

# 非可塑性原料の粉碎処理が押出成形能に及ぼす影響

竹内 繁樹 深澤 正芳 山崎 達夫

The Influence of Crushing/Milling Nonplastic Materials on the Extrusion Behavior  
by

Shigeki TAKEUCHI, Masayoshi FUKAZAWA and Tatsuo YAMAZAKI

非可塑性原料の押出成形能の向上を図るため、粉碎処理が押出成形能に及ぼす影響を調べた。頁岩粘土や板戸ゼオライト及び下水道汚泥溶融スラグをエッジランナーやポットミルで乾式粉碎し、3～4段階の粒度に調製した。頁岩粘土は単味、板戸ゼオライトは可塑性粘土との調合物、下水道汚泥溶融スラグは有機バインダーとの調合物を用いて幅35mm、厚さ5mmの平板状に押出成形し、その成形能を調べた。板戸ゼオライトと下水道汚泥溶融スラグでは、粒度が細くなると押出成形能が向上することが分かった。頁岩粘土は押出成形試験においてはいずれの粒度も良好な成形性を示したので、ベッファーコルン試験を行ったところ、粒度が細くなるに従い可塑性が増していることが確認できた。また、押出成形能が向上した板戸ゼオライトと下水道汚泥溶融スラグの調合に、少量の有機バインダーを添加することにより、隔壁の厚さ0.5mm、30×30mm、144室のハニカムの成形が可能となった。

## 1. まえがき

可塑性に富む良質な原料の枯渇化やコスト引き下げのために、可塑性に乏しい原料を使用せざるを得ない状況にある。また、廃棄物の利用という社会的要請から可塑性のない廃棄物を使用する場面も増えてきている。これらの原料を用いて押出成形する場合、その可塑性の乏しさから成形が困難であったり、切れ等の欠点が発生することもある。そこで、非可塑性原料の押出成形能の向上を図るため、粉碎処理が押出成形能に及ぼす影響を調べた。

粒度分布をもつ。頁岩粘土は、標準ふるいにより乾式法でふるい分けした。板戸ゼオライト及び下水道汚泥溶融スラグは、標準ふるいによる湿式法のふるい分けとレーザー回折散乱法により粒度測定を行った。この粉碎物を表4に示す調合を行い、押出成形試験に用いた。なお、板戸ゼオライトとの調合に用いた可塑性粘土は粉碎処理は行っていない。また、下水道汚泥溶融スラグの調合には、有機バインダーとしてメトローズ（メチルセルロース系）を用いた。

## 2. 実験方法

### 2.1 非可塑性原料の粉碎処理及び調合

塊状の頁岩粘土や板戸ゼオライト及び粒状の下水道汚泥溶融スラグを出発原料とした。そして、それぞれを表1に示す乾式の粉碎方法を用いて、3～4段階の粒度となるように調製した。得られた粉碎物は表2及び3に示す

表1 使用原料及び粉碎方法

原 料	粉 碎 方 法
頁岩粘土	ロールクラッシャー 及びエッジランナー
板戸ゼオライト	ロールクラッシャー 及びエッジランナー
下水道汚泥溶融スラグ	乾式ポットミル

表2 頁岩粘土の粉碎物

粒径 (μm)	(% )					
	<45	45-125	125-250	250-500	500-1000	1000<
頁岩粘土 I	29.6	23.3	14.9	16.1	16.1	0.0
頁岩粘土 II	33.2	18.1	14.0	21.9	12.8	0.0
頁岩粘土 III	59.6	27.1	13.3	0.0	0.0	0.0
頁岩粘土 IV	69.2	30.3	0.5	0.0	0.0	0.0

表3 板戸ゼオライト及び下水道汚泥溶融スラグの粉碎物

粒 径 ( $\mu\text{m}$ )	(%)									
	<2	2-5	5-10	10-20	20-45	45-125	125-250	250-500	500-1000	1000<
板戸ゼオライト I	9.4	13.7	12.6	10.3	1.2	5.7	12.4	26.4	8.3	0.0
板戸ゼオライト II	14.0	19.8	16.5	11.5	1.1	16.2	20.6	0.3	0.0	0.0
板戸ゼオライト III	15.0	19.2	20.4	22.7	3.0	19.7	0.0	0.0	0.0	0.0
下水道汚泥溶融スラグ I	3.1	4.7	6.6	10.8	9.4	36.0	26.6	2.8	0.0	0.0
下水道汚泥溶融スラグ II	4.7	7.2	10.0	16.5	14.4	43.3	3.9	0.0	0.0	0.0
下水道汚泥溶融スラグ III	21.3	22.0	31.0	24.6	0.5	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
可塑性粘土	34.3	51.6	11.3	0.5	0.0	2.1	0.2	0.0	0.0	0.0

## 2.2 押出成形試験

押出成形試験は、一軸式の押出成形機を使用して、幅35mm、厚さ5mmの平板状に成形し、その成形能を以下の2項目により評価した。

1) 成形が可能か

2) 成形体に切れが発生するか

また、押出成形機を通した練土で、ベッファーコロン試験<sup>9)</sup>を行った。

## 2.3 乾燥・焼成物性の測定

表4の調合物を、2.2と同じ成形機で、幅33mm、長さ135mm、厚さ15mmの直方体に成形した。この試験体を110℃、17時間乾燥し、乾燥収縮率及び曲げ強さを測定した。

また、2～3段階の焼成温度で焼成し、焼成収縮率及び曲げ強さを測定した。焼成条件は、昇温速度100℃/hで、所定の焼成温度で1時間保持後、室温まで放冷した。

ゼオライトや頁岩粘土は吸湿性をもつ<sup>9), 3)</sup>ことから、頁岩粘土A1～4及び板戸ゼオライト系B1～3の焼成

体で吸湿率を調べた。吸湿率測定用試験体は、焼成後炉内が100℃以下になったとき、試験体を取り出しシリカゲルにより除湿したデシケータ中で室温まで放冷した。その初期重量を測定した後、相対湿度を12.6～97%まで6段階に調整したデシケータ中で、吸湿率の変化を24、72、168時間後に測定した。

## 2.4 ハニカムの試作

板戸ゼオライト及び下水道汚泥溶融スラグの調合物の中から押出成形能の向上した調合をもとに、ハニカムの成形を試みた。ハニカムは、隔壁の厚さ0.5mm、30×30mm、144室の金型を使用した。

## 3. 実験結果及び考察

### 3.1 押出成形試験

表4の調合物を幅35mm、厚さ5mmの平板状に成形し、押出成形能を評価した結果を表5に示す。

頁岩粘土A1～4では、押出成形はいずれも可能であり切れも発生しなかった。板戸ゼオライト系B1では、成形体に犬歯(dog's teeth)と呼ばれる切れ<sup>9)</sup>が発生した。B2より細かい粒度では発生しなくなり、押出成形能が向上していることが確認できた。下水道汚泥溶融スラグC1は、押出成形が困難であったが、C2より細かい粒度では成形が可能となり、押出成形能が向上していることが確認できた。

頁岩粘土A1～4でのベッファーコロン試験の結果を図1に示す。A1～4では粒度が細くなるに従い、ベッファーコロンの成形水分が大きくなっていることから、可塑性が増していることが確認できた。A1～3でのベッファーコロンの成形水分の変化は小さいが、A4ではA1～3に比べて約1%大きくなった。このことは、A1～3では頁岩粘土の粒子が押出成形機の中でこなさ

表4 調 合 割 合

試料名	調 合
A1～4	頁岩粘土I～IVを単味で使用 水分は外割約28%
B1～3	板戸ゼオライトI～IIIをゼオライト： 可塑性粘土=6：4の比率で調合 水分は外割約40%
C1～3	下水道汚泥溶融スラグI～IIIに有機バ インダーを外割2%添加 水分は外割約15%

表5 押出成形能の評価と乾燥体の物性

試料名	成形時の欠点	乾燥収縮率 (%)	曲げ強さ (MPa)
A 1	なし	7.9	4.4
A 2	なし	7.6	4.8
A 3	なし	7.9	5.3
A 4	なし	8.2	5.8
B 1	切れが発生	4.6	1.1
B 2	なし	4.8	1.7
B 3	なし	5.6	1.9
C 1	成形困難	1.6	6.3
C 2	なし	1.5	6.1
C 3	なし	2.2	12.8

れることにより、ベッファーコルンの成形水分の変化が小さかったと考えられる。そして、A 4まで粒度が細くなると粉碎処理の効果が現れたと考えられる。

板戸ゼオライト系B 1～3のベッファーコルン試験の結果を図2に示す。B 1とB 3が、ベッファーコルンの成形水分はほとんど同じであり、グラフの傾きも差がない。これに対し、B 1に比べ押出成形能が向上しているB 2の方が、ベッファーコルンの成形水分が小さくなるという傾向を示した。

下水道汚泥溶融スラグC 1～3のベッファーコルン試験の結果を図3に示す。他の原料との比較のため、ベッファーコルン試験を行ったが、試験体を落錘により変形させると弾性的挙動を示した。これは、添加した有機バインダーによるものと考えられる。従って、ベッファーコルン試験による評価は不適当と思われる。

### 3.2 乾燥・焼成物性

各調合物の成形体で乾燥・焼成物性を測定した結果を表5及び6に示す。

頁岩粘土A 1～4では、焼成体が吸湿膨張をしたため、表中の焼成収縮率のマイナス表記は膨張率を表す。

頁岩粘土A 1～4、板戸ゼオライト系B 1～3及び下水道汚泥溶融スラグC 1～3では、粒度が細くなるに従い乾燥体の曲げ強さは大きくなった。

頁岩粘土やゼオライトの成形体は、乾燥後に吸湿膨張により割れる可能性がある<sup>9)</sup>。そこで、110℃、17時間乾燥後、室内に放置し割れが発生するかどうかを調べたが、いずれの調合でも割れは発生しなかった。

頁岩粘土A 1～4の焼成体の曲げ強さは、粒度が細くなるに従い大きくなった。しかし、A 2～4の吸水率

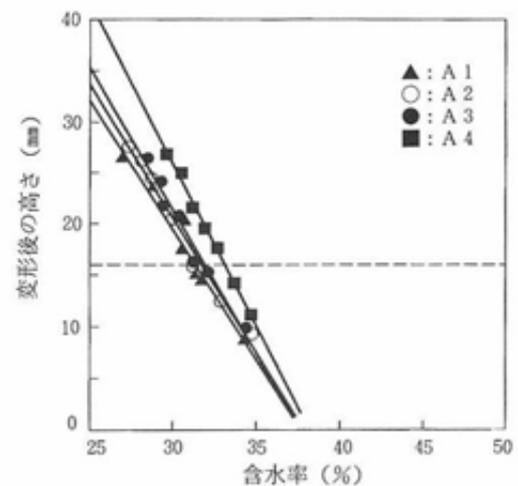


図1 頁岩粘土のベッファーコルンの成形水分

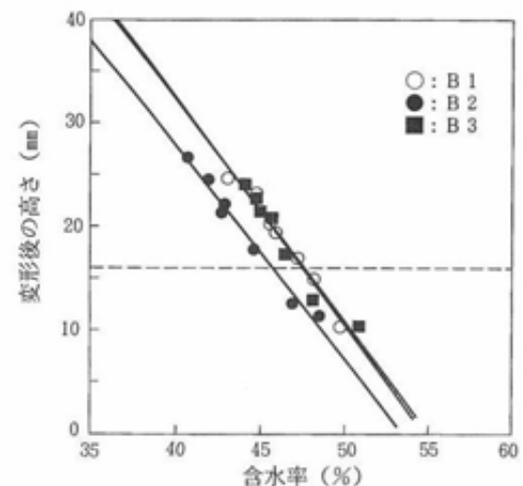


図2 板戸ゼオライトのベッファーコルンの成形水分

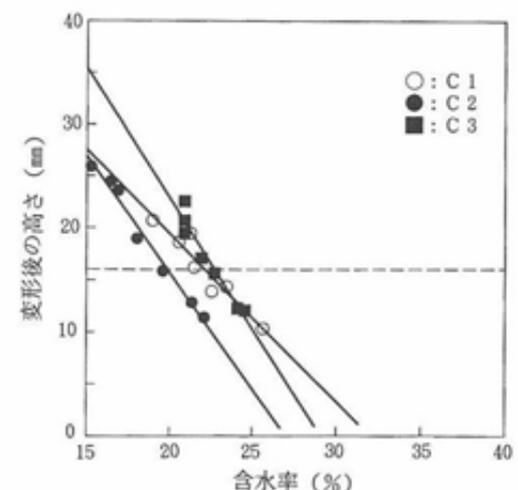


図3 下水道汚泥溶融スラグのベッファーコルンの成形水分

がほとんど変化していないことから、焼結による緻密化の効果は小さいと思われる。従って、試験体中で破壊の起点となる潜在欠陥の寸法が非可塑性原料の粒度に依存していて、粉碎により粒度が細くなるに従い曲げ強さが大きくなったと考えられる。

板戸ゼオライト系B 1～3の焼成体の曲げ強さも粒度

表6 焼成体の物性

試料名	焼成収縮率 (%)			曲げ強さ (MPa)			吸水率 (%)			吸湿率 (%)
	700°C	800°C		700°C	800°C		700°C	800°C		700°C
A 1	-0.3	-0.4		3.4	5.2		19.1	19.7		0.66
A 2	-0.3	-0.3		4.4	6.3		17.5	17.8		0.66
A 3	-0.3	-0.3		4.8	6.9		17.8	17.9		0.65
A 4	-0.4	-0.3		5.3	7.8		18.0	18.0		0.69
	800°C	850°C	900°C	800°C	850°C	900°C	800°C	850°C	900°C	800°C
B 1	0.0	0.0	0.5	1.8	1.9	2.4	36.6	36.5	36.0	1.44
B 2	0.1	0.2	1.0	3.1	3.7	5.6	33.3	33.3	33.0	1.44
B 3	0.1	0.1	0.9	4.6	4.8	7.7	31.9	30.9	29.5	1.84
	1050°C	1100°C	1150°C	1050°C	1100°C	1150°C	1050°C	1100°C	1150°C	
C 1	1.1	1.4	5.1	9.0	12.4	31.0	15.5	14.6	8.9	
C 2	1.2	1.7	6.3	11.7	15.1	36.1	17.4	17.2	9.4	
C 3	5.7	7.1	10.7	52.0	51.3	70.1	8.2	7.2	0.0	

吸湿率は相対湿度74%、24時間後での値

が細くなるに従い大きくなった。しかし、頁岩粘土の場合と異なり、粒度が細くなると吸水率も小さくなっていることから、焼結による緻密化と潜在欠陥寸法の減少が寄与していると考えられる。

下水道汚泥溶融スラグC 1～3では、粒度が細くなるに従い、曲げ強さは大きくなり、吸水率も小さくなった。特に、C 3はC 2に比べ十分粒度が細かいため、C 1、C 2よりも焼結による緻密化が顕著で<sup>9)</sup>、1150°C焼成では発泡がみられた。

吸湿率の測定結果例を図4、5及び表6に示す。

頁岩粘土A 1～4では粒度が変化しても、吸湿率の変化は小さかった。板戸ゼオライト系B 1～3では粒度が細くなると吸湿率が大きくなった。この挙動の違いは、

単味で調合した頁岩粘土に対して、板戸ゼオライトは可塑性粘土と調合していることから、粒度が細くなると素地表面に露出して吸湿性に寄与するゼオライト粒子の表面積が増すためと考えられる。

### 3.3 ハニカムの試作

板戸ゼオライト系B 2及び下水道汚泥溶融スラグC 3の調合をもとに、ハニカム成形を行った。B 2は総合バインダーB<sup>3)</sup>を3%添加、C 3は有機バインダーの添加量を2%から4%に増やすことにより、格子切れ<sup>7)</sup>は発生しなくなり、良好な成形体を得ることができた。ハニカムの焼成体を写真1、2に示す。

板戸ゼオライト系のハニカムを800°Cで焼成し吸湿率を測定した。その結果を図6に示す。表6のB 2が1.44%

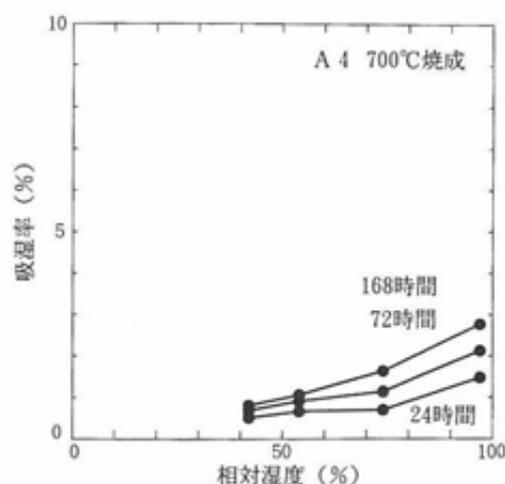


図4 頁岩粘土の吸湿率

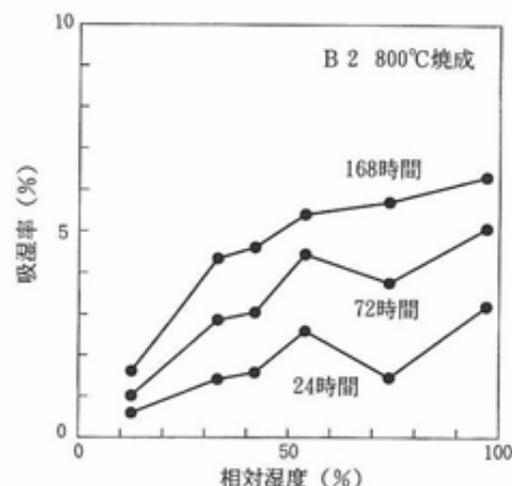


図5 板戸ゼオライト系の吸湿率

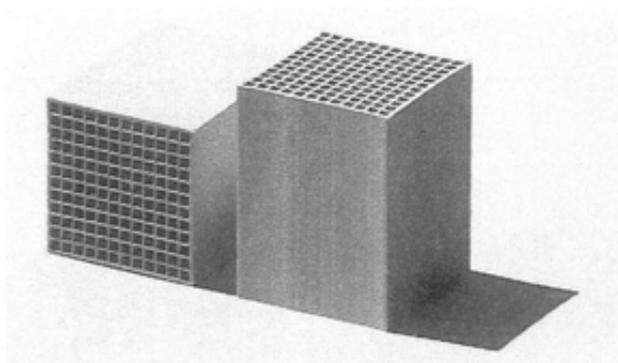


写真1 板戸ゼオライト(B2)+総合バインダーB 3%

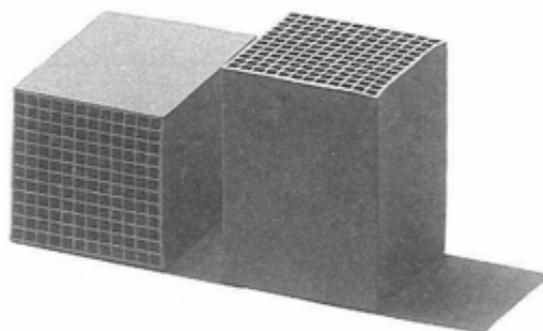


写真2 下水道汚泥溶融スラグ(C3)+有機バインダー2%

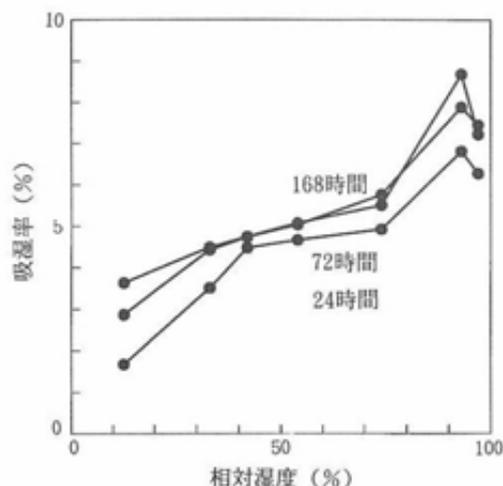


図6 ハニカムの吸湿率

であるのに対して、ハニカムでは4.93%と高い吸湿率が得られた。また、吸湿率の時間による変化は、特に相対湿度の高い場合は24、72、168時間後での変化は小さい。これは、ハニカムに成形したことにより空気と接触する表面積が増えたためであり、吸湿のレスポンスに優れた建材への応用が期待できる。

十分に粒度が細かい下水道汚泥溶融スラグは、ハニカム成形が可能であり、1050~1100℃で容易に焼結することから、ハニカム形状による軽量性や断熱性を有する建材としての利用が期待できる。

#### 4. まとめ

非可塑性原料を粉碎処理し、その粒度が押出成形能に及ぼす影響について調べた結果、以下のことが分かった。

(1) 板戸ゼオライトと下水道汚泥溶融スラグでは粉碎処理により粒度が細くなると、押出成形能が向上することが分かった。頁岩粘土ではベッファーコロン試験により、粒度が細くなると、ベッファーコロンの成形水分が

大きくなり可塑性が増していることが確認できた。

(2) 頁岩粘土、板戸ゼオライト及び下水道汚泥溶融スラグのいずれも粒度が細くなるに従い、乾燥体の曲げ強さと焼成体の曲げ強さは大きくなった。

(3) 板戸ゼオライトでは、粒度が細くなるに従い吸湿率が大きくなった。一方、頁岩粘土では、粒度が変化しても吸湿率の変化は小さかった。この挙動の違いは、頁岩粘土が単味であるのに対して、板戸ゼオライトが可塑性粘土と調合したことから生じたと考えられる。

(4) 板戸ゼオライト及び下水道汚泥溶融スラグの調合で押出成形能が向上したものをもとに、ハニカム成形を行い、良好な成形体を得た。板戸ゼオライトのハニカムを焼成し吸湿率について調べた結果、高い吸湿率をもつことが分かり、吸湿のレスポンスに優れた建材への応用が期待できる。

#### 文献

- 1) DKG-Richtlinie 1.5 (Juli 1981) :Ceram. forum. Int., Ber. Dtsch. Keram. Ges., 58, 311 (1981).
- 2) 深谷英世, 山口知宏, 山崎達夫, 伊藤政巳, 愛知県常滑窯業技術センター報告, 21, 1-5 (1994).
- 3) 山崎達夫, 山口知宏, 深谷英世, 伊藤政巳, 愛知県常滑窯業技術センター報告, 21, 6-9 (1994).
- 4) 素木洋一, セラミック製造プロセスII, 技法堂出版 (1978) p. 45.
- 5) 深澤正芳, 山崎達夫, 久野徹, 愛知県常滑窯業技術センター報告, 24, 19-24 (1997).
- 6) 深澤正芳, 竹内繁樹, 山崎達夫, 愛知県常滑窯業技術センター報告, 25, 47-49 (1998).
- 7) 松久忠彰, 粘土ハンドブック第2版, 日本粘土学会編, 技報堂出版 (1987) pp. 862-868.