。

3 結果と考察

3-1 原料性状

表1に原料の化学組成及び耐火度を示した。また、表2に原料の主な構成鉱物、表3に粒度分析の結果を示した。試料Aはアルカリ酸化物が他の試料と比較して多く含まれて、耐火度はSK12と試料中で最も低かった。また、シリカ系の鉱物が大半を占めているのが特徴であった。試料Bは現行原料Cと同等の耐火度を示したが、他の試料と比較してFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が多くAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が少ない特徴があった。

表2 主な構成鉱物

試料名	構成鉱物
A	α-石英、トリジマイト
B	α-石英、カオリナイト、雲母
C	α-石英、曹長石、石灰長石
D	α-石英、カオリナイト、雲母、微斜長石、曹長石

表3 粒度分析

(mass%)

試料名	粒子径[μm]									
	<2.5	2.5~5	5~10	10~30	30~45	45~75	75~90	90~150	150~250	250<
A	8.6	22.1	22.1	8.1	2.7	4.4	10.2	10.2	5.0	6.6
B	16.7	26.7	2.4	3.3	24.9	17.6	0	4.6	3.8	0
C	12.5	21.4	9.2	18.3	14.1	4.8	1.0	6.3	5.5	7.0
D	7.0	29.3	18.4	14.6	3.0	11.0	2.5	8.5	4.8	1.0

表4 成形体物性

試料	曲げ強さ[MPa]	体積収縮率[%]	見掛け密度[g/cm <sup>3</sup> ]	
A	1.37	2.55	1.80	
75/25	1.02	2.25	1.84	
60/40	0.82	1.82	1.85	
A/B*	50/50	0.74	1.09	1.87
	40/60	0.68	0.96	1.91
	25/75	0.57	0.62	1.96
B	0.35	0.60	2.01	
C	1.15	1.38	2.03	
D	1.11	0.85	2.01	

\* A/B : 試料A及び試料Bの混合物、数字は混合比 (wt%) を表す。

粒度分析の結果、すべての試料において45 μm以下の含有率が60%以上であり、試料A以外の試料では70%以上であった。理想的な粒度分布とされている試料Dにおける45 μm以上での分布状態は、45~75 μmの割合が11%と他の分布領域より大きくなっており均一的な分散になっていないのが特徴的であった。これに対して、試料Cはほぼ均一的に、試料Aは75~90 μmと90~150 μmにそれぞれ約10%の分布があり、試料Bでは45~75 μmに17%と大きく分布してその他は不均一に分布していた。

### 3-2 成形体物性

加水率は通常の瓦用原料で10~20%程度であるが、

外割りで15%以上加えた場合、本実験で用いた金型の形状及びサイズでは金型への粘着などが起こり成形不良が生じたため外割り10%に統一した。外割り10%加水による成形性は概ね良好であった。成形後、110℃で24時間以上乾燥した成形体の曲げ強さ、体積収縮率、見掛け密度を表4に示した。試料Aは現行原料であるCや産地原料であるDよりも乾燥時の曲げ強さが大きかった。これはその大きな体積収縮率のためと考えられた。また、試料AとBを混合した場合、それぞれの割合に応じて曲げ強さ、体積収縮率、見掛け密度ともに変化した。A、Bそれぞれの曲げ強さ、体積収縮率、見掛け密度が混合

表5 焼成体物性

試料	曲げ強さ[MPa]	体積収縮率[%]	見掛け密度[g/cm <sup>3</sup> ]	
A	5.84	29.2	2.10	
75/25	3.97	20.1	2.00	
60/40	3.40	15.1	1.96	
A/B*	50/50	3.10	14.3	1.92
	40/60	3.20	10.7	1.92
	25/75	3.44	9.2	1.92
B	5.03	7.4	1.95	
C	2.42	11.6	2.00	
D	3.83	13.1	2.05	

\* A/B : 試料A及び試料Bの混合物、数字は混合比 (wt%) を表す。

割合に応じて影響されることから混合比を変化させることで大まかではあるが曲げ強さ、乾燥収縮率を制御出来ることが分かった。

### 3-3 焼成体物性

上記の成形体を1150℃で1時間焼成した試料の物性を表5に示した。試料A、B共に現行原料であるCまたは産地原料であるDの曲げ強さを上回る値を示したが、A/Bを混合すると単味の場合に比べて曲げ強さは小さくなった。また、乾燥時の成形体同様、収縮率はA、Bの混合割合に応じて変化した。しかしながらA、Bの混合割合が50/50を越える場合では焼成収縮が現行原料を上回るため、形態や寸法精度の制御が困難になる可能性もある。混合比40/60の場合、焼成収縮率も現行原料より小さく見掛け密度も小さいため、同じ体積では現行品よりも軽い製品となり施工などに有利な面もある。

表6 焼成体の吸水率と耐寒性

試料	吸水率[%]	耐寒性
A	5.3	× (7)
75/25	8.3	× (10)
60/40	10.3	× (3)
A/B 50/50	11.1	× (3)
40/60	12.3	× (2)
25/75	12.4	× (1)
B	12.8	× (2)
C	9.8	○
D	8.7	× (1)

×：亀裂発生、( )：亀裂発生時のサイクル、

○：亀裂なし

次に、JIS-A 5208に準拠した凍害試験の結果を表6に示した。試料Aは吸水率が最も低く、耐寒性も概ね良好であった。これは他の試料に比べ耐火度が低いため、表5に示すように体積収縮率約30%と焼結が進行し、緻密な状態になっているためと思われる。これに対し試料Bは吸水率が高く、凍害試験においても2サイクルで亀裂が生じるなど耐寒性に問題があった。これは耐火度が

高いことから焼結が不十分なため気孔が多く存在していることに起因しているものと考えられた。また、試料A、Bの混合試料では混合比72/25の場合のみで現行原料Cを下回る吸水率を示し、耐寒性もCに準じて良い結果を示した。他の混合割合ではA、Bの比率に応じて吸水率も変化した。概ね耐寒性もそれに準じた結果を示した。いずれの混合割合でも吸水率については、粘土がわら (JISA 5208、15%以下) 及び普通れんが (JIS R 1250、15%以下) の規格基準値を満しており、素地原料としての利用は可能である。

### 4 結 言

現行の窯業建材原料に代わる県産100%の原料を目標として県内で産出する2種の原料A、B及びその混合物について特性を調査した結果、焼成体の曲げ強さは、現行原料Cを上回った。また、熱収縮率は試料Aで現行原料Cに比べ約2.5倍と大きく単味での利用は不可能であるが、A、Bの混合試料ではそれぞれの性質が影響し、混合割合に応じて物性に変化が見られた。特に、40/60、25/75の混合比では現行原料Cと同等またはそれ以上の性状が得られた。吸水率は、いずれの試料でも日本工業規格の基準値を満足した。しかし、耐寒性については現行使用原料以上の性状を得ることは出来なかった。冬季が厳寒となる当県の自然環境を考慮した場合、高耐寒性原料の開発が不可欠であり、粒度の調整や多成分混合系の検討などが必要であると考えられる。

本研究を推進するうえで試料の調整法など多岐にわたる貴重なアドバイスや様々な面でのご指導して下さった愛知県瀬戸窯業技術センターの伊藤賢治 技師に感謝いたします。

### 文 献

- 1) 深谷英世, 加藤勝正, 伊藤征幸, 伊藤政巳: 愛知県常滑窯業技術センター報告 23 (1996)
- 2) 福永 均, 加藤勝正, 浅井邦雄, 服部金司: 愛知県常滑窯業技術センター報告 21 (1994)