

資 料

風化花崗岩配合粘土の乾燥時における変形挙動

原田 達也*・江木 俊雄**

1. 目 的

島根県西部地域は、石州瓦の名称で知られる陶器瓦の生産地である。石州瓦は都野津層の粘土を主原料としており、長年の採掘により耐火度が高く粘土分に富んだ良質な粘土の減少が問題となっている^{1), 2)}。これに対し、原料に関する一連の研究を行い³⁾⁻⁵⁾、島根県浜田市金城町一帯に分布する変質した花崗岩（以下「風化花崗岩」とする）を石州瓦の配合原料の一つとして利用できることを示した。風化花崗岩の埋蔵量は1,000万トン以上と推測されていることから、実用的に使用されるようになれば、原料の問題を解決する一手段となることが期待できる。

従来の結果³⁾⁻⁵⁾を踏まえて風化花崗岩を瓦用原料として利用するために、現行瓦粘土に風化花崗岩を配合して実用化の試験を行ったところ、風化花崗岩を配合すると瓦製造時の歩留まりを下げる原因となっている「割れ」を低減させるが、「変形」が増大する傾向を示すことが判明した。このため、風化花崗岩を利用するためには配合物の変形の原因を明らかにし、変形の低減を図る必要がある。瓦の製造工程において変形が発生するのは乾燥と焼成の工程である。既報⁶⁾において風化花崗岩配合粘土の焼成時の変形について、押出成形した試験体を用いて「変形」、特に「反り」に注目して評価を行い、風化花崗岩の配合比の増加とともに焼成時の反り量が低減することを明らかにした。そこで本研究では風化花崗岩の配合比を変えた粘土を用いて、乾燥時における反りについて評価を行った。

2. 方 法

2.1 原料

原料は風化花崗岩及び現在使用されている石州瓦坏土（以下「坏土」とする）を用いた。風化花崗岩は浜田市金城町下原で採取し、坏土は石州瓦メーカーが使用している調製済み瓦用粘土を用いた。風化花崗岩は石英、カオリン鉱物を主体として長石と雲母を随伴しており、坏土は石英、長石、カオリン鉱物を主体として、スメクタイトと雲母を随伴していた。風化花崗岩のカオリン鉱物はほぼハロイサイトであるのに対し、坏土のカオリン鉱物はカオリナイトを主体としており、粘土鉱物に違いが見られる。これ

*材料技術グループ、**無機材料・資源グループ

らの原料のうち坏土を主粘土として用い、風化花崗岩を配合して反りに対する影響を検討した。

なお、それぞれの原料について既報¹⁾の方法により比重計法およびふるい分けによる粒度分布測定と蛍光X線法による化学分析をおこなった。

2.2 前処理

坏土配合用に供した風化花崗岩は、風化花崗岩、アルミナボール、そして水を質量比で1:1:1の割合で1時間湿式粉碎し、振動ふるいで250 μ m以下の固形物を回収した。坏土および分級した風化花崗岩は、自然乾燥物をそれぞれジョークラッシャーとロールクラッシャーを用いて粗粉碎し、実験に供した。

2.3 試験体の作製

2.2の前処理をした原料を表1の割合になるように秤量し、逆流式混合機（アイリッヒ製RV02）を用いて乾式で攪拌・混合した。次に、含水率が約20mass%になるように水を加えてポリエチレン袋中で混練し、12時間以上静置して水分を均質化した。水分調整した配合粘土について真空土練機（高浜工業（株）製、MPM120N）にて押出成形を行い、板状成形体（長さ×幅×厚さ:約220×100×15mm）を作製した。この板状成形体を長さ約120mm、幅約50mmに切断し、成形圧力約8MPaでプレス成形して板状試験体（長さ×幅×厚さ:約120×50×14mm）を作製した（図1）。作製した板状試験体は、乾燥を防ぐためポリ袋中に密封し、乾燥実験に供するまで幅方向が垂直になるように立てて発泡スチロール製の箱の中に保管した。

表1 粘土の配合割合（mass%）

配合試料	坏土	風化花崗岩
坏:風=100:0	100	0
坏:風=90:10	90	10
坏:風=80:20	80	20
坏:風=70:30	70	30

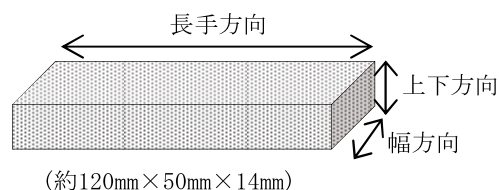


図1 板状試験体の模式図

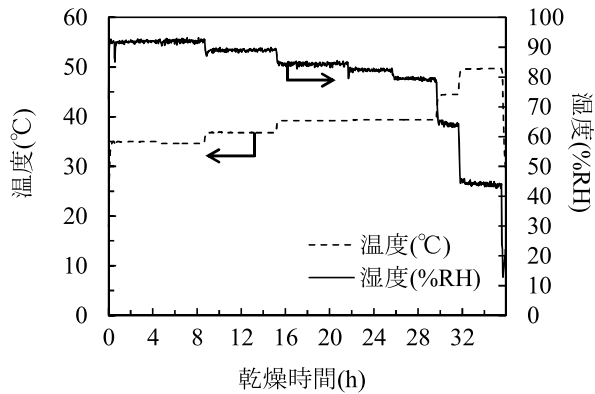


図2 乾燥実験における温湿度条件

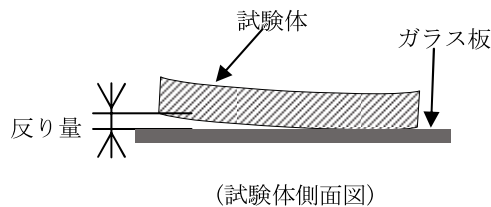


図3 乾燥反り量の測定の模式図

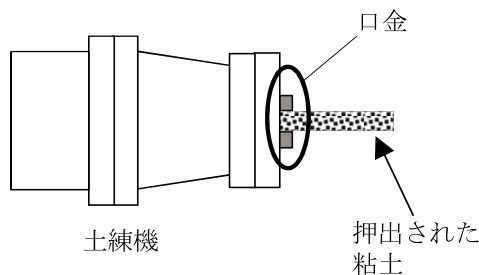


図4 土練機の模式図

2.4 乾燥実験

乾燥は、石州瓦製造工場の乾燥工程を参考にして、恒温恒湿器（エスペック（株）製，PSL-2GM）を用いて図2に示すように温度と湿度を35℃，90%RHから50℃，45%RHまで段階的に変化させて行った。恒温恒湿器内では、試験体を均一に乾燥させるため、試験体を垂直に静置し、転倒防止のためにプラスチック丸棒を試験体に接触しないように設置した。

2.5 乾燥試験体の反りの評価

乾燥時の試験体の反りの評価は、図3に示すようにガラス板上で試験体の長手方向の端部を固定し、長手方向の相対する端部の水平面からの浮き上がりの量で評価した。

2.6 乾燥時の反りに影響する種々の要素の評価

以下の要素について、乾燥時の反りに対する影響を検討した。

2.6.1 収縮率の影響

収縮率は図1の幅方向の寸法について乾燥実験前後の変化から算出し、乾燥時の反りとの相関について評価した。

2.6.2 乾燥速さの影響

2.3と同様に試験体を作製し、温度と湿度を制御した恒温恒湿器内に設置した天秤の上に載せ、経過時間に対する

試験体の質量減少を測定し、含水率の変化を算出した。乾燥速さはこの含水率の変化で評価した。

2.6.3 押出し成形機の口金の影響

真空土練機の出出口である口金（図4）が上下方向に移動可能なものを用い、2.3の試験体の作製において、口金の高さを土練機を中心より上側に0～2mm変化させて試験体を作製し、乾燥中の押出成形の影響を評価した。

2.6.4 風化花崗岩中のハロイサイトの影響

風化花崗岩は簡単に破碎できる（水中で碎解可能な）ものであれば、破碎後粒度によって石英や粘土に分離濃集することができる⁷⁾。本研究で用いた風化花崗岩は容易に破碎可能なため、分級により石英粒や粘土分に分離することが可能である。この風化花崗岩の粗粒部分は石英粒と長石の風化物で構成されている。長石の風化物はハロイサイトが凝集したものであり、機械的な力で比較的容易に破碎できるのに対して、石英粒の破碎には大きな力を要する。予備試験において、石英粒と長石の風化物を水中に浸漬し攪拌機（日立工機（株）製，UM15）を用いて破碎したところ、長石の風化物のみを破碎することができた。

そこで、風化花崗岩を水に浸漬させた後、ほぼ石英粒と長石の風化物の塊からなる425 μ m以上の粗粒をまず分級した。この粗粒分級物を水中に浸漬させた後、攪拌機を用いて破碎し、攪拌物からふるい分けにより75 μ m以下の微粒を得た。この75 μ m以下の微粒をX線回折によりほぼハロイサイトであることを確認し、風化花崗岩中のハロイサイト分とした（以下、この微粒をハロイサイト分と記す）。

坏：風=70：30に含まれているハロイサイトの量は、ハロイサイト分級物と坏土を用い、強熱減量値から内部添加法により約8.5mass%と推算した。これを基に坏土にハロイサイト分を8.5mass%配合し、2.6.3と同様に試験体を作製して乾燥実験を行い、風化花崗岩中のハロイサイト分の影響を評価した。

3. 結 果

3.1 使用原料の性状

使用した原料の粒度組成を表2に、化学分析値を表3に示す。風化花崗岩は、坏土よりも粒度組成について2 μ m以下の粘土分の割合が低く、化学分析値について、Al₂O₃分が多く、Fe₂O₃分及びK₂O分が少なく、CaO分とNa₂O分は非常に少ない結果となった。

表2 原料の粒度組成

試料名	粒度組成 (mass%)		
	砂分 (75 μ m以上)	シルト分 (2～75 μ m)	粘土分 (2 μ m以下)
風化花崗岩	25	58	17
坏土	18	45	37

表3 原料の化学分析値（酸化物換算，mass%）

試料名	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	LOI. ^{*)}
風化花崗岩	69.0	0.27	20.1	1.32	0.04	0.20	0.01	0.04	1.74	6.74
坏土	71.1	0.56	16.5	2.53	0.03	0.39	0.22	0.42	2.36	5.13

*) 強熱減量

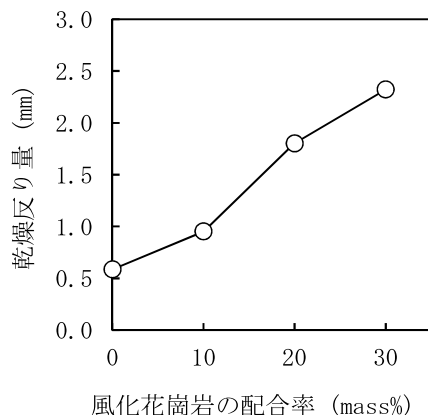


図5 風化花崗岩配合粘土の乾燥反り量

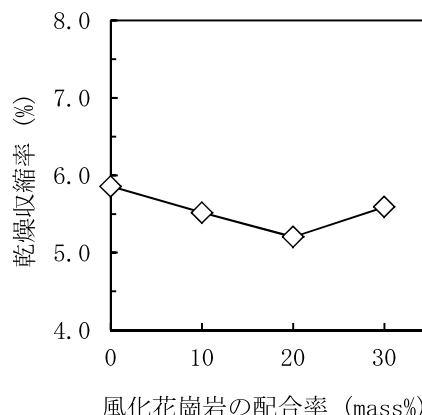


図6 風化花崗岩配合粘土の乾燥収縮率

また、坏土の粘土分の割合は石州瓦業界の平均値(34mass%)⁸⁾と比較すると若干高かった。他方、化学分析値(表3)は石州瓦業界の平均値⁸⁾とほぼ同等であった。

3.2 風化花崗岩配合粘土の乾燥時の反り挙動

風化花崗岩の配合率に対する試験体の乾燥時の反り量を図5に示す。風化花崗岩の配合率が高くなると反りが増大する結果となった。これは風化花崗岩の実用化試験で風化花崗岩を配合すると変形の不良率が高くなったことと一致した。既報⁶⁾の実験では、風化花崗岩の配合率が高くなると焼成時の反り量は低下したことから、風化花崗岩の実用化試験で変形が大きかったのは乾燥時の反りの影響が大きかったと考えられる。また、配合することにより反り量が大きくなるということは、風化花崗岩の配合により製造工程での困難さが増すことを意味しており、風化花崗岩を使用するには、乾燥時の反りの原因を明らかにして反りの低減を図る必要がある。そこで、考えられる要素に注目して反り量が增大した原因について検討を試みた。

3.2.1 収縮率の影響

風化花崗岩を配合すると乾燥時の収縮率が大きくなり、そのために反り量が增大した可能性が考えられたので、乾燥時の収縮率を測定した。その結果を図6に示す。この図が示しているように、収縮は風化花崗岩の配合率に対して直線的な変化はせず、また、風化花崗岩を配合すると、配合していないものと比較して、収縮率が低下する結果が得られたことから、風化花崗岩の配合比と収縮率に相関はないことが分かった。よって、収縮率は反り量と相関がないと考えられた。

3.2.2 乾燥速さの影響

乾燥時に素地の表面と内部で水分の減少速度に差が生じると応力が発生し、反りの原因になる⁹⁾ことから、風化花

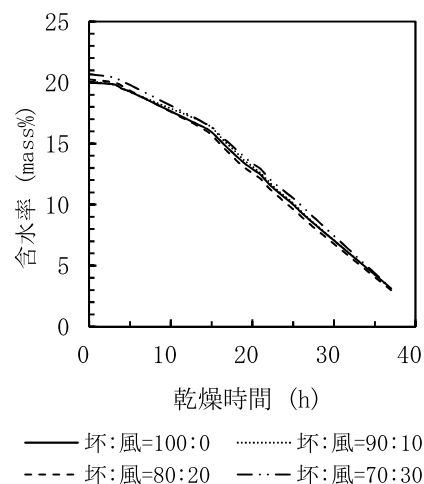


図7 風化花崗岩配合粘土の含水率の変化

崗岩の配合率が高くなると表面からの乾燥が速くなり、反り量が增大した可能性が考えられた。そこで、含水率の変化から乾燥の速さを比較した。その結果を図7に示す。乾燥時間に対し、いずれの試料も同様に含水率が低下し、乾燥の速さに差は認められなかった。したがって、乾燥の速さと反り量も相関がないと考えられた。

3.2.3 押出し成形の影響

試験体の反りの方向を詳細に観察したところ、真空土練機の押し出しに対して、常に一定方向に反りが生じていた。このことより反りは成形時の影響を強く受けたと推察された。本実験の成形は、粘土瓦の製造工程と同様に土練機による押出成形および金型によるプレス成型で行ったため、いずれかの工程が反りに影響したと考えられた。そこで、プレス成型時に試験体の上下を入れ替えて反りの挙動を観察したところ、プレス成形時の上下には関係なく土練機の

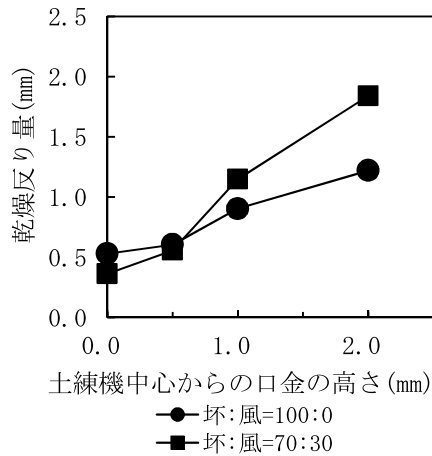


図8 風化花崗岩配合粘土の土練機の口金高さと乾燥反り量の関係

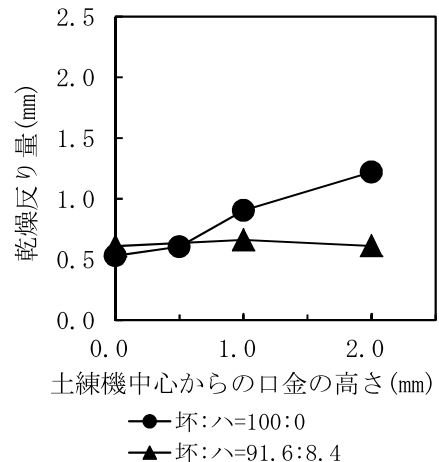


図9 ハロイサイト分配合粘土の土練機の口金高さと乾燥反り量の関係

押し出しに対して一定方向に反りが生じたことから、プレス成型は反りに影響せず、土練機による成形が反りに影響していると推察された。土練機成形で反りが生じたのは、土練機の押出口である口金が土練機の羽根の軸中心から偏心していたためと推測した。このことを確認するため、坏：風＝100：0と坏：風＝70：30の配合粘土について、高さが調整できる口金を用い、土練機の中心から口金の高さを変えて押出成形したところ、口金を下側に移動させると上側に反り（上弦）、上側に移動させると下側に反る（下弦）様子が観察された。この口金を用いて作製した試験体について乾燥実験を行った結果を図8に示す。口金の高さが土練機の羽根の軸中心から高くなる程、試験体の反り量が増大し、この傾向は風化花崗岩を配合した粘土で顕著であった。また、口金を土練機の羽根の軸中心に合わせると反り量が減少する結果となった。よって、乾燥時の反りは土練機の影響を受けており、その反り量は押し出し時の口金高さの調整により低減できることが明らかになった。

3.2.4 風化花崗岩中のハロイサイトの影響

図8より風化花崗岩を配合すると反りが顕著になる結果を得た。そのため、風化花崗岩を利用するには、その原因を明らかにして、風化花崗岩配合粘土の反り量を坏土と同程度以下に改善する必要がある。反りが増大した現象には、風化花崗岩中の成分が影響していると考えられたので、本研究では、坏土と比較して形状が異なる風化花崗岩中の粘土鉱物、特にハロイサイトに注目して反りに与える影響について評価した。坏土にハロイサイト分を添加した場合の結果を図9に示す。図より、ハロイサイト分を配合した粘土は口金の高さに依存せずほぼ一定の値を示したことから、ハロイサイト分を配合した粘土は土練機成形の影響が小さく、むしろ坏土にハロイサイトを配合すると、反りを抑制

する効果があることが判明した。よって、風化花崗岩の配合により反りが増大した原因は、風化花崗岩中の他の成分である石英粒あるいは雲母の影響によると推測された。今後、これらの成分の影響を評価して風化花崗岩の配合による反り量増大の原因を明らかにし、風化花崗岩配合粘土の反り量の低減を検討していく予定である。

文 献

- 1) 塩村隆信, 川谷芳弘. 石州瓦坏土および瓦製品の品質調査 (平成2年度～平成5年度). 島根県立工業技術センター研究報告. 1993, 30, p.53-57.
- 2) 塩村隆信, 川谷芳弘. 石州瓦坏土および瓦製品の品質調査 (1993年度～1996年度). 島根県立工業技術センター研究報告. 1996, 33, p.53-56.
- 3) 塩村隆信, 川谷芳弘, 若槻和郎, 永島晴夫. 瓦用粘土を配合した金城地区風化花崗岩の焼成性状. 島根県立工業技術センター研究報告. 1994, 31, p.14-21.
- 4) 原田達也, 若槻和郎, 上野敏之, 川谷芳弘. 未利用粘土活用技術の開発－低品位粘土を用いた瓦用坏土による石州瓦の試作－. 島根県産業技術センター研究報告. 2002, 39, p.75-78.
- 5) 原田達也, 若槻和郎, 上野敏之, 長野和秀. 未利用粘土の活用技術開発－海成粘土の改質と配合－. 島根県産業技術センター研究報告. 2003, 40, p.41-46.
- 6) 原田達也, 若槻和郎. 風化花崗岩配合粘土の焼成における変形挙動. 島根県産業技術センター研究報告. 2009, 45, p.34-38.
- 7) 陣内和彦, 向山広. 花崗岩の風化による諸性質の変化 特に工業原料としての利用を目的として. 鉱山地質. 1973, vol.23, p.411-423.
- 8) 中島剛, 原田達也, 江木俊雄. 石州瓦坏土および瓦製品の品質調査 (2006年～2010年). 島根県産業技術センター研究報告. 2012, 48, p.39-42.
- 9) 素木洋一. “乾燥”. セラミック製造プロセスⅢ. 第1版, 技報堂出版, 1979, p.1-71.