

資 料

風化花崗岩配合粘土の焼成における変形挙動

原田 達也*・若槻 和郎*

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、長年の採掘による良質な粘土の減少が問題となっている^{1), 2)}。これに対し、塩村ら³⁾は原料に関する一連の研究を行い、島根県浜田市金城町近辺に分布する変質した花崗岩(以下、風化花崗岩とする)が原料粘土の一部として配合利用できること、さらに、その配合粘土の耐火度が高くなることを報告した。この中には、風化花崗岩を配合することにより、耐火度が低いため現在利用されていない粘土(以下、低品位粘土とする)が石州瓦原料として利用できることが示唆されており、これを踏まえて筆者ら⁴⁾は、風化花崗岩と低品位粘土の配合割合を変えた瓦の試作を行い、通常製品と同等の品質になることを示した。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。

この風化花崗岩に関する一連の研究には、都野津層の粘土に風化花崗岩を配合すると割れあるいはねじれ(変形)が減少する傾向にあるという優位性も指摘されているが、これを正確に示すデータが少ないため、詳細には検討されていない。

そこで、筆者らは風化花崗岩の配合比を変えた粘土を用いて、焼成過程におけるねじれについて評価を行ったので、その結果について報告する。

2. 方 法

2.1 原料

原料は風化花崗岩、日貫(ひぬい)マサ⁵⁾(以下、日貫とする)低品位粘土および現在使用されている石州瓦坏土(以下、坏土とする)の4種類を用いた。日貫は従来より使用実績のある原料の中でも配合効果が風化花崗岩に類似しており、風化花崗岩との比較のために選定した。低品位粘土は耐火度が低く現時点では未利用であるが将来的に利用する可能性が高いものである。また坏土は現在の粘土の基準とするために選定した。風化花崗岩は浜田市金城町下原で採取し、低品位粘土および日貫は石州瓦メーカーが保有す

る原料土を用いた。また、坏土は石州瓦メーカーが使用している配合調製済みの粘土を用いた。これらの原料のうち低品位粘土および坏土を主粘土として用い、それぞれの粘土に風化花崗岩を配合し、ねじれの大きさを焼成時の変形量を基に検討した。また、日貫は低品位粘土に配合し、風化花崗岩配合粘土との比較に用いた。

2.2 前処理

風化花崗岩は $105 \pm 5^\circ\text{C}$ で乾燥させ、アルミナボール($\phi 30\text{mm}$)と質量比1:1の割合で混合し、アルミナボールミル($\phi 550\text{mm}$, L350mm)の中で1時間乾式粉碎後、振動ふるいで $250\mu\text{m}$ 以下に分級した。低品位粘土および瓦坏土は、自然乾燥物をジョークラッシャーとロールクラッシャーにて粗粉碎した。

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全部で11種類配合し、それぞれ逆流式混合機(アイリッヒ製RV02)で攪拌・混合した。次に、乾燥質量基準で含水率が約20mass%になるように水を加えてポリエチレン袋中で混練した後、12時間以上静置して水分を均一化し、それぞれ真空土練機で押し出し成形して、約 $220 \times 70 \times 12\text{mm}$ の板状試験体を作製した。この試験体にノギスで200mm間隔に刻印し自然乾燥した。その後、 $105 \pm 5^\circ\text{C}$ で強制乾燥後、電気炉を用いて $1160^\circ\text{C} \sim 1240^\circ\text{C}$ の温度範囲で焼成した。焼成は、図1に示すようにムライトチューブ($\phi 8\text{mm} \times 80\text{mm}$)を用いて試験体をノギスの刻印の間隔で支持して行った。

2.4 物性測定

各原料は既報²⁾に従って粒度分布測定、耐火度測定およ

表1 粘土の配合割合(mass%)

No.	低品位粘土	坏土	風化花崗岩	日貫マサ
1	100	—	—	—
2	90	—	10	—
3	80	—	20	—
4	70	—	30	—
5	90	—	—	10
6	80	—	—	20
7	70	—	—	30
8	—	100	—	—
9	—	90	10	—
10	—	80	20	—
11	—	70	30	—

*研究開発グループ

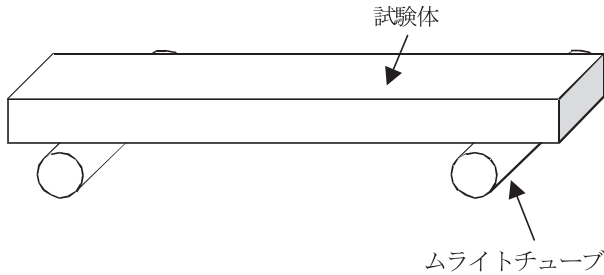


図1 焼成試験模式図

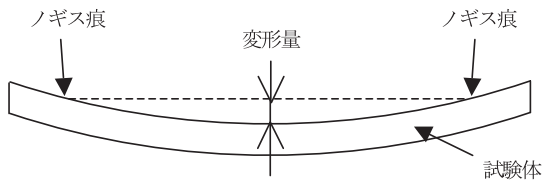


図2 変形量の測定模式図

び化学組成の分析を行い、あわせてX線回折測定および電子顕微鏡観察を実施した。X線回折測定はX線回折装置(島津製作所製XRD-6000)を用い、Cu-K α 線、管電圧40kV、管電流30mA、走査速度2°/min.の条件で行った。電子顕微鏡観察は金属(Au-Pd)を蒸着してから走査電子顕微鏡(日立製作所製S-3500N)により行った。配合粘土については、乾燥した試験体の寸法を測定した後、既報²⁾に従って粒度分布測定および耐火度測定を行った。

焼成後の試験体について、図2に示すノギス痕間の中心部における変形量をデプスゲージにて測定した。さらに、焼成前後の幅方向の寸法を測定して収縮率を算出し、JIS A 5208に従って焼成後の吸水率を測定した。

3. 結 果

3.1 使用原料および配合粘土の性状

3.1.1 原料の性状

使用した原料の耐火度と粒度組成を表2に、化学分析値を表3に示す。

3.1.2 風化花崗岩

風化花崗岩は、表2より他の原料よりも極めて耐火度が高く、2 μ m以下の粘土分の割合が小さいことが分かる。化学分析値は表3に示したようにAl₂O₃分が多く、Fe₂O₃分およびK₂O分が少なく、CaO分とNa₂O分は0mass%に近い値となった。X線回折の結果より石英、カオリン鉱物(カオリナイトおよびハロイサイト)、雲母粘土鉱物からなり、長石が随伴していた。電子顕微鏡観察の結果よりカオリン鉱

物は主にハロイサイトであった。

3.1.3 低品位粘土

低品位粘土は、表2に示したように石州瓦業界で現在使用されている坏土と比較すると耐火度が低く、表3において他の原料と比較するとMgO、CaO、Na₂OおよびK₂O分が多かった。また、X線回折結果より石英、長石、カオリン鉱物、スメクタイト、雲母粘土鉱物を含んでおり、他の原料と比較すると長石およびスメクタイトの回折ピーク強度が強くと、これらの含有量が大きいと推察される。

3.1.4 坏土

坏土はX線回折結果より石英、長石、カオリン鉱物からなり、雲母粘土鉱物とスメクタイトを随伴していた。表2の粒度組成における粘土分の割合は石州瓦業界の平均値(32mass%; 2007年6月)と比較すると大きかった。他方、耐火度(表2)および化学分析値(表3)は石州瓦業界の平均値(2007年)とほぼ同等であった。

3.1.5 日貫

日貫はX線回折結果より石英、長石、カオリン鉱物、雲母粘土鉱物からなり、スメクタイトを随伴していた。以前は耐火度SK20~32の範囲内のものが瓦原料とされていた⁵⁾のに対し、今回採取した試料は表2に示したように耐火度がSK18(+)であった。したがって、現在石州瓦メーカーで用いられている日貫は、従来瓦用原料とされていたものよりも耐火度の低い原料であることが分かった。このように耐火度の低い日貫を使わざるをえないことから、SK20~32の範囲内の良質な日貫はほぼ枯渇したと思われる。

3.1.6 配合粘土

配合粘土の耐火度と粒度組成を表4に、配合粘土の砂分の粒度組成を表5に示す。表4に示したように、風化花崗岩を配合した粘土はその配合割合に比例して耐火度が大きくなった。他方、日貫を低品位粘土に配合することにより配合物の耐火度が少し高くなったが、配合割合が大きくなっても同様の耐火度であった。

表2 原料の耐火度と粒度組成

試料名	耐火度 (SK)	粒度組成(mass%)		
		砂分 (75 μ m以上)	シルト分 (75~2 μ m)	粘土分 (2 μ m以下)
風化花崗岩	33	25	58	17
日貫マサ	18(+)	48	32	20
低品位粘土	15(-)	13	58	29
坏土	18	18	45	37

表3 原料の化学分析値(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	68.7	0.28	20.5	1.31	0.06	0.21	0.01	0.08	1.86	6.73
日貫マサ	73.0	0.28	15.4	2.24	0.09	0.44	0.20	0.37	2.70	4.59
低品位粘土	69.6	0.59	17.1	2.74	0.05	0.61	0.40	1.17	2.95	4.56
坏土	71.2	0.60	16.4	2.88	0.03	0.48	0.28	0.56	2.25	5.06

*) 強熱減量

表4 配合粘土の耐火度と粒度組成

試験体名* (mass%)	耐火度 (SK)	粒度組成(mass%)		
		砂分	シルト分	粘土分
		(75 μ m以上)	(75~2 μ m)	(2 μ m以下)
低品位粘土 100	15(-)	13	58	29
低:風=90:10	16	15	55	30
低:風=80:20	17	16	54	30
低:風=70:30	18(+)	16	53	31
低:日=90:10	16	16	54	30
低:日=80:20	16	18	51	31
低:日=70:30	16	20	49	31
坏土 100	18	18	45	37
坏:風=90:10	19	19	44	37
坏:風=80:20	19(+)	21	42	37
坏:風=70:30	20	22	42	36

*) 低:低品位粘土, 風:風化花崗岩, 日:日貫マサ, 坏:坏土

表5 配合粘土の砂分の粒度組成

試験体名* (mass%)	砂分の粒度組成(mass%)				
	850 μ m 以上	850~ 500 μ m	500~ 250 μ m	250~ 150 μ m	150~ 75 μ m
	低品位粘土 100	0	1	2	3
低:風=90:10	1	1	2	4	7
低:風=80:20	0	1	2	5	8
低:風=70:30	0	1	2	5	8
低:日=90:10	1	2	4	3	6
低:日=80:20	1	2	5	4	6
低:日=70:30	1	3	6	4	6
坏土 100	1	4	5	3	5
坏:風=90:10	1	3	5	4	6
坏:風=80:20	1	3	4	6	7
坏:風=70:30	1	2	4	7	8

*) 低:低品位粘土, 風:風化花崗岩, 日:日貫マサ, 坏:坏土

3.2 焼成過程における変形量

各配合粘土の焼成過程における変形量を図3～図5に示す。いずれの配合粘土でも風化花崗岩あるいは日貫を配合すると配合割合が大きくなるほど変形量が小さくなり、焼成温度が高くなるのに従って変形量が大きくなった。図3および図5より、もともと変形量の大きい低品位粘土に風化花崗岩を配合する方が、坏土に風化花崗岩を配合するより変形を抑える効果が高かった。低品位粘土と日貫の配合粘土でも変形は抑えられているが、今回の配合粘土の中ではもっとも変形を抑える効果が低かった。

また、表4、図3および図5より、低品位粘土または坏土に風化花崗岩を配合した粘土は耐火度が高くなるほど変形量が小さくなる傾向を示した。他方、日貫は配合割合に関わらず同様の耐火度であったが、配合割合が大きくなるほど変形量が小さくなった。この原因として次の2つのことが推察される。表4において低品位粘土と日貫の配合粘土の耐火度はSK16と同じ数値であるが、耐火度を溶倒温度に換算すると、SK15は1435℃、SK16は1460℃、SK17は

1480℃に相当し、それぞれのSK番号間に20℃程度の温度幅がある。このことから、日貫の配合割合が大きくなるのに従って配合物の溶倒温度がSK番号の明確な差のない範囲で高くなり、日貫の配合割合が大きくなると変形量が小さくなったと考えられる。もう1つの原因として配合粘土中の粗粒の存在が挙げられる。瓦用粘土の焼成時の挙動について、田中⁶⁾は石英の粗粒(0.5～1.0mm程度)を混合することにより溶融変形を防止する効果があるとしている。これは粗粒に骨材の効果があるためと考えられている。今回の配合粘土では、表5に示したように日貫の配合割合が大きくなるほど150～850 μ mの粗粒の割合が大きくなっていることにより変形量が抑えられたことが考えられる。これら2つの要因により、配合粘土の高温時の変形には耐火度だけでなく粗粒の割合が影響している可能性が推察される。

さらに、現行の粘土と比較するため、各焼成温度における坏土100mass%の変形量を基準とする各配合粘土の変形比を算出した。その結果を図6～図8に示す。図6および図8より低品位粘土は坏土と比較すると約2.3倍の変形量であ

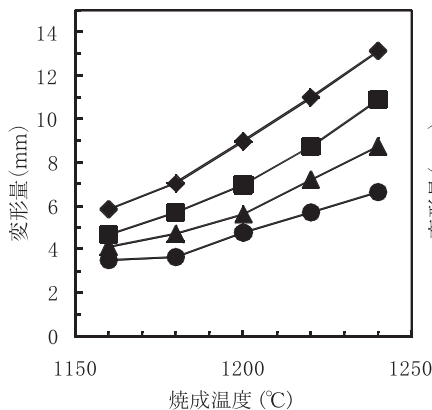


図3 低品位-風化花崗岩の配合比と焼成による変形量の関係
(◆: 低品位粘土100, ■: 低品位粘土:風化花崗岩=90:10, ▲: 低品位粘土:風化花崗岩=80:20, ●: 低品位粘土:風化花崗岩=70:30 (mass%))

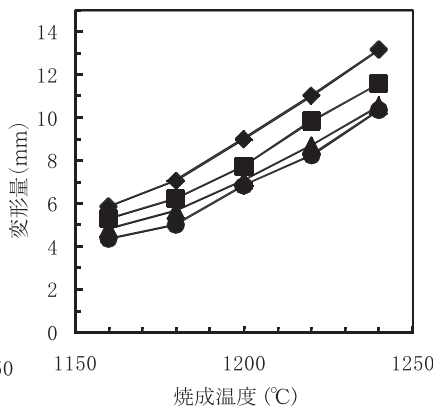


図4 低品位-日貫の配合比と焼成による変形量の関係
(◆: 低品位粘土100, ■: 低品位粘土:日貫=90:10, ▲: 低品位粘土:日貫=80:20, ●: 低品位粘土:日貫=70:30 (mass%))

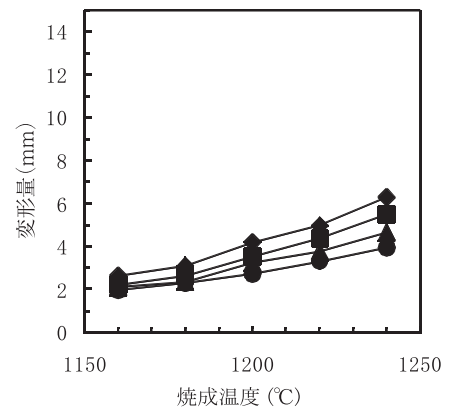


図5 坏土-風化花崗岩の配合比と焼成による変形量の関係
(◆: 坏土100, ■: 坏土:風化花崗岩=90:10, ▲: 坏土:風化花崗岩=80:20, ●: 坏土:風化花崗岩=70:30 (mass%))

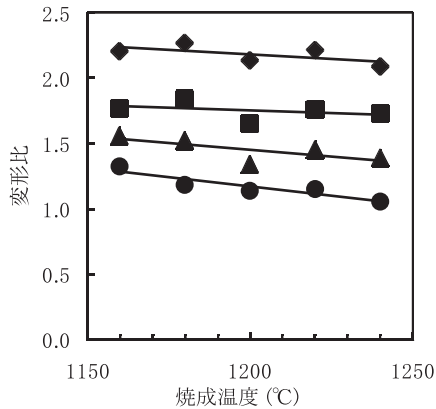


図6 低品位-風化花崗岩の配合比と焼成による変形比の関係(坏土100基準)
(◆: 低品位粘土100, ■: 低品位粘土:風化花崗岩=90:10, ▲: 低品位粘土:風化花崗岩=80:20, ●: 低品位粘土:風化花崗岩=70:30 (mass%))

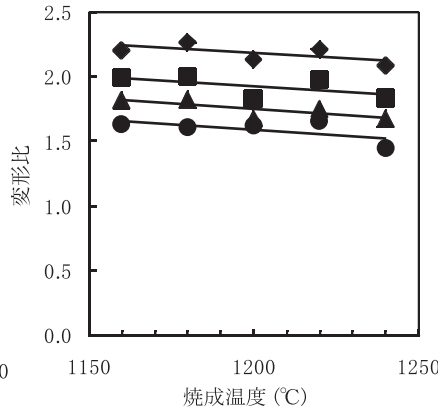


図7 低品位-日貫の配合比と焼成による変形比の関係(坏土100基準)
(◆: 低品位粘土100, ■: 低品位粘土:日貫=90:10, ▲: 低品位粘土:日貫=80:20, ●: 低品位粘土:日貫=70:30 (mass%))

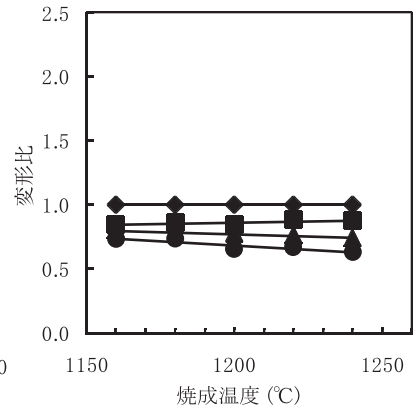


図8 坏土-風化花崗岩の配合比と焼成による変形比の関係(坏土100基準)
(◆: 坏土100, ■: 坏土:風化花崗岩=90:10, ▲: 坏土:風化花崗岩=80:20, ●: 坏土:風化花崗岩=70:30 (mass%))

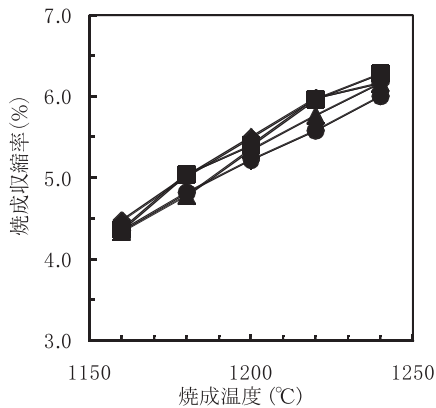


図9 低品位-風化花崗岩の配合比と焼成による収縮率の関係
(◆: 低品位粘土100, ■: 低品位粘土:風化花崗岩=90:10, ▲: 低品位粘土:風化花崗岩=80:20, ●: 低品位粘土:風化花崗岩=70:30 (mass%))

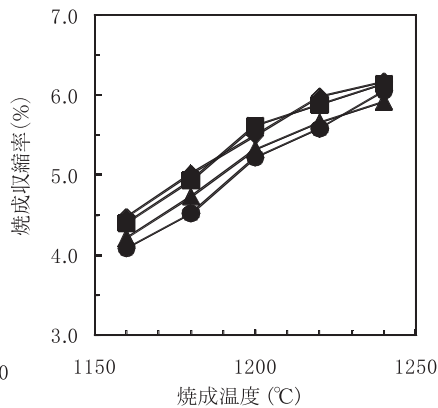


図10 低品位-日貫の配合比と焼成による収縮率の関係
(◆: 低品位粘土100, ■: 低品位粘土:日貫=90:10, ▲: 低品位粘土:日貫=80:20, ●: 低品位粘土:日貫=70:30 (mass%))

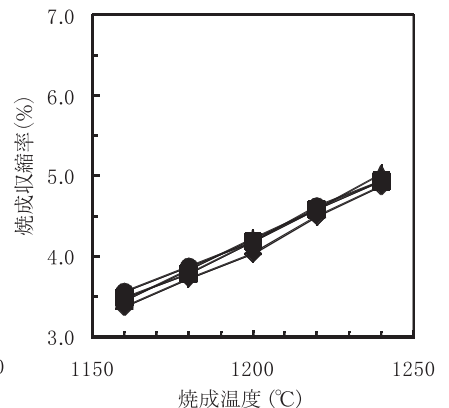


図11 坏土-風化花崗岩の配合比と焼成による収縮率の関係
(◆: 坏土100, ■: 坏土:風化花崗岩=90:10, ▲: 坏土:風化花崗岩=80:20, ●: 坏土:風化花崗岩=70:30 (mass%))

った。しかし、低品位粘土に風化花崗岩を30mass%配合すると変形比は1に近づき坏土100mass%の変形量と同程度になることが分かった。図6および図7より低品位粘土に日貫を30mass%配合した粘土より風化花崗岩を20mass%配合した粘土の変形比が低く、風化花崗岩は日貫より変形を抑える効果が高いことが明らかとなった。

3.3 焼成収縮率

各配合粘土の焼成収縮率を図9～図11に示す。低品位粘土に風化花崗岩あるいは日貫を配合すると、いずれの場合も焼成収縮率が低下した。それに対して、坏土と風化花崗岩の配合粘土では焼成収縮率に有意な差は認められなかった。このように、坏土に風化花崗岩を配合した場合には、焼成収縮率を一定に保ったまま焼成時の変形量のみを低下させる変形抑制効果が明確に認められた。しかし、本試験の配合割合では低品位粘土に風化花崗岩、日貫のいずれを配合しても坏土100mass%よりも高い焼成収縮率となった。

これは配合粘土の主原料とした低品位粘土が坏土よりも著しく高い収縮率であったため、風化花崗岩あるいは日貫を添加しても坏土100%の焼成収縮率と同等にならなかったと考えられる。

3.4 吸水率

図12～図14に各配合粘土の焼成試験体の吸水率を示す。いずれの配合でも焼成温度の上昇に従い吸水率が低くなった。低品位粘土に風化花崗岩を20～30mass%配合した粘土と坏土100 mass%がほぼ同じ結果を示した。3.2の変形量と同様に、風化花崗岩配合粘土は低品位粘土、坏土に配合した場合とも、配合割合が大きくなると配合粘土の耐火度が高くなり、吸水率も高くなった。石州瓦業界の吸水率の平均値が4.8mass%(2007年6月)であることから、坏土に対して風化花崗岩の配合割合を大きくするのであれば焼成温度を上げるなどの対応が必要になる。

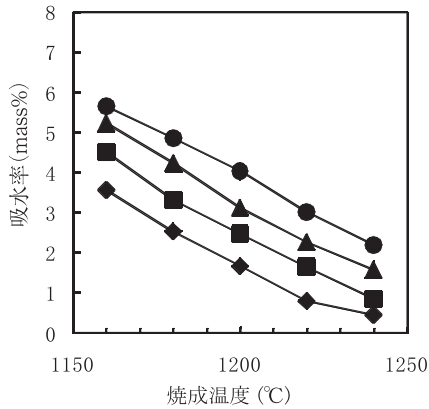


図12 低品位-風化花崗岩の配合比と焼成後の吸水率の関係
 (◆：低品位粘土100, ■：低品位粘土:風化花崗岩=90:10, ▲：低品位粘土:風化花崗岩=80:20, ●：低品位粘土:風化花崗岩=70:30 (mass%))

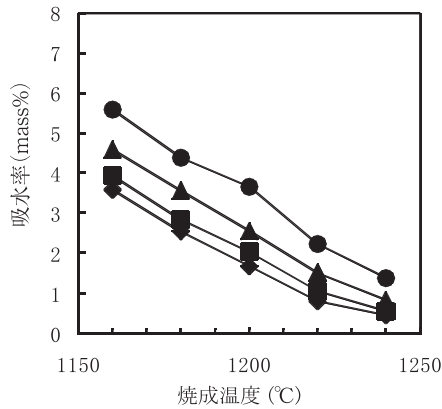


図13 低品位-日貫の配合比と焼成後の吸水率の関係
 (◆：低品位粘土100, ■：低品位粘土:日貫=90:10, ▲：低品位粘土:日貫=80:20, ●：低品位粘土:日貫=70:30 (mass%))

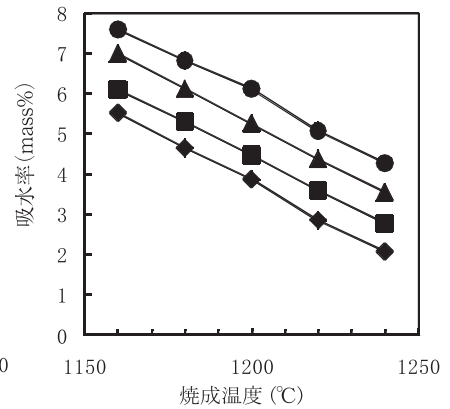


図14 坏土-風化花崗岩の配合比と焼成後の吸水率の関係
 (◆：坏土100, ■：坏土:風化花崗岩=90:10, ▲：坏土:風化花崗岩=80:20, ●：坏土:風化花崗岩=70:30 (mass%))

以上より次のことが明らかになった。(1)風化花崗岩を低品位粘土に30 mass%配合することにより、坏土100mass%の変形量と同程度になる、(2)変形量が大きい低品位粘土に風化花崗岩を配合した方が変形を抑える効果が顕著に現れる、(3)風化花崗岩は日貫より変形を抑える効果が高い、(4)風化花崗岩の配合により焼成素地の吸水率が高くなることに注意を要する。

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). 鳥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). 鳥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. 鳥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-. 鳥根県産業技術センター研究報告. 2002, 39, p.75-78.
- 5) 井上多津男, 若槻和郎, 長野和秀. 鳥根県石見町有安に産出する瓦原料としての変質火砕岩. 鳥根県立工業技術センター研究報告. 1988, 25, p.21-25.
- 6) 田中稔. "焼成による素地の変化". 粘土瓦ハンドブック. 田中稔. 第1版, 技報堂出版, 1980, p.195-196.