

研究論文

低温焼成に適した粘土瓦用素地の調合と物性評価

深澤正芳*1、村瀬晴紀*2、松田喜樹*2

Preparation and Characterization of Clay Roof Tile Body
Suitable for Low-Temperature Firing

Masayoshi FUKAZAWA*1, Haruki MURASE*2 and Yoshiki MATSUDA*2

Tokoname Ceramic Research Center *1*2

瓦の焼成温度は 1,130°C であることから、50°C 低い温度でも曲げ強さ、吸水率などの物性値が 1,130°C 焼成と同等となるような低温焼成素地の開発を目指した。簡易調合試験として、卓上型ポットミルによる小ロットの乾式混合、成形、焼成試験を行った。陶器瓦用配合土にガラス粉あるいは粘土長石を添加したものは、焼成温度を低下する効果があった。これらを 10% 添加した調合物を押出成形し、1,080°C 焼成したものは、陶器瓦用配合土を 1,130°C で焼成した素地に近い物性が得られた。

1. はじめに

近年の化石燃料価格の高騰については、粘土瓦業界をはじめとする窯業界の大きな課題であり、製造コストの削減のためには燃料費を節約する必要がある。対策の一つとしては、焼成温度を下げることで消費エネルギー量を抑えることである。当センターにおいても低温焼成に関する研究が行われ、通常使用している粘土素地にマンガン酸化物を添加することで焼成温度を 50°C 低下させ、焼成時の消費電力を 12% 節約している¹⁾。そこで、本研究では瓦の焼成に必要な燃料を節約してコスト削減を図ることを目的として、粘土瓦用低温焼成素地の開発を行った。瓦の焼成温度は 1,130°C であることから、50°C 低い温度でも曲げ強さ、吸水率などの物性値が 1,130°C 焼成と同等となるような低温焼成素地の開発を目指した。焼成温度を低下させるため、既存の粘土瓦用素地に比較的安価な灰類、長石類などの添加物を混合することにより実験を行った。

2. 実験方法

2.1 簡易調合試験

2.1.1 使用原料

試験用素地は陶器瓦用配合土（以下「配合土」という。）を用いた。配合土は 110°C で乾燥後、1mm 以下に解砕した。添加剤は灰類、長石類などの炭酸塩あるいは珪酸塩を使用した。

2.1.2 調合

調合は、卓上型ポットミルを使用して行った。混合容器として内径 95mm、高さ 120mm のプラスチック容器

を用いた。配合土に各種添加剤を加えたものを 100g、直径 5mm のジルコニアボールを 500g 入れ、90rpm で 16 時間乾式混合した。配合土と添加剤の質量比は 9:1 とし、一部の添加剤については質量比を変化させて調合を行った。

2.1.3 成形

調合後の粉体に湿量基準で 17~20% の水分を添加し、磁製乳鉢で混合して練り土状とした。これらをステンレス製リングに詰め、金属板に挟んで約 0.3MPa で押し付けることにより厚さ 6mm の平板状にした。その後、内径 23mm の抜き型を用いて円形状に成形した。

2.1.4 焼成

成形体は 110°C で 16 時間以上乾燥後、小型電気炉を用いて最高温度 1,080°C で 1 時間焼成した。焼成体は、3 時間煮沸吸水率で評価した。

2.2 押出成形試験

2.2.1 使用原料

試験用素地は、配合土を乾燥させずにそのまま用いた。添加剤はガラス粉、粘土長石 2 種類を使用した。添加剤は 110°C で乾燥後、1mm 以下に解砕して使用した。また、原料については粒度分析、蛍光 X 線分析を行った。

2.2.2 調合

配合土に各種添加剤を添加し、アイリッヒミキサーで混合した。配合土と添加剤の質量比は乾燥状態換算で 9:1 とし、混合時間は 5 分とした。また、調合物については粒度分析を行った。

2.2.3 成形

混合物については、33mm×15mm の金型を用いた押

*1 常滑窯業技術センター 三河窯業試験場（現尾張繊維技術センター 素材開発室）

*2 常滑窯業技術センター 三河窯業試験場

出成形を行い、長さ 135mm の試験体を成形した。押出成形直後の試験体には、100mm 間隔で固定したノギスで刻印を打ち、乾燥収縮、焼成収縮の測定に用いた。

2.2.4 焼成

乾燥後の成形体は、15kW 電気炉で焼成した。焼成条件は昇温速度 60°C/h、最高温度 1,080°C で 1 時間保持とした。焼成体は、焼成収縮、3 時間煮沸吸水率、3 点曲げ強さ、凍害試験 (JIS A 5208 による。ただし繰り返し回数は 10 回) で評価した。

3. 実験結果及び考察

3.1 簡易調査試験における焼成体の吸水率

3.1.1 各種添加剤と焼成体吸水率

配合土に各種添加剤を 10% 添加した場合の 1,080°C 焼成体の吸水率を図 1 に示す。

合成イス灰、合成土灰、マグネサイトの灰類は、配合土に対して吸水率が大きく増加し、焼成温度の低下効果は見られなかった。汚泥焼却灰は配合土とほぼ同じ吸水率を示しており、先の灰類よりは、焼成時において素地と若干の反応をして焼結していると考えられる。

猿投長石、サバ粉砕物の長石類や、シラス、セリサイト、タルクの珪酸塩類は、配合土よりも若干吸水率が増加した。一方でベントナイトについては配合土よりも若干吸水率が減少し、粘土長石やガラス粉は明確に吸水率が減少した。

1,130°C 焼成における配合土の吸水率は 7.2%²⁾ であることから、1,080°C 焼成でこの値に近い吸水率となる調査が望ましい。従って 10% 添加において有効な添加物はガラス粉および粘土長石 B であった。

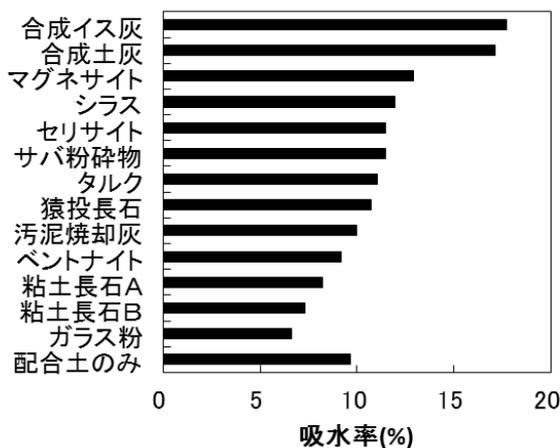


図 1 各種添加剤 10% 調合物と焼成体吸水率

3.1.2 汚泥焼却灰添加量と焼成体の吸水率

汚泥焼却灰添加量を変化させたときの焼成体の吸水率を図 2 に示す。汚泥焼却灰は 10% 以下の添加量では吸

水率が低下しなかったが、20% の添加で吸水率が低下した。さらに汚泥焼却灰を添加すれば、吸水率がさらに低下する可能性はあるが、汚泥焼却灰は可塑性が無い原料であるため、押出成形用の素地には多量に添加することはできない。10% 程度の添加量では吸水率が低下しなかったため、下水汚泥焼却灰は添加物として不適當であると考えられる。

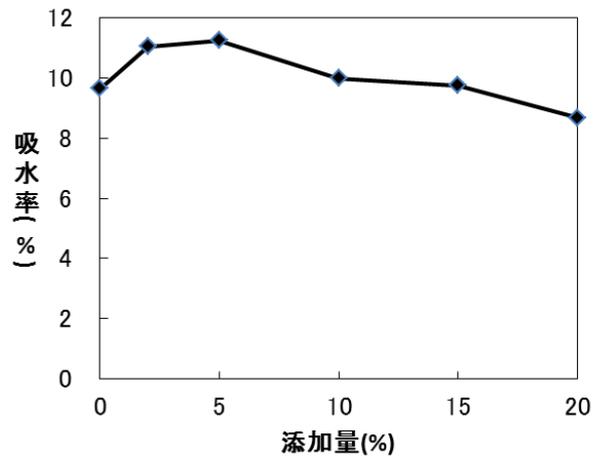


図 2 汚泥焼却灰添加量と焼成体吸水率

3.1.3 ガラス粉添加量と焼成体の吸水率

ガラス粉添加量を変化させたときの焼成体の吸水率を図 3 に示す。5% 以上の添加で吸水率が低下しはじめ、10% の添加で吸水率が 7% 以下に低下した。なお、10% を超えてガラス粉を添加しても、顕著な吸水率の低下は見られなかった。ガラス粉には可塑性が無いことから、押出成形を行う際の成形性を確保するためには、添加量をできる限り少なくすることが望ましい。このため、ガラス粉を添加剤として使用する場合には 10% の添加が最適である。

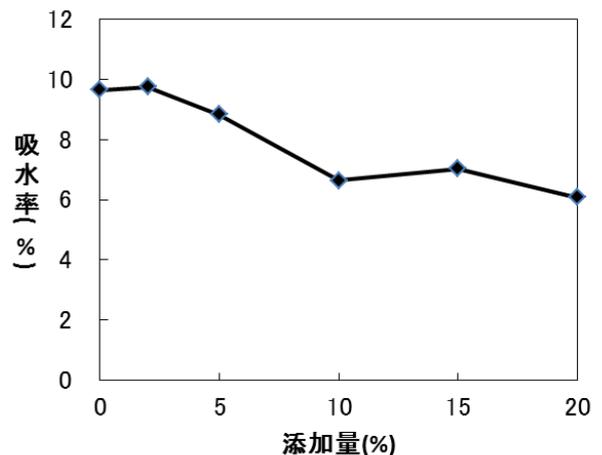


図 3 ガラス粉添加量と焼成体吸水率

3.2 低温焼成用調合物の評価

3.2.1 原料の蛍光X線分析

配合土、ガラス粉、粘土長石AおよびBの蛍光X線オーダー分析値を表1に示す。オーダー分析値は正確な分析値ではないものの、原料間の相対比較は可能である。配合土に対して、ガラス粉はNa₂O、CaOが多く、Al₂O₃が少ない特徴がある。粘土長石はNa₂O、K₂Oがやや多く、Al₂O₃がやや少なく、MgOが含まれていない。粘土長石Aは若干のFe₂O₃が含まれているため褐色を呈し、粘土長石BはFe₂O₃が少なく、白色である。いずれの添加剤も、配合土よりはNa₂Oなどのアルカリ成分が多いので、これらを添加することにより、低温で素地と反応して焼結すると考えられる。

表1 原料の蛍光X線分析値 (wt%)

試料	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O
配合土	67	27	1.0	0.5	0.3	1.7	0.2	2.2
ガラス粉	72	2.5	0.0	0.0	11	0.6	13	1.2
粘土長石A	69	21	0.9	0.1	0.7	0.0	3.4	5.8
粘土長石B	73	16	0.1	0.0	1.0	0.0	2.9	6.2

3.2.2 粒度分布

配合土、ガラス粉、粘土長石AおよびBの粒度分布を図4に示す。配合土は粒径0.5μmから500μm程度までの幅広い分布を示した。ガラス粉は30μmをピークとする0.9μmから200μm程度までの分布を示した。粘土長石AおよびBは、いずれも0.7μmをピークとする0.3μmから10μm程度までの分布を示した。

図5に配合土にガラス粉、粘土長石AあるいはBを10%添加した調合物の粒度分布を、配合土のみの場合と合わせて示す。ガラス粉を10%添加した調合物では10μm付近の粒子量が減少し、分布が二山に分かれ始めたが、配合土のみの場合と類似していた。粘土長石AあるいはBを10%添加した調合物では、両者はほぼ同じ分布を示した。配合土と比較した場合には、100μm付近

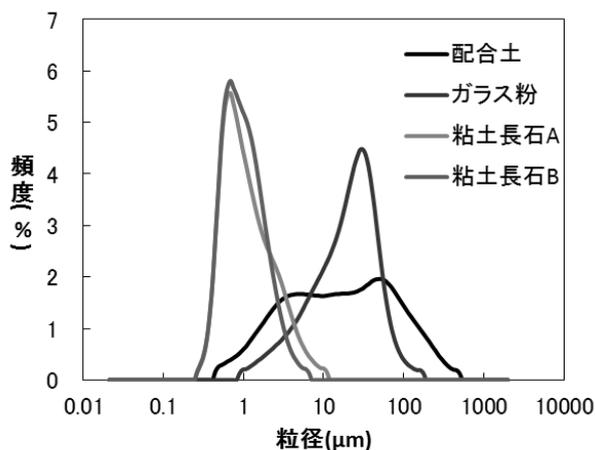


図4 原料の粒度分布

の粒子量が若干減少し、1μm付近の粒子量が若干増加した。いずれの調合物も粒度分布は配合土に似ているので、押出成形においては配合土のみの場合と類似の挙動を示すと推定される。

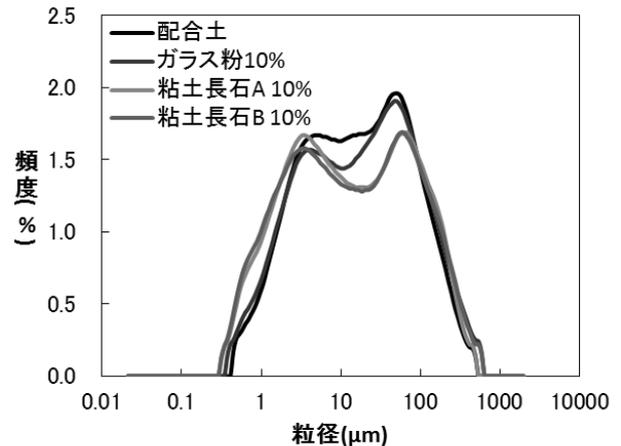


図5 調合物の粒度分布

3.2.3 収縮率

配合土にガラス粉、粘土長石AあるいはBを10%添加した調合物における、1,080℃焼成体の各種物性値を、配合土のみの場合と合わせて表2に示す。

乾燥収縮については、配合土にガラス粉や粘土長石A、Bを添加した調合物では、配合土のみよりも乾燥収縮が小さくなった。ガラス粉には粘土分が含まれず、粘土長石は配合土に比べて粘土分が少ないため、乾燥収縮が小さくなったものと考えられる。

焼成収縮については、配合土を1,080℃焼成したものは、1,130℃焼成した場合に比べて焼成収縮が小さく、焼結があまり進んでいない。これに対して、ガラス粉や粘土長石A、Bを添加した調合物を1,080℃で焼成したものは、配合土を1,130℃で焼成したのものよりも焼成収縮が大きくなり、低温で焼結が進んでいる。

全収縮については、これらの添加剤を加えて1,080℃で焼成したものは、配合土を1,130℃で焼成したものに近い値を示した。添加剤の調合量を調整することで全収縮の調整は可能であり、これにより成形用の金型を変更することなく、低温焼成瓦の製造が可能になると考えられる。

表2 1,080℃焼成体の物性値 (*は文献値²⁾)

調合	乾燥収縮 (%)	焼成収縮 (%)	全収縮 (%)	3h煮沸吸水率 (%)	曲げ強さ (MPa)
配合土	6.2	3.7	9.6	11.0	16.2
ガラス粉10%	5.6	5.1	10.4	8.4	17.6
粘土長石A10%	4.9	5.5	10.1	5.9	18.6
粘土長石B10%	4.8	5.7	10.3	5.6	19.5
*配合土 1130℃焼成	6.3	4.6	10.6	7.2	17.6

3.2.4 吸水率

焼成体の吸水率については、配合土を 1,080℃焼成したものは、1,130℃焼成したものより吸水率が高くなり、焼結があまり進んでいない。ガラス粉を 10%添加したものは、配合土を 1,080℃焼成したものより吸水率は低く、焼結が進んでいるものの、配合土を 1,130℃で焼成したものに比べて吸水率は若干高くなった。一方で粘土長石 A、B を 10%添加したものは、配合土を 1,130℃で焼成したのに対して吸水率が若干低くなった。ガラス粉では添加量を若干増やし、粘土長石 A、B では添加量を若干減らすことで吸水率は調整が可能であると考えられる。

3.2.5 曲げ強さ

焼成体の曲げ強さについては、配合土を 1,080℃焼成したものは、1,130℃焼成したものより強度が低くなった。一方で、ガラス粉を 10%添加したものは、配合土を 1,130℃で焼成したものと同一強度を示し、粘土長石 A、B を 10%添加したものはやや強度が増した。配合土にこれらを添加した調合物を 1,080℃で焼成したものは、配合土を 1,130℃で焼成したものと同等以上の曲げ強さがある。

3.2.6 耐凍害性

焼成体の凍害試験については、配合土にガラス粉や粘土長石 A、B を 10%添加した調合物を 1,080℃で焼成したものは、10 サイクル終了後においてひび割れおよびは

く離を認めなかった。耐凍害性については、配合土にこれらを添加した調合物を 1,080℃で焼成したものは、配合土のみを 1,130℃で焼成したものと同等の性能があると期待できる。

4. 結び

配合土にガラス粉あるいは粘土長石を添加したものは、焼成温度を低下する効果があり、配合土にガラス粉、粘土長石を 10%添加した調合物を押出成形し、1,080℃焼成したものは、配合土のみを 1,130℃で焼成した素地に近い物性が得られた。

謝辞

今回実験に使用した配合土は、株式会社カオリンからご提供いただきました。ここに深く感謝いたします。

文献

- 1) 片岡, 星, 生浦: 愛知県産業技術研究所研究報告, **6**, 62(2007)
- 2) 福原, 鈴木, 竹内, 松下: 愛知県産業技術研究所研究報告, **9**, 52(2010)