

研究論文

微粉碎シャモットを利用したリサイクル瓦の実用化研究

福原 徹*¹、松下福三*¹、永縄勇人*¹、松田喜樹*²、村瀬晴紀*³、
三井真司*⁴、伊藤恭一*⁴、青山直恵*⁴、稲吉辰夫*⁵、鈴木一正*⁵

Practical Study of Recycled Roofing Tiles Using Fine-Milled Shamotte

Toru FUKUHARA*¹, Fukuzo MATSUSHITA*¹, Hayato NAGANAWA*¹,
Yoshiki MATSUDA*², Haruki MURASE*³, Shinji MITSUI*⁴, Kyoichi ITO*⁴,
Naoe AOYAMA*⁴, Tatsuo INAYOSHI*⁵ and Kazumasa SUZUKI*⁵

Tokoname Ceramic Research Center *^{1~3}

Tsuruya Co.,Ltd. *⁴

Takahama Industry Co.,Ltd. *⁵

微粉碎シャモットを配合したリサイクル瓦の実用化を検討し、微粉碎シャモットの粒径及び配合量がリサイクル瓦の物性に与える影響を調べた。その結果、微粉碎シャモットの粒径が小さい方が焼き締まりが進み、曲げ破壊荷重も大きくなった。微粉碎シャモットの配合量は50wt%までは曲げ破壊荷重は大きくなり、シャモット配合量60wt%では曲げ破壊荷重は小さくなった。

1. はじめに

建設工事（新築、増改築、解体）から発生する廃瓦のほとんどが埋立処分され、リサイクルされるケースは極めて少ない。一方で、粘土瓦の主原料である粘土についてはその枯渇が懸念される現状がある。

そこで、愛知県、高浜工業(株)及び愛知工業大学が共有するリサイクル瓦に関する特許¹⁾を活用し、微粉碎化した廃棄瓦シャモットを配合したリサイクル瓦の実用化を検討した。実用化に向けた課題には、成形性の改善、軽量化²⁾³⁾などがあるが、本研究ではリサイクル瓦の曲げ破壊強度20%向上による10%軽量化を目標とした。具体的には、微粉碎シャモットの粒径及び配合量がリサイクル瓦の物性に与える影響について調べた。

2. 実験方法

2.1 微粉碎シャモットの作製方法

愛知県陶器瓦工業組合から入手した廃棄瓦シャモットを高浜工業(株)の縦型ボールミルにより乾式微粉碎処理した⁴⁾。使用しているボールはアルミナ製で、粉碎助剤は使用していない。微粉碎シャモットは、目標とする平均粒径 (A: 5 μ m、B: 10 μ m、C: 15 μ m) の3種類に調製した。シャモットの粒度は、粒度分析装置 ((株)島津製作所製 SA-CP3L、日機装(株)製 MT3300EX II) によ

り測定し、粒度解析を行った。また、微粉碎処理前後のシャモットの化学分析を蛍光 X 線分析装置で測定した。

2.2 リサイクル瓦素地の作製方法

三州瓦用配合粘土 ((株)丸長製) に乾式微粉碎したシャモットを 40、50、60wt%配合して混合した。微粉碎シャモットは粒径の異なる3種類を使用した。なお、成形助剤として有機系のリグニン(日本製紙ケミカル(株))と無機系のベントナイト ((株)ホージュン) を所定量添加した。そして真空押出成形機により、棒状試験片 (40×20×120mm) を成形し、乾燥後、所定温度で焼成した。なお、焼成温度は 1100℃、1130℃及び 1160℃とした(現状の三州瓦の焼成温度は 1130℃)。焼成品の物性評価として全収縮率、吸水率、曲げ破壊荷重を測定した。全収縮率は成形後と焼成後の試験片寸法を測定して算出した。吸水率は2時間吸水法により測定した。曲げ破壊荷重は万能試験機を用い、3点曲げ法により測定した。

3. 実験結果及び考察

3.1 微粉碎シャモット

作製した微粉碎シャモット3種類の粒度測定の結果 ((株)島津製作所製 SA-CP3L)、平均粒径はA: 8.3 μ m、B: 10.3 μ m、C: 14.6 μ mとなった。目標とする微粉碎シャモットの平均粒径は5、10、15 μ mの3水準であったが、

*1 常滑窯業技術センター 材料開発室 *2 常滑窯業技術センター 三河窯業試験場 *3 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) *4 株式会社鶴弥 *5 高浜工業株式会社

平均粒径 $5\mu\text{m}$ の微粉砕は非常に難しかった。次に、粒度解析結果（日機装(株)製MT3300EX II）を図1に示す。粒子解析モデルは、粒子形状：非球形、粒子屈折率：1.60とした。微粉砕前のシャモットは $60\mu\text{m}$ 付近が最大頻度となっていたが、微粉砕が進むと、最大頻度が $40\mu\text{m}$ 、 $30\mu\text{m}$ 、 $17\mu\text{m}$ と小さくなった。また、微粉砕が進むに従い、約 $3\mu\text{m}$ をピークとする細かいシャモットの量が増えることがわかった。

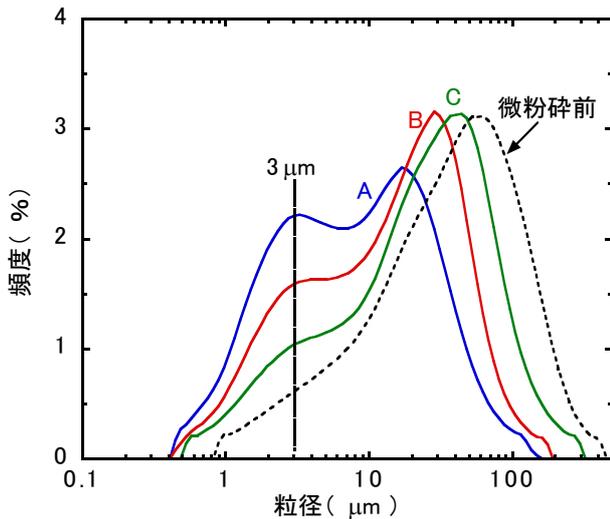


図1 微粉砕シャモット(A、B、C)の粒度解析結果

次に、微粉砕前後のシャモットの化学分析結果を表1に示す。シャモットの化学組成は微粉砕前後であまり変わらないことから、縦型ボールミルの鉄系金属材料やアルミナボールからのコンタミはほとんどないことがわかった。

表1 微粉砕前後のシャモットの化学組成 (wt%)

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O
微粉砕前	68.76	20.14	4.02	0.80	0.67	0.68	0.72	3.86
微粉砕 シャモットA	68.63	20.43	3.98	0.70	0.67	0.65	0.73	3.83

3.2 リサイクル瓦素地の特性

3.2.1 微粉砕シャモット粒径の影響

三州瓦用配合粘土に用いられる原料は、三河粘土⁵⁾、山土⁶⁾及び水ひ粘土⁷⁾で、数%の瓦シャモットを添加している。今回使用した配合粘土の分析値の結果からノルム計算により鉍物量を算出した。ノルム計算に用いた標準鉍物は、MgOは蛇紋石 $3\text{MgO}\cdot 2\text{SiO}_2\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、Na₂Oはソーダ長石 $\text{Na}_2\text{O}\cdot \text{Al}_2\text{O}_3\cdot 6\text{SiO}_2$ 、K₂Oはカリ長石 $\text{K}_2\text{O}\cdot \text{Al}_2\text{O}_3\cdot 6\text{SiO}_2$ 、CaOは灰長石 $\text{CaO}\cdot \text{Al}_2\text{O}_3\cdot 2\text{SiO}_2$ 、Fe₂O₃は赤鉍石 Fe_2O_3 、Al₂O₃はカオリナイト $\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 2\text{SiO}_2\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、SiO₂は石英 SiO_2 とした。配合粘土のノルム計算

結果を表2に示す。カオリナイト量を粘土分と考えると、粘土分は約36wt%であった。従って、大量の微粉砕シャモットを配合するリサイクル瓦素地は成形性が悪くなることが予想される。そこで、成形性を補うための助剤として、無機系のベントナイト1.0wt%と有機系のリグニン0.5wt%を使用した。

表2 使用した配合粘土のノルム計算結果 (wt%)

	蛇紋石	ソーダ長石	カリ長石	灰長石	赤鉍石	カオリナイト	石英	合計
配合粘土	1.3	6.4	14.7	2.3	3.7	35.9	35.7	100.0

三河瓦用配合粘土に微粉砕シャモット3種類(A、B、C)をそれぞれ50%配合したリサイクル瓦素地の全収縮率の結果を図2に示す。横軸のシャモット粒径は、実測した平均粒径(A: $8.3\mu\text{m}$ 、B: $10.3\mu\text{m}$ 、C: $14.6\mu\text{m}$)である。配合粘土に微粉砕シャモットを配合すると、微粒のシャモットA配合・ 1160°C 焼成品以外は、全収縮率は現状(1130°C 焼成)の9.7%よりも小さくなる傾向があった。そして、シャモット粒径が小さくなると全収縮率は大きくなり、焼成温度が高いほど全収縮率は大きくなった。なお、シャモットの粒径が小さいほど、現状の全収縮率に近いことがわかった。

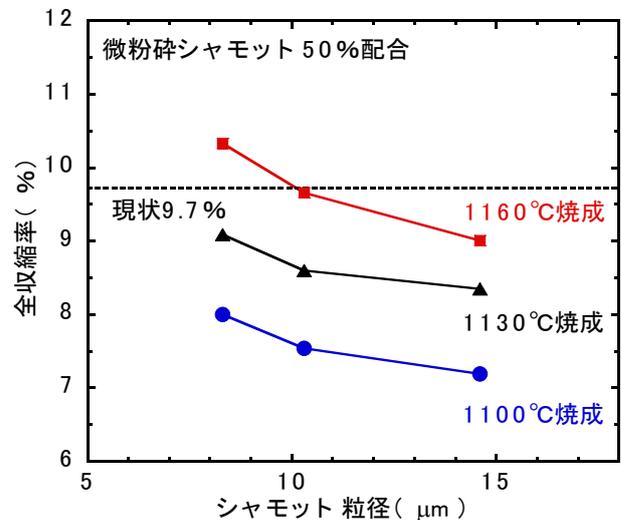


図2 微粉砕シャモット50wt%配合素地の全収縮率

微粉砕シャモット3種類をそれぞれ50wt%配合したリサイクル瓦素地の吸水率の結果を図3に示す。 1130°C 以上の焼成温度では、微粉砕シャモットを配合すると、現状の6.5%よりも吸水率は小さくなる傾向があった。そして、シャモット粒径が小さくなると吸水率は小さくなり、焼成温度が高いほど吸水率は小さくなった。なお、シャモットの粒径が大きいと現状の吸水率に近く、粒径が小さいほど、焼き締まりが進むことがわかった。

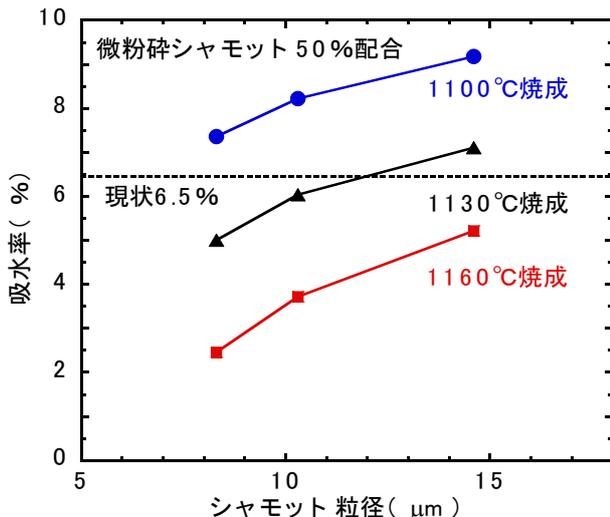


図3 微粉砕シャモット50wt%配合素地の吸水率

微粉砕シャモット3種類をそれぞれ50wt%配合したりサイクル瓦素地の曲げ破壊荷重の結果を図4に示す。配合粘土を現状の1130°Cで焼成した場合の曲げ破壊荷重は800Nであったので、目標とする曲げ破壊荷重は960N（現状の20%向上）とした。微粉砕シャモットを配合すると、曲げ破壊荷重は現状の800Nよりも大きくなり、シャモット粒径が小さくなると曲げ破壊荷重は大きくなった。特に、一番微粒のシャモットA（平均粒径8.3μm）を使用した場合、急激に曲げ破壊荷重は大きくなった。現状の1130°C焼成では、シャモットC（平均粒径14.6μm）を使用した場合、曲げ破壊荷重は917Nとなり、目標値を下回った。シャモットB（平均粒径10.3μm）では、曲げ破壊荷重は1130°C焼成で958N（現状の20%向上）となり、目標値程度となった。一番微粒のシャモットAでは、曲げ破壊荷重は1130°C焼成で1058N（現状の30%向上）となり、目標値をかなり上回った。

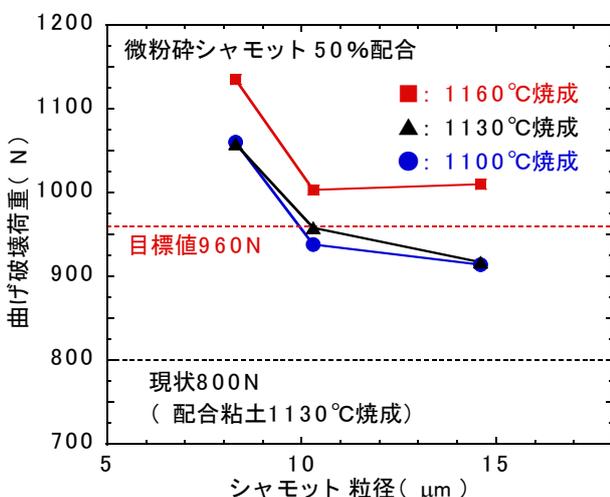


図4 微粉砕シャモット50wt%配合素地の曲げ破壊荷重

3.2.2 微粉砕シャモット配合量の影響

次に、微粉砕シャモット配合量を40、50、60%としたリサイクル瓦素地の全収縮率の結果を図5に示す。使用した微粉砕シャモットは3種類（A、B、C）で、全収縮率の結果はそれらの平均値を用いた。微粉砕シャモットを配合すると全収縮率は小さくなる傾向があった。そして、シャモット配合量が多くなると全収縮率は小さくなった。

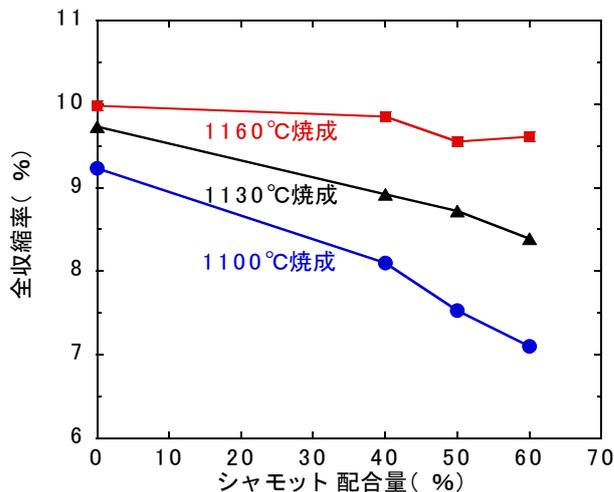


図5 微粉砕シャモット配合量と全収縮率の関係

微粉砕シャモット配合量を40、50、60wt%としたリサイクル瓦素地の吸水率の結果を図6に示す。1100°C焼成では、微粉砕シャモットを配合すると、吸水率は大きくなる傾向があった。1130°C以上の焼成温度では、微粉砕シャモットを配合すると、現状の6.5%よりも吸水率は小さくなる傾向があった。シャモット配合量が多くなると吸水率は小さくなった。

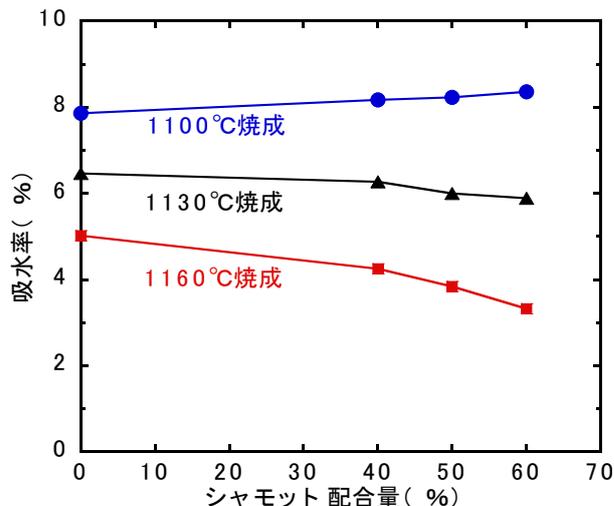


図6 微粉砕シャモット配合量と吸水率の関係

微粉砕シャモット配合量を40、50、60wt%としたリサ

イクル瓦素地の曲げ破壊荷重の結果を図7に示す。微粉碎シャモットを配合すると、現状の800Nよりも曲げ破壊荷重は大きくなった。1100℃焼成では、シャモット配合量が多くなっても曲げ破壊荷重はあまり変わらなかった。1130℃以上の焼成の場合、シャモット配合量が50wt%までは曲げ破壊荷重は大きくなり、シャモット配合量が60wt%では曲げ破壊荷重は小さくなった。

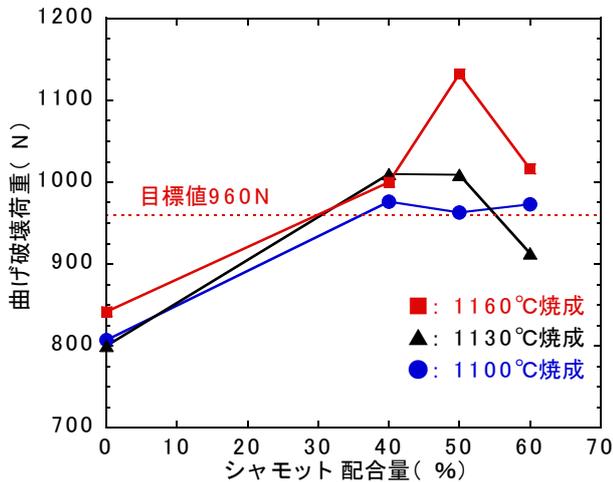


図7 微粉碎シャモット配合量と曲げ破壊荷重の関係

4. 結び

乾式で微粉碎処理したシャモットの粒度解析より、微粉碎が進むと約 $3\mu\text{m}$ をピークとする細かいシャモットの量が増えることがわかった。また、微粉碎によるコンタミはほとんどないことがわかった。

微粉碎シャモットを配合したりサイクル瓦の実用化を検討した結果、微粉碎シャモットを配合すると素地の焼き締まりが進み、曲げ破壊荷重は大きくなった。微粉碎シャモットの粒径は小さい方が曲げ破壊荷重は大きくなり、シャモットB（平均粒径 $10.3\mu\text{m}$ ）では目標値程

度、シャモットA（平均粒径 $8.3\mu\text{m}$ ）では目標値をかなり上回った。微粉碎シャモットの配合量は、1130℃以上の焼成では、50wt%までは曲げ破壊荷重は大きくなり、シャモット配合量が60wt%では曲げ破壊荷重は小さくなった。

謝辞

配合粘土の提供及び試験体の作製を行うにあたり、(株)丸長に協力いただきました。ここに深く感謝いたします。

付記

本研究の一部は、平成 25 年度愛知県環境部の補助金（循環ビジネス事業化検討事業）により(株)鶴弥が行い、同社と高浜工業(株)、あいち産業科学技術総合センター常滑窯業技術センターとの共同研究により実施した。

文献

- 1) 特許第5145579号:シャモット及びシャモットを配合した粘土瓦
- 2) 福原 徹, 鈴木陽子, 竹内繁樹, 松下福三: 愛知県産業技術研究所報告, **9**, 52(2010)
- 3) 福原 徹, 竹内繁樹, 鈴木陽子, 川本直樹: 愛知県産業技術研究所報告, **10**, 46(2011)
- 4) 福原 徹, 棚橋伸仁, 稲吉辰夫, 鈴木一正: あいち産業科学技術総合センター研究報告, **3**, 52(2014)
- 5) 竹内繁樹, 福原 徹, 鈴木陽子, 川本直樹: 愛知県産業技術研究所報告, **10**, 54(2011)
- 6) 宮田昌俊, 竹内繁樹, 福原 徹, 星 幸二: あいち産業科学技術総合センター研究報告, **1**, 62(2012)
- 7) 鈴木陽子, 福原 徹, 竹内繁樹, 松下福三: 愛知県産業技術研究所報告, **9**, 56(2010)