

粉体加圧成形によるフライアッシュの活用研究

福永 均 加藤 勝正 稲垣三喜男 服部 金司

Utilization of Fly Ash for Dry - Pressing Methods
by

Hitoshi FUKUNAGA, Katsumasa KATO, Mikio INAGAKI and Kinji HATTORI

三河地区の粘土瓦及び煉瓦企業が使用する原料粘土の枯渇化対策と産業廃棄物の資源化推進を図るため、煉瓦土にフライアッシュ（石炭灰）を添加し、粉体加圧成形によるセラミック建材の開発を行った。成形体かさ密度は、顆粒の水分が5～10%では成形圧力の増加と共に大きくなるが、水分15%ではほぼ一定になる。また成形体のかさ密度、圧縮強さ等物性は水分10%で成形した場合が最も良く、水分が多くなると成形体にクラックが発生し易くなる。炭種によるフライアッシュの粒度分布の違いはほとんどなく、成形性及び乾燥性状に差はないが、化学成分や耐火度に違いがあるため、焼成性状は大きく異なる。煉瓦土60%、フライアッシュ40%の配合土を水分10%、成形圧力30MPaで加圧成形し、1125℃で焼成した結果、普通煉瓦のJIS規格値（4種）を満足し、三河粘土製品の風合いを活かしたデザイン煉瓦が開発できた。

1. まえがき

三河地区の窯業界が原料として使用する粘土は年間230万トンにも及んでおり、原料粘土の枯渇化が進んでいる。一方、公共性の高い産業廃棄物として碧南火力発電所からフライアッシュ（石炭灰）が年間70万トン排出されており、窯業原料としての資源化が望まれている。現在、三河地区窯業界では良質粘土の可塑性を利用した押出し等の成形法により粘土瓦や煉瓦等を製造しているが、フライアッシュ等可塑性に乏しい産業廃棄物の資源化のためには、粘土の可塑性に依存しない成形方法の導入が必要である。

本研究は煉瓦土にフライアッシュを添加し、粉体加圧成形法により成形体を作製した。顆粒の水分など坯土特性や成形圧力が物性に及ぼす影響について検討し、フライアッシュを資源化する場合の成形技術の確立を図った。

2. 実験方法

2.1 使用原料

フライアッシュは碧南火力発電所から排出されたオーストラリア産ドレイトン炭とキャンパウェル炭の2種類で、石炭燃焼時に電気集塵機で採取されたものである。表1に使用原料の化学分析値と耐火度、表2に粒度分布を示す。

フライアッシュは2種類とも250 μ m以上の粗い粒子が非常に少なく、鉍物組成は大半が非晶質であり、 α -石英とムライトを含み、煉瓦土に比べてCaOを多く含有する。また、ドレイトン炭はAl₂O₃含有量が36%と多く、耐火度もSK28と煉瓦土に比べて高い。キャンパウェル炭はCaOを8%近く含有するため、耐火度はSK7と低い。なお、シラスは低温焼結材として使用するためフライアッシュの粒度分布に近似するように粉碎した。

表1 使用原料の化学分析値と耐火度

(%)

試料名	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	SO ₃	P ₂ O ₅	Ig. loss	耐火度
煉瓦土	61.2	22.5	4.41	0.77	0.14	0.71	2.23	2.58	-	-	5.40	SK17
フライアッシュ (ドレイトン炭)	52.3	36.0	3.29	1.43	2.30	0.65	0.40	0.45	0.20	0.52	2.36	SK28
フライアッシュ (キャンパウェル炭)	52.2	24.5	5.54	1.56	7.84	2.86	0.76	1.22	0.65	1.15	1.73	SK7
シラス	74.2	10.5	2.60	0.21	0.25	0.23	4.18	3.45	-	-	4.29	SK3a

表2 使用原料の粒度分布

(%)

試料名	粒子径 (μm)					
	< 5	5~10	10~20	20~45	45~250	250<
煉瓦土	14.4	16.4	16.6	14.3	30.1	8.2
フライアッシュ (ドレイトン炭)	11.5	22.8	27.0	25.5	13.0	0.2
フライアッシュ (キャンパウェル炭)	11.8	20.1	28.7	22.0	16.9	0.5
シラス	18.1	17.9	23.9	20.1	19.9	0.1

2.2 顆粒調製及び成形試験

顆粒は煉瓦土及びフライアッシュを乾粉状態で調合し、水を加えてアイリッヒミキサーで混合し、3mm以下の顆粒に調製した。表3に調合割合を示す。

J. O. Everhart¹⁾によると舗道煉瓦の粉体成形においては成形圧力、加圧速度、含水量及び粒度が影響すると述べているが、本研究では加圧速度を一定にして一軸加圧成形法によりW60×D60×H60mmの成形体を作製し、顆粒の水分と成形圧力との関係を重点的に評価した。

2.3 成形体の性状

成形体のクラックは目視と超音波パルス法によるヤン

表3 試験体の調合割合

(%)

試料記号	煉瓦土	フライアッシュ (ドレイトン炭)	試料記号	煉瓦土	フライアッシュ (キャンパウェル炭)
N	100	0	N	100	0
D20	80	20	C20	80	20
D30	70	30	C30	70	30
D40	60	40	C40	60	40
D50	50	50	C50	50	50

表4 顆粒の特性

試料記号	粒度分布 (%)						ゆるみ 見掛比重	カップ 密度	圧縮度 (%)	
	<0.125mm	0.125~0.25mm	0.25~0.5mm	0.5~1mm	1~2mm	2mm<				
水分 0%	N	40.2	17.4	18.1	22.2	2.1	0	1.06	1.39	23.5
	D20	48.5	14.2	14.7	20.7	1.9	0	1.07	1.43	25.4
	D30	53.7	12.0	13.6	18.9	1.8	0	1.07	1.43	25.5
	D40	60.4	10.0	11.9	16.3	1.4	0	1.03	1.40	27.0
	D50	66.3	8.9	9.7	14.0	1.1	0	1.00	1.38	27.2
水分 5%	N	49.7	16.1	12.9	14.8	4.5	2.0	0.97	1.43	32.4
	D20	57.5	12.9	13.3	13.7	2.1	0.5	0.84	1.34	36.9
	D30	56.2	12.1	11.9	14.5	3.3	2.0	0.81	1.30	37.7
	D40	63.3	11.2	9.9	10.5	1.9	3.2	0.77	1.26	38.6
	D50	68.8	9.8	8.3	10.5	1.4	1.2	0.73	1.21	39.9
水分 10%	N	43.8	19.1	14.6	13.4	5.4	3.7	1.00	1.38	27.7
	D20	48.6	17.5	12.6	11.5	6.0	3.8	0.86	1.28	32.5
	D30	49.5	15.2	10.4	10.3	6.2	8.4	0.77	1.25	38.2
	D40	53.8	13.7	9.7	12.1	4.6	6.1	0.74	1.21	38.7
	D50	63.8	11.9	8.6	9.9	3.0	2.8	0.69	1.18	41.1
水分 15%	N	2.1	9.7	28.4	28.2	16.4	15.2	1.02	1.32	22.4
	D20	1.8	8.8	28.2	28.9	15.0	17.3	0.96	1.30	26.1
	D30	2.5	12.2	32.8	23.2	13.5	15.8	0.92	1.29	28.6
	D40	7.8	26.5	30.3	15.2	9.2	11.0	0.81	1.26	35.3
	D50	16.4	33.5	24.7	11.4	5.9	8.1	0.82	1.21	32.4

グ率により判定し、かさ密度及び圧縮強さも測定した。

3. 実験結果及び考察

3.1 顆粒及び成形体性状

3.1.1 顆粒特性

水分を変化させ、アイリッヒミキサーで調製した顆粒について、パウダーテスターを用い、顆粒の流動性の指標となるゆるみ見掛比重（粉体を振動させない時の比重）とタップ密度（振動充填させた場合の粉体の比重）を測定し、圧縮度（ゆるみ見掛比重とタップ密度の比）を求めた。表4に顆粒の特性を示す。

表5 成形体の物理的性質

試料記号	かさ密度 (g/cm ³)			ヤング率 (×10 ³ MPa) (加圧方向)			ヤング率 (×10 ³ MPa) (水平方向)			加圧方向/水平方向比			
	成形圧力 (MPa)			成形圧力 (MPa)			成形圧力 (MPa)			成形圧力 (MPa)			
	10	20	30	10	20	30	10	20	30	10	20	30	
水分 5%	N	1.80	1.93	成形不能	2.82	4.14	成形不能	3.35	5.69	成形不能	0.84	0.73	成形不能
	D20	1.72	1.82	1.87	2.09	3.14	3.63	2.57	4.29	5.26	0.81	0.73	0.69
	D30	1.67	1.77	1.80	2.02	2.73	3.30	2.58	3.96	4.30	0.78	0.69	0.77
	D40	1.59	1.68	1.71	1.17	1.51	1.78	1.69	2.55	2.90	0.69	0.59	0.61
	D50	1.53	1.60	1.64	0.79	0.92	0.99	1.18	1.63	1.95	0.67	0.56	0.51
水分 10%	N	1.99	2.05	2.09	5.33	1.15	1.61	6.08	7.47	7.62	0.88	(0.15)	(0.21)
	D20	1.86	1.94	1.98	5.81	3.66	1.60	6.50	7.68	7.92	0.89	(0.48)	(0.20)
	D30	1.77	1.85	1.90	5.47	2.04	4.30	5.98	7.48	7.30	0.91	(0.27)	(0.59)
	D40	1.67	1.76	1.85	4.04	5.01	4.71	4.25	5.88	5.85	0.95	0.85	0.81
	D50	1.59	1.66	1.68	2.66	3.56	2.99	2.91	4.23	3.86	0.91	0.84	0.77
水分 15%	N	1.96	1.96	1.95	4.32	4.32	1.99	7.45	6.99	7.11	0.58	0.62	(0.28)
	D20	1.86	1.85	1.86	2.05	2.76	2.30	8.13	7.86	7.82	(0.25)	(0.35)	(0.29)
	D30	1.79	1.80	1.80	1.75	2.30	1.73	7.60	7.35	7.79	(0.23)	(0.31)	(0.22)
	D40	1.75	1.75	1.75	1.82	2.84	1.17	7.50	7.73	7.80	(0.24)	(0.37)	(0.15)
	D50	1.64	1.70	1.70	4.95	2.67	1.31	5.18	6.53	7.08	0.96	0.41	(0.19)

() は成形体にクラックが発生したものの

顆粒径は配合割合による違いは比較的少ないが、水分10%までは0.5mm以上の粗粒が少なく、0.25mm以下の細粒が大半を占める。しかし、水分15%の顆粒では0.5mm以上の粗粒が多く、0.25mm以下の細粒は少ない。

また、圧縮度は水分量5~10%で大きく、15%以上では低下した。フライアッシュの添加により圧縮度は大きくなり、最大圧縮度を示す水分量は増加した。タップ密度と加圧成形した場合の成形体かさ密度との間には相関性があり、椿ら²⁾が述べるように顆粒のタップ密度を測定することにより成形体の評価が可能である。

3.1.2 成形体かさ密度

表5に成形圧力及び顆粒の水分を変えた場合の成形体のかさ密度の変化を示す。水分が5~10%では成形体かさ密度は成形圧力の増加に伴って、大きくなるが、水分15%ではほぼ一定である。またフライアッシュを添加す

るとかさ密度は低下するが、これはフライアッシュの比重が小さいことに起因している。即ち煉瓦土のゆるみ見掛比重は1.06であるのに対し、フライアッシュ50%添加した場合のゆるみ見掛比重は1.00と煉瓦土に比べて小さい。煉瓦土単味の場合は成形圧力に関係なく、水分10%で成形体かさ密度が最も大きい。

3.1.3 成形性

フライアッシュ添加における成形体のクラック発生状況について表5に示す。成形体のクラックは水分が多く、成形圧力が大きな場合に発生するが、フライアッシュ添加により発生範囲が狭くなり、成形性が改善される。フライアッシュを40%添加した場合、成形性が良好な範囲は水分5~10%、成形圧力10~30MPaである。

3.1.4 炭種と成形体性状

炭種の違いによる成形体性状を検討するため、キャン

パウエル炭を用いて、成形性が良好であった水分10%で顆粒調製し、成形圧力10~30MPaで成形し、成形体のクラック発生の有無、かさ密度及び圧縮強さを測定した。

図1に成形圧力と成形体かさ密度の関係、図2に成形

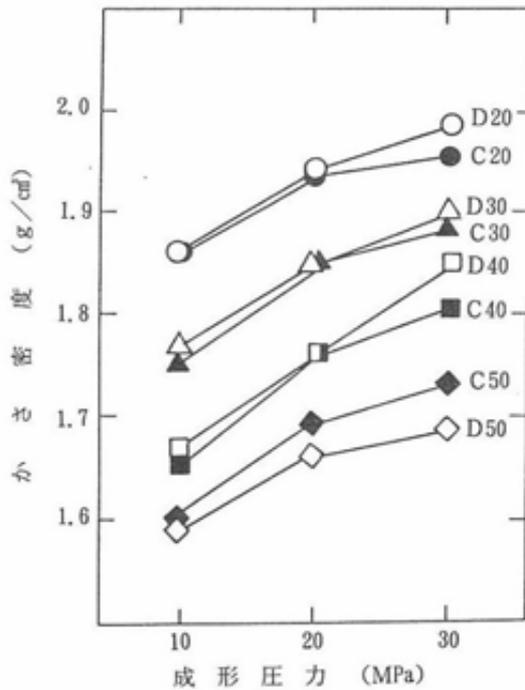


図1 水分10%における成形圧力とかさ密度

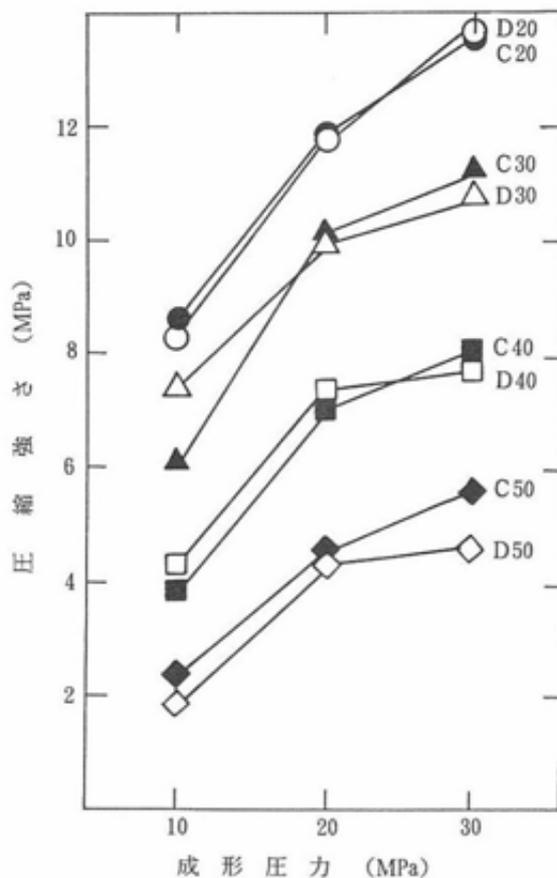


図2 水分10%における成形圧力と成形体圧縮強さ

圧力と圧縮強さの関係を示す。成形圧力とかさ密度の関係はドレイトン炭を用いた試験結果と同様で、かさ密度が成形圧力30MPaで若干異なるが、炭種による違いはほとんどなかった。

圧縮強さも成形圧力が高くなると増加し、炭種による違いはなかった。

3.1.5 密度分布

フライアッシュを40%添加し、水分10%、20MPaで成形した成形体のかさ密度分布の一例を図3に示す。加圧方向に対し、上面の隅の部分でかさ密度が高く、下面では中心部分が高い。片押し成形のため、上面の密度が高く、下面では低くなった。水分15%のかさ密度分布は上、下面ともほぼ同じであった。

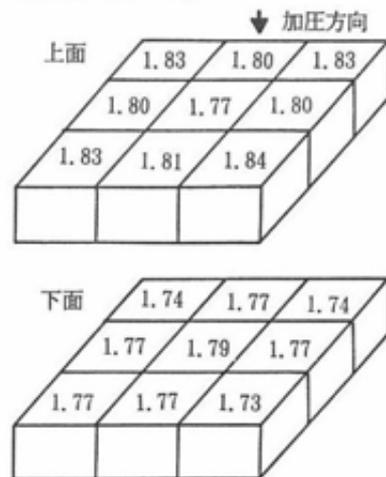


図3 水分10%成形圧力20MPaによる成形体(D40)の密度分布

また、クラックの発生原因を究明するため、金型への粘着性により脱型時に発生するものか、加圧速度及び除圧速度の違いにより発生するものかを検討した。粘着性を防ぐため薄いシートを加圧面に挿入したが、クラックが発生した。また加圧速度や除圧速度を変化させても、クラックは防止できなかった。

3.1.6 クラックの発生とヤング率

表5に成形体のヤング率を示す。ヤング率については異方性があるため、加圧方向(P面)及び水平方向(H面)より測定した。圧縮強さとH面のヤング率は、かさ密度と同様に水分が10%までは、水分と成形圧力の増加に伴って大きくなった。一方、クラックが発生した成形体のP面のヤング率は極端に低下している。クラックは成形体の加圧方向と垂直に発生しているため、空気層を伝播する超音波速度が低下したためと考えられる。H面のヤング率はほぼ材料の値を示しているものと思われる。そこで、P面とH面のヤング率の比をとり、ラミネーションとの関係を調べてみると、P/H比が約0.5以下の成形体にはクラックが発生していた。ヤング率を測定

し、異方性を調べることにより、成形体内部のラミネーション等の欠点評価が可能である。

3.2 成形体の焼成性状

3.2.1 成形条件と焼結性

成形時の条件が焼成体に及ぼす影響について検討した。図4に成形条件と焼結性を示す。顆粒の水分が15%の成形体については、焼成体の吸水率はほとんど変化がなく、水分5~10%では成形圧力に比例して、吸水率が低下している。この傾向については、成形体のかさ密度の傾向と一致しており、成形時の密度がそのまま焼成後も影響していることが分かる。

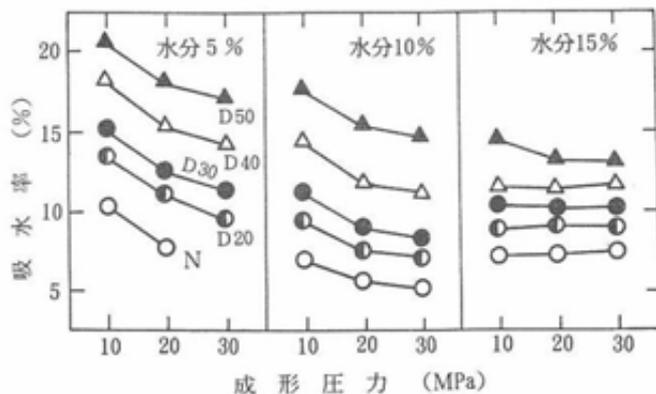


図4 1125°C焼成体の成形条件と焼結性

表6 1125°C焼成体の物理的性質

試料記号	焼成収縮率 (%)			吸水率 (%)			圧縮強さ (MPa)			かさ密度 (g/cm ³)			
	成形圧力 (MPa)			成形圧力 (MPa)			成形圧力 (MPa)			成形圧力 (MPa)			
	10	20	30	10	20	30	10	20	30	10	20	30	
水分 10%	N	3.8	4.0	4.0	7.0	5.7	5.1	35.3	79.9	87.3	2.12	2.20	2.21
	D20	3.2	3.5	3.5	9.4	7.4	7.1	39.1	61.1	65.6	1.97	2.06	2.08
	D30	2.9	3.0	2.9	11.2	9.0	8.3	53.5	43.5	87.0	1.88	1.97	1.98
	D40	2.2	2.2	2.3	14.7	11.9	11.4	27.7	40.4	59.8	1.74	1.84	1.85
	D50	1.8	1.9	1.7	17.8	15.5	14.9	15.6	31.1	29.5	1.63	1.70	1.71
	C20	3.8	3.8	3.8	9.5	7.5	7.1	57.3	75.3	75.4	1.96	2.05	2.07
	C30	3.9	3.8	3.8	11.2	8.5	7.7	43.8	55.7	47.9	1.87	1.97	2.01
	C40	4.0	3.9	3.9	13.3	10.2	9.1	24.6	41.7	45.7	1.79	1.88	1.92
	C50	4.1	4.0	4.1	14.1	11.2	10.4	33.5	36.9	37.2	1.73	1.82	1.86

3.2.2 焼成体の物理的性質

表6に顆粒水分10%の成形体を1125°Cで焼成した場合の物理的性質を示す。

フライアッシュを添加するに伴い、吸水率が増加し、圧縮強さは低下する傾向を示す。特にドレイトン炭は煉瓦土に比べて、耐火度が高く、焼結性が悪い。ただし吸水率が大きい割には圧縮強さは比較的大きな値を示す。また、キャンバウエル炭40%添加し、成形圧力30MPaで成形した成形体の圧縮強さは45.7MPa (4570N/cm²)、吸水率は9.1%で、JIS R 1250 普通れんが4種の規格値 (圧縮強さ2942N/cm²以上、吸水率10%以下) を満足している。

フライアッシュは品質変動が大きく、耐火度が大きく変わることが予想され、焼成後の物理的性質に影響する。ドレイトン炭は耐火度が煉瓦土に比べて高く、焼結性が悪いため40%以上添加、1125°C焼成物の吸水率は10%で

あった。そのため、焼成温度を上げた場合と低温焼結材であるシラスを添加した場合の焼結性について検討した。

図5に焼成温度を変化させた時の焼成体の吸水率の変化を示す。ドレイトン炭は1150°Cで焼成してもさほど吸水率は低下せず、焼結性は良くないが、キャンバウエル

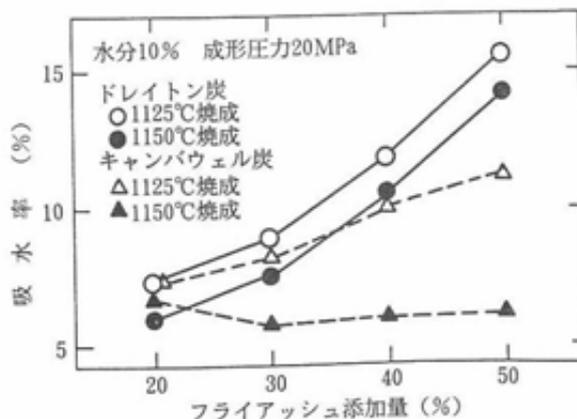


図5 焼成温度と焼結性

炭は1150℃焼成で急激に吸水率が低下し、焼結性が良くなる。したがってドレイトン炭のように耐火度の高いフライアッシュは、焼成温度を上げて焼結性の向上はあまり期待できない。焼結性を改善するためドレイトン炭に粒度分布をフライアッシュとほぼ同じように調製したシラスを代替して、焼結性を調べた結果を表7に示す。

表7 シラス添加素地の焼結性

調 合 割 合 (%)			吸 水 率 (%)	
煉瓦土	フライアッシュ	シラス	1125℃	1150℃
80	10	10	5.6	4.9
70	20	10	7.1	6.6
60	30	10	10.2	8.2
50	40	10	13.5	11.0
70	10	20	5.9	4.1
60	20	20	7.2	5.6
50	30	20	10.0	7.7
60	10	30	4.2	2.0
50	20	30	6.3	3.8
50	10	40	2.5	0.7

水分10%、圧力20MPaで成形し、1125℃、1150℃で焼成した焼成体の吸水率は、シラスを添加することにより吸水率が低下し、焼結性は良くなる。また、煉瓦土60%、フライアッシュ（ドレイトン炭）30%、シラス10%の調合割合で1150℃焼成した焼成体は、吸水率 8.2%でJIS規格値を満足した。焼結性の良くないフライアッシュを使用する場合は、焼成温度を上げるよりも、低温焼結材を添加することにより焼結性の向上が図れる。

3.3 煉瓦の試作

厚形で複雑な形状を有する煉瓦の試作を行った。寸法は普通煉瓦の大きさと、上下に凹凸を有し、相互で組み合わせのできる形状の煉瓦である。煉瓦土60%、フライアッシュ（キャンパウェル炭）40%の配合土を顆粒の水分10%、成形圧力30MPaで加圧成形し、1125℃で焼成した結果、圧縮強さ6350N/cm²、吸水率9.3%であり、普

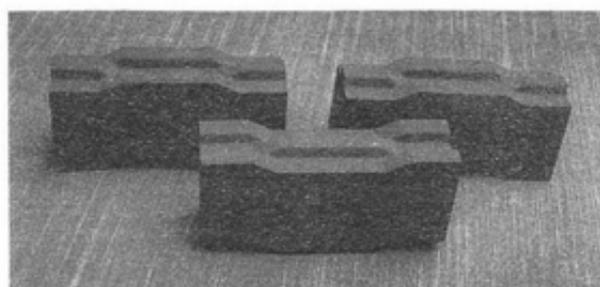


写真 試作品

通煉瓦のJIS規格値（4種）を満足した。また色調も普通煉瓦とほとんど違いなく三河粘土製品の風合いを活かしたデザイン煉瓦（写真）が開発できた。

4. まとめ

- (1) 顆粒の水分が5~10%では、成形体かさ密度は成形圧力の増加に伴い、大きくなるが、水分15%では、ほぼ一定になる。また成形体のかさ密度、圧縮強さ等物性は水分10%で成形した場合が最も良く、水分が多くなると成形体にクラックが発生しやすくなる。
- (2) 炭種によるフライアッシュの粒度分布の違いはほとんどなく、成形性及び乾燥性状に差はないが、化学成分や耐火度に違いがあるため、焼成性状は大きく異なる。
- (3) タップ密度と成形体かさ密度の間には相関性があり、顆粒のタップ密度を測定することにより、成形体のかさ密度が予測できる。また、測定したヤング率の異方性により、成形体内部クラックの評価が可能である。
- (4) 煉瓦土60%、フライアッシュ40%、顆粒の水分10%、成形圧力30MPaで加圧成形し、1125℃で焼成した結果、普通煉瓦のJIS規格値（4種）を満足し、三河粘土製品の風合いを活かしたデザイン煉瓦が開発できた。

文 献

- 1) J. O. Everhart, J. Amer. Ceram. Soc., 15, 107~11(1932).
- 2) 椿淳一郎, 堀田禎, 鹿野知幸, 外山茂樹, 水野光国, JFCC Review, No. 4, (1992)pp. 11~18.