

## 研究論文

## 粘土瓦用低温焼成素地の開発

山口敏弘<sup>\*1</sup>、村瀬晴紀<sup>\*2</sup>、松田喜樹<sup>\*1</sup>

## Development of Clay Roof Tile Body Suitable for Low-Temperature Firing

Toshihiro YAMAGUCHI<sup>\*1</sup>, Haruki MURASE<sup>\*2</sup> and Yoshiki MATSUDA<sup>\*1</sup>Tokoname Ceramic Research Center <sup>\*1\*2</sup>

瓦の焼成時のコスト削減を目的として、ガラス粉を添加した粘土瓦用低温焼成素地を開発した。従来の瓦の焼成温度 1130℃に対し、1080℃での焼成においても物性値が同等以上となることを目標とした。押出成形試験において、配合土にガラス粉を 10mass%添加して 1080℃焼成したものは、ガラス粉の粒子径に因らず、1130℃焼成と同等以上の物性値となった。ガラス粉を添加した素地で試作した瓦には反りが発生したが、素地の押出性は良好であり、プレス成形の条件を調整することで改善可能と考えられる。

## 1. はじめに

焼成することで製品とする瓦の製造において、製造コストにおける燃料費の占める割合は非常に高い。特に、近年は燃料価格の高騰が続いており、喫緊の課題となっている。課題解決の一策として、低温焼成による燃料消費の低減がある。

当センターにおいても低温焼成に関する研究を行っており、粘土素地へのマンガネ酸化物の添加による 50℃の焼成温度の低下<sup>1)</sup>、粘土素地へのガラス粉または粘土長石の添加による 50℃の焼成温度の低下<sup>2)</sup>等の知見を得ている。

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、廃ガラス粉を添加した粘土瓦用低温焼成素地の開発を行った。現状の瓦の焼成温度は 1130℃であることから、50℃低い 1080℃での焼成でも吸水率、曲げ強さ等の物性値が 1130℃焼成と同等となるような低温焼成素地の開発及び、実サイズの瓦への適用を目指した。

## 2. 実験方法

## 2.1 押出成形試験

## 2.1.1 使用原料

粘土瓦用配合土として陶器瓦用配合土（株式会社カオリン製、以下、配合土）を用いた。配合土の水分量は、110℃で 24 時間の乾燥による重量減少より求めた。

添加する廃ガラス粉は、高浜工業株式会社製の粒子径の異なる 3 種類のガラス粉（微粉（平均粒子径 13.1 μm）、中粉（平均粒子径 31.8 μm）、粗粉（平均粒子径 62.5 μm））を用いた。

また、ガラス粉を添加しない配合土のみの試験片も比較対象として作製した。

## 2.1.2 調合

乾燥状態に換算した配合土に対し、ガラス粉の混合比が 10mass%となるよう、配合土 2750 g（水分量 19.7%、乾燥土換算 2208 g）に、ガラス粉 245 g を添加し、アイリッヒミキサーで混合した。混合時間は、ローター回転のみを 2 分間、ローター回転及び混合パン回転を 5 分間の計 7 分とした。

## 2.1.3 成形

この混合を 1 バッチとし、2 バッチ分をまとめ、33 mm × 15 mm の金型を用いた押出成形を行い、長さ 135 mm の成形体を作製した。押出成形直後の成形体には、収縮率測定用に 100 mm 間隔で固定したノギスで打刻した。

## 2.1.4 乾燥・焼成

成形体を自然乾燥で 72 時間、110℃で 24 時間乾燥させた後、15 kW 電気炉で焼成した。焼成条件は、昇温速度 60℃/h、1080℃で 1 時間保持とした。

また、配合土のみの試験片については、比較対象として従来の焼成条件である 1130℃で 1 時間保持の焼成も行った。

## 2.1.5 押出成形試験片の評価

得られた成形体、焼成体について、収縮率（乾燥、焼成、全）、吸水率（24 時間自然吸水、1 時間煮沸吸水）、3 点曲げ強さ（乾燥体、焼成体）、凍害試験（JIS A 5208 による。繰返し回数 5 回）、電子顕微鏡（SEM）による微細構造観察、エネルギー分散型 X 線分析（EDX）の元素マッピング（Ca）による配合土とガラス粉の混合状態の確認の各種評価を行った。

\*1 常滑窯業技術センター 三河窯業試験場 \*2 常滑窯業技術センター 三河窯業試験場（現あいちシンクロトロン光センター）

## 2.2 実サイズの瓦の試作

### 2.2.1 使用原料

配合土は、押出成形試験と同様の物を用いた。添加するガラス粉は、押出成形試験で結果が良好であった中粉（平均粒子径 31.8  $\mu\text{m}$ ）を用いた。

### 2.2.2 調合・成形・乾燥

調合・成形・乾燥は高浜工業株式会社にて実施した。

乾燥状態換算した配合土に対し、押出成形試験と同様にガラス粉の混合比が 10mass%となるよう、配合装置に配合土（水分量 19.8%）を 2600 g/min、ガラス粉を 232 g/min の条件で供給し、約 200 kg の調合物を得た。

これを真空土練機で混練・平板押出後、プレス成形を行い、平板瓦の成形体とした。

乾燥は、85°Cで 27 時間調湿乾燥を行った。

### 2.2.3 焼成

押出成形試験片と同様に、15 kW 電気炉を使用し、昇温速度 60°C/h、1080°Cで保持時間 1 時間で焼成した。平板瓦の瓦尻を下にし、立てて焼成した。

### 2.2.4 実サイズの瓦の評価

得られた焼成体については、外観観察、吸水率（24 時間自然吸水）の評価を行った。

## 3. 実験結果及び考察

### 3.1 押出成形試験片

#### 3.1.1 収縮率

配合土に各種ガラス粉を 10mass%添加した試料及び配合土のみの試料の、乾燥収縮率（成形後から乾燥後での収縮）、焼成収縮率（乾燥後から焼成後での収縮）、全収縮率（成形後から焼成後での収縮）を表 1 に示す。

乾燥収縮は、各種ガラス粉を添加した試験片は配合土のみの試験片よりも小さくなった。ガラス粉の水分量はほぼ 0 であり、乾燥時の収縮が起きにくいため小さくなったものと考えられる。一方、焼成収縮は各種ガラス粉を添加した方が大きくなっており、添加によって焼結が促進されたと考えられる。また、全収縮はガラス粉添加の影響が少なく、配合土のみの試験片を 1130°Cで焼成した試験片とほぼ同等であった。

表 1 収縮率 (n 数 : 5)

	乾燥収縮率	焼成収縮率	全収縮率
	%	%	%
配合土のみ (1130°C焼成)	6.4	3.9	10.1
配合土のみ	6.4	3.4	9.6
微粉ガラス粉添加	6.0	4.9	10.6
中粉ガラス粉添加	5.7	4.8	10.2
粗粉ガラス粉添加	6.0	4.2	9.9

### 3.1.2 吸水率

配合土に各種ガラス粉を 10mass%添加した焼成体及び配合土のみの焼成体の、24 時間自然吸水率、1 時間煮沸吸水率を表 2 に示す。

配合土のみを 1130°Cで焼成した試料と比較して、配合土のみを 1080°Cで焼成した試料は焼成が進まず、いずれの吸水率も増加した。それに対して、各種ガラス粉を添加した試料は吸水率が低下しており、添加によって焼成が促進されたと考えられる。

また、より微細なガラス粉を添加した方が吸水率が低下しており、焼成を促進する効果が高いと考えられる。

表 2 吸水率 (n 数 : 5)

	24 時間自然吸水率	1 時間煮沸吸水率
	%	%
配合土のみ (1130°C焼成)	6.4	9.0
配合土のみ	8.6	11.0
微粉ガラス粉添加	4.3	7.2
中粉ガラス粉添加	4.3	7.3
粗粉ガラス粉添加	5.2	8.6

### 3.1.3 3 点曲げ強さ

配合土に各種ガラス粉を 10mass%添加した試料及び配合土のみの試料の、乾燥体及び焼成体の 3 点曲げ強さを表 3 に示す。試験条件は、試験片支持具 : 直径 10 mm 鋼製丸棒、支持間距離 : 10 mm、クロスヘッド速度 : 1 mm/min とした。n 数は、乾燥体 : 3、焼成体 : 5 とした。

乾燥体の曲げ強さは、配合土のみが 5.9 MPa であったのに対して、ガラス粉を添加した試料は 6.7~7.2 MPa に向上した。添加によって乾燥体の強度は低下せず、製造工程でのハンドリングへの影響は無いと思われる。

焼成体の曲げ強さは吸水率と同様の傾向であった。配合土のみを 1080°Cで焼成した試料の曲げ強さが低下したのに対し、各種ガラス粉を添加した試料は、配合土を 1130°Cで焼成した試料よりも曲げ強さが向上した。添加によって焼成が促進されたと考えられる。

表 3 3 点曲げ強さ (n 数 乾燥体 : 3、焼成体 : 5)

	乾燥体	焼成体
	MPa	MPa
配合土のみ (1130°C焼成)	5.9	17.6 <sup>3)</sup>
配合土のみ	5.9	15.0
微粉ガラス粉添加	7.0	19.2
中粉ガラス粉添加	7.2	19.0
粗粉ガラス粉添加	6.7	18.5

また、より微細なガラス粉を添加した方が焼成体の曲げ強さが向上しており、焼成を促進する効果が高いと考えられる。

### 3.1.4 凍害試験

配合土に各種ガラス粉を 10mass% 添加した 1080℃ 焼成体は、5 サイクル終了後においてひび割れ及びはく離を認めなかった。耐凍害性については、配合土のみを 1130℃ で焼成したものと同等の性能があると思われる。

### 3.1.5 微細構造観察及び混合状態の確認

押出成形試験片の作製では、アイリッヒミキサーで配合土と各種ガラス粉を混合している。この混合による均質さの確認として、EDX による元素マッピングを行った。

表 4 に示す配合土とガラス粉の化学組成（蛍光 X 線による）と、装置の検出感度を考慮し、Ca の分布を確認の指標とした。

配合土のみの 1130℃ 焼成体及び、配合土に各種ガラス粉を 10mass% 添加した焼成体の破面の SEM 像と、同一視野の EDX による Ca の分布を図 3～図 10 に示す。

配合土のみの微細構造（図 3）に対し、ガラス粉を添加した場合の微細構造（図 5、7、9）に大きな変化は見られなかった。Ca の分布について、配合土のみの焼成体（図 4）は、化学組成として装置で有意に検出できる範囲を下回っており、分布に濃淡は生じなかった。

一方、ガラス粉を添加した焼成体（図 6、図 8、図 10）では、Ca が強く検出される 10 μm 前後の領域が散見された（図中、輝度の高い箇所）。ガラス粉を添加した焼成体の吸水率や 3 点曲げ強さが向上していることから判断すると、観察されたガラス成分の偏りは、物性を低減させる要因にはなっていないと思われる。

表 4 化学組成 (mass%)

	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
配合土	67	27	1.0	0.5	0.3	1.7	0.2	2.2
ガラス粉	66	2	0.4	0.1	14.7	0.9	12.5	1.9

## 3.2 実サイズの瓦の試作

### 3.2.1 外観観察

平板瓦の乾燥体には反りがあり、焼成後も反りが残った。真空土練機からの押出性は良好であったため、プレス成形の条件をさらに検討することで、改善可能と考えられる。

### 3.2.2 吸水率

平板瓦の 24 時間自然吸水率は 4.6% であった。これは、押出成形試験片の 4.3% とほぼ同等の値である。このことから、試験片から実サイズの瓦へとスケールアップしても、焼成不足が起きる可能性は低いと考えられる。

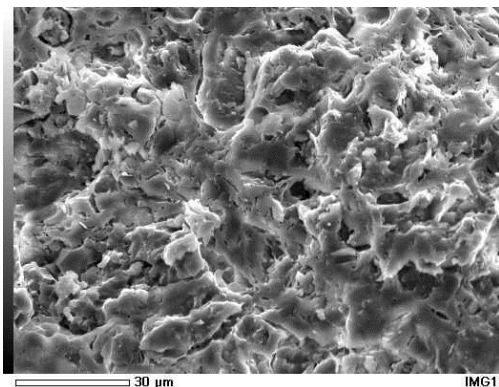


図 3 配合土のみ（1130℃焼成）の SEM 像

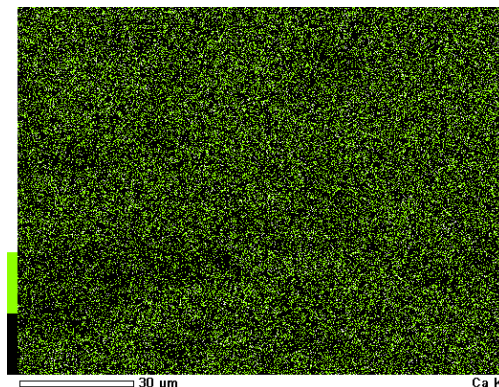


図 4 配合土のみ（1130℃焼成）の Ca 分布

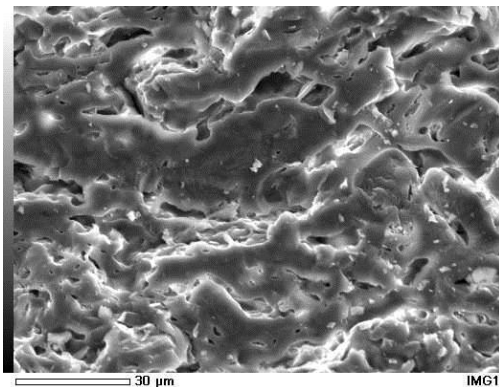


図 5 微粉ガラス粉添加（1080℃焼成）の SEM 像

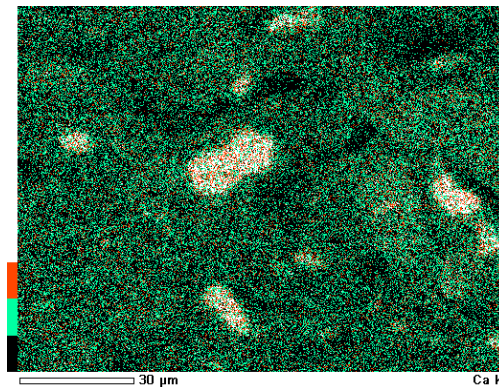


図 6 微粉ガラス粉添加（1080℃焼成）の Ca 分布

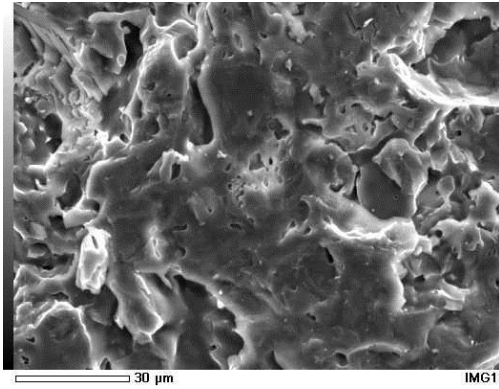


図7 中粉ガラス粉添加（1080℃焼成）のSEM像

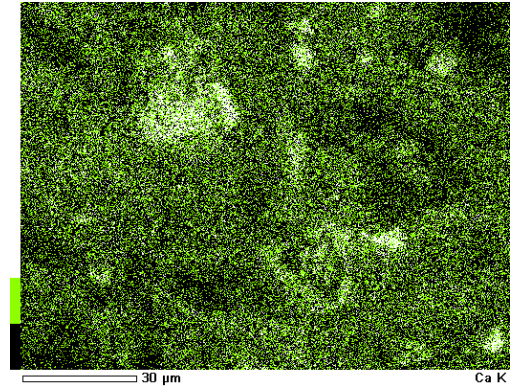


図8 中粉ガラス粉添加（1080℃焼成）のCa分布

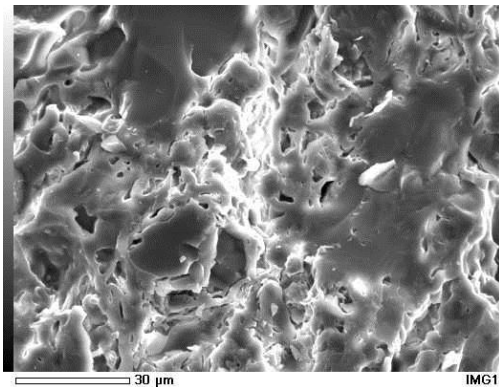


図9 粗粉ガラス粉添加（1080℃焼成）のSEM像

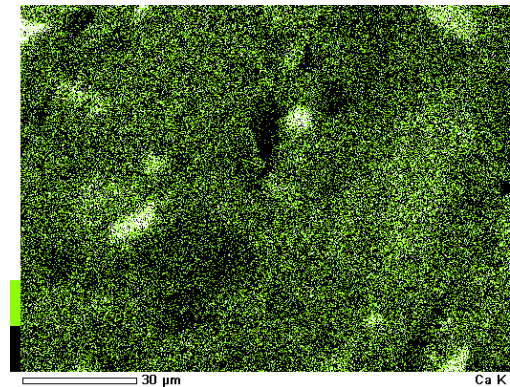


図10 粗粉ガラス粉添加（1080℃焼成）のCa分布

#### 4. 結び

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、廃ガラス粉を添加した粘土瓦用低温焼成素地の開発及び実サイズの瓦への適用を検討した。

その結果、押出成形試験において、ガラス粉を10mass%添加することで、焼成温度を従来の1130℃から50℃低い1080℃としても、吸水率や曲げ強さ等の物性値は1130℃焼成と同等もしくはそれ以上となることが分かった。また、より微細なガラス粉を添加した方が物性値が向上しており、焼成を促進する効果が高いと考えられる。

押出成形試験で結果が良好であったガラス粉を用いて平板瓦の試作を行ったところ、プレス成形の条件をさらに検討することで、開発した素地を実サイズの瓦に適用可能であることが分かった。

#### 謝辞

今回使用した配合土は株式会社カオリン様から、ガラス粉は高浜工業株式会社様からご提供いただきました。

また、瓦の試作については高浜工業株式会社様にご協力いただきました。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) 深澤, 村瀬, 松田: あいち産業科学技術総合センター研究報告, **3**, 44(2014)
- 3) 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)