

## 汚泥の低温焼結技術の開発 (第2報)

熊谷 哉\*, 伊藤 隆\*\*, 林 茂雄\*, 橋本 典嗣\*

### Study of Low-Temperature Firing Technique for the Incinerated Ash of Sewage Sludge (2nd Report)

by Hajime KUMAGAI\*, Takashi ITO\*\*, Shigeo HAYASHI\*  
and Noritsugu HASHIMOTO\*

This paper describes a effective utilization of the incinerated ash of sewage sludge aimed at studying the production of large ceramic tiles using the extrusion method. The characterization of the incinerated ash of sewage sludge was presented in our previous paper. In this paper, low-temperature firing technique for the incinerated ash of sewage sludge and the expansion of its sintering region are discussed. The body of ceramic tiles, which consist of incinerated ash of sewage sludge, clays and chamotte was developed from the results of trial production of small ceramic tiles. We are successful in producing the large ceramic tiles, and its quality satisfies Japanese industrial standards.

Key words: sewage sludge, low-temperature firing technique, ceramic tiles, extrusion method

#### 1. はじめに

下水道の普及にともない全国的に下水汚泥の発生量が、年々増加して社会問題となっている。下水汚泥のほとんどは埋め立て処分されているが、埋め立て処分場の容積にも限界がある。そこで、多くの自治体では汚泥の減容化、減量化、無害化及び再資源化などの取り組みがなされている。

本研究では、下水汚泥焼却灰の有効利用を行うために窯業原料として活用する方法について検討を行ってきた。第1報<sup>1)</sup>において、下水汚泥焼却灰の特性の把握と県内外の下水汚泥に関する調査を行い、押出し成形法を用いた大型タイルの低温焼成技術の開発について報告した。本報告では、以下の4点について報告する。(1)下水汚泥焼却灰の安全性を検討するためにダイオキシン類の分析結果を示す。(第1報では、下水汚泥のキャラクターゼーションとして、毒性を

示す重金属類の分析結果を示した。)

次に、下水汚泥焼却灰単体では焼結温度幅が狭いという問題がある。第1報では、下水汚泥焼却灰に珪石、ベーマイト、カオリン、長石、及び石灰石をそれぞれ添加した系の焼結性について報告した。しかし、これらの原料を用いても焼成温度幅の大幅な拡大は得られなかった。そこで、(2) 焼結温度幅の拡大を目的として、下水汚泥焼却灰に廃ガラス粉を添加した2成分系、下水汚泥焼却灰にカオリンと廃ガラス粉を添加した3成分系、及び3成分系のカオリンを種々の粘土に置換した場合について、焼結性の試験を行った。

第1報では、大型タイルの試作を目的に、予備試験として押出し成形法による小型タイルの試作を行った。そこでは、押出し成形を行うために必要な可塑性を付与する可塑性粘土の配合割合の検討を行った。また、大型タイルの製造においては、製造の歩留まりを向上させるために、成形後の乾燥切れ、歪み、及び焼成での歪み等の欠点を防止することが重要である。それ

\* 窯業センター材料開発グループ

\*\* 窯業センター応用技術グループ



析結果を表3に示す。

これら原料粉体の混合物は1t/cm<sup>2</sup>の圧力でプレス成形を行い25mmφの円柱状の試験体とした。各試験体は電気炉を用いて所定の温度まで200℃/hで昇温し、所定温度で30分間保持を行い焼成した。これらの焼成体の焼結特性を評価するために、アルキメデス法により吸水率と嵩密度を求めた。

### 2. 3 小型タイルの試作

#### 2. 3. 1 可塑性粘土の検討

タイルを成形するための可塑性付与と低温焼結を目的に、可塑性粘土として低温で焼結する耐火度SK20の赤松粘土と耐火度SK10の青岩粘土(各々原土)の2種類の雑粘土を選んだ。これらの粘土は、ともに単価が約5,000円/t(原土ベース)である。蛍光X線分析装置による2種類の粘土の化学分析結果を表4に、粘土単体での焼成性状を表5にそれぞれ示す。

これらの粘土と下水汚泥焼却灰を表6に示した配合割合でそれぞれ6時間湿式粉碎混合した。これらの素地を乾燥してから、アイリッヒミキサーを用いて、水を適量添加して練り土状態にし、小型の押し成形機を用いて厚さ1cm、幅3cm、及び全長12cmの小型タイル試験体を作製した。試験体は、電気炉を用いて1060,1080,1100,及び1120℃の各温度にて焼成を行った。焼成した小型タイル試験体の焼成性状を比較するため

に、収縮率、吸水率、及び嵩密度を測定した。また、曲げ試験装置を用いて、日本工業規格「ファインセラミックスの曲げ強さ試験方法」(JIS R 1601-1995)<sup>2)</sup>に従い、3点曲げ強さを求めた。

#### 2. 3. 2 シャモットの粒度を変えた配合試験

素地に粒度の異なるシャモットを添加した場合の焼成性状に与える影響を調べるために、市販の赤シャモットを100メッシュ篩上(>140μm)と42メッシュ篩上(>355μm)の2種類に調整した。

下水汚泥焼却灰と赤松粘土を等量混合し、ポットミルで6時間湿式粉碎して素地を作製した。次に乾燥した素地に対して2種類の赤シャモットを外割で20%添加し、2.3.1と同様に成形、焼成し、焼成性状を測定した。それら素地の配合割合を表7に示す。

#### 2. 3. 3 廃ガラス粉を添加した素地の配合試験

陶磁器質タイルの素地に廃ガラス粉を添加すると、焼結温度幅を広げ、焼結温度を下げる効果が期待できる。このことと、廃ガラス粉の有効利用のために、下水汚泥焼却灰の一部を廃ガラス粉に置き換えた配合にして試験を行った。

表8に示す配合割合の混合物をポットミルを用いて6時間湿式粉碎して素地を作製した。これらの素地を2.3.1と同様に成形、焼成し、焼成性状を測定した。なお、廃ガラス粉は表2に示した無色と有色の2種類を用いた。

表4 赤松粘土と青岩粘土の化学分析値(wt%)

	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	CaO	MgO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	Ig. Loss
赤松粘土	67.95	18.36	2.62	1.03	0.32	0.68	0.08	1.74	tr.	6.80
青岩粘土	60.35	18.07	7.50	0.97	0.67	2.00	1.50	2.79	tr.	5.90

表5 赤松粘土と青岩粘土の各温度における焼成性状

#### (a) 赤松粘土

	1060℃	1080℃	1100℃	1120℃	1140℃
焼成収縮率(%)	3.7	4.4	5.2	5.8	6.9
吸水率(%)	11.2	9.8	8.2	6.5	4.7

#### (b) 青岩粘土

	1060℃	1080℃	1100℃	1120℃	1140℃
焼成収縮率(%)	9.5	11.2	11.6	11.5	11.3
吸水率(%)	2.9	0.3	0.1	0.1	0.1

表6 可塑性粘土の配合割合(wt%)

	下水汚泥焼却灰	赤松粘土	青岩粘土
50	50	50	0
50	40	10	50
50	30	20	50
50	20	30	50
50	10	40	50

表7 粒度の異なるシャモットを添加した素地の配合割合 ( wt%)

下水汚泥焼却灰	赤松粘土	赤シャモット (100メッシュ篩上)	赤シャモット (42メッシュ篩上)
50	50	20	-
50	50	-	20

表8 廃ガラス粉を添加した素地の配合割合 ( wt%)

下水汚泥焼却灰	赤松粘土	無色廃ガラス粉	有色廃ガラス粉
30	40	30	0
30	40	0	30

### 2. 3. 4 タイルの軽量化試験

タイル用素地に、おがくずを添加して焼成することで焼成体に空隙を作り、軽量化を行う方法が一般に用いられている。また、第1報において石灰石を添加することにより焼結を抑え、収縮率を小さくすることを示した。この方法を用いても、タイルを軽量化できると考えられる。これら2つの方法を用いた予備試験の結果、おがくずを外割で20%添加すると押出し成形が不可能であり、石灰石が外割で10%以下の添加では焼結を抑えることができないことがわかった。そこで、表9に示す4種類の配合割合の混合物を2.3.1と同じ方法にて小型タイルを成形し、焼成して焼成性状を測定した。

### 2. 4 大型タイルの試作と品質試験

#### 2. 4. 1 大型タイルの試作

大型タイルを試作するにあたり、最初に試験用の素地を次の操作にて調製した。まず、下水

汚泥焼却灰と赤松粘土を等量配合し、トロンメルを用いて6時間湿式粉砕を行った後、フィルタープレスを用いて脱水した。次に、市販の赤シャモット（粒度分布を表10に示す）を外割で20%添加して、循環式混練機を用いて混練して大型タイルの試験用素地とした。そして、真空土練機を用いた押出し成形法で大型タイルを成形した。しかし、乾燥過程での歪みや亀裂が多く発生したため、試験用素地に良質の木節粘土とシャモットをさらに添加混練して、大型タイルの押出し成形に適した配合を求めた。再調製した大型タイル用素地は、真空土練機を用いて押出し成形を行った。そして乾燥した後に室温から800℃まで8時間かけて昇温し、800℃で1時間保持し、続いて800℃から1100℃まで4時間かけて昇温し、1100℃で1時間保持するという条件で焼成を行い、30cm角大型タイルを作製した。

表9 タイルの軽量化試験用素地の配合割合 ( wt%)

下水汚泥焼却灰	赤松粘土	赤シャモット	おがくず	石灰石
50	50	20	5	20
50	50	20	5	30
50	50	20	10	20
50	50	20	10	30

表10 市販赤シャモットの粒度分布 ( wt%)

14メッシュ篩上 (粒径 >1300 $\mu$ m)	20メッシュ篩上 (>864 $\mu$ m)	42メッシュ篩上 (>355 $\mu$ m)	100メッシュ篩上 (>140 $\mu$ m)	200メッシュ篩上 (>74 $\mu$ m)	200メッシュ篩下 (<74 $\mu$ m)
1.18	13.15	25.21	23.69	14.20	22.60

#### 2. 4. 2 大型タイルの品質試験

試作した大型タイルの結晶組成を調べるために粉末X線回折装置を用いて結晶相の定性分析を行った。

次に、タイルの環境に対する安全性を調べるために、環境庁告示第13号 産業廃棄物に含まれ

る金属等の検定方法<sup>3)</sup>に従い、溶出試験を行った。試験にあたっては、試作タイルを粉砕し日本工業規格 試験用ふるい<sup>4)</sup>(JIS Z 8801-1994)にて規定されたふるいの目開き寸法300 $\mu$ m (ASTM 50メッシュ)の網ふるいを通したものを試料とした。抽出液としてpH6.21の蒸留水を用いて、

三角フラスコ(300ml)に試料30gと抽出液300mlを加え(試料:蒸留水=1:10),恒温振とう器を用いて,20℃で6時間,200rpmの条件にて振とうを行った.振とう終了後30分以内にろ紙(5C)を用いて吸引濾過を行い,溶出液を得た.溶出液のpHは7.23であった.溶出液の鉛とカドミウムの含有量は,原子吸光分光光度計にて測定を行った.

最後に,30cm角大型タイルの製品としての品質を調べるために,日本工業規格「陶磁器質タイル」(JIS A 5209-1994)<sup>5)</sup>に従って試験を行った.試験項目は,吸水率,耐摩耗性,曲げ強さ,耐凍害性,及び耐薬品性の5項目とした.

#### 2. 4. 3 大型タイルの性能実証試験

試作した30cm角大型タイルの性能を調べるための実証試験として,平成12年1月から3月の約3カ月間野外に敷き詰めて,耐候性(色の变化など)や凍害について試験を行った.

### 3. 結果と考察

#### 3. 1 下水汚泥焼却灰のダイオキシン類の分析

下水汚泥焼却灰のダイオキシン類の含有量を分析した結果を表11に示す.ここで,TEQは毒性等量(Toxic Equivalent)であり,多数の同族体の混合物として存在するダイオキシンの毒性の強さと各同族体の量にそれぞれTEFを乗じた値を総和して表した値である.なお,TEFは毒性等価係数(Toxic Equivalency Factor)であり,個々の同族体のそれぞれの毒性強度を最も毒性の強い2,3,7,8-TCDD(2,3,7,8-4塩化ジベンゾ-パラ-ジオキシン)を1として表した係数である.また,PCDDはポリ塩化ジベンゾ-パラ-ジオキシン,PCDFはポリ塩化ジベンゾフラン,及びCoplanar PCBはコプラナーポリ塩化ビフェニルをそれぞれ示す.環境庁調査(1997年度)<sup>6)</sup>によると,日本における土壤中のダイオキシン類の濃度は,20pg-TEQ/g,コプラナーPCBの濃度は,2.2pg-TEQ/gである(合計22pg-TEQ/g)ので,表11に示した下水汚泥焼却灰中のダイオキシン類の総量(6.1pg-TEQ/g)は,土壤濃度の1/3以下の値であり,安全性において問題がないことがわかった.

表11 下水汚泥焼却灰のダイオキシン類の分析結果 (ng-TEQ/g)

Total PCDDs	Total PCDFs	Total Coplanar PCBs	Total (PCDDs+PCDFs +Coplanar PCBs)
0.002050	0.003499	0.00056	0.0061

#### 3. 2 下水汚泥焼却灰の低温焼結と焼結温度幅の拡大

##### 3. 2. 1 廃ガラス粉の添加による影響

2. 2の焼結性試験において,下水汚泥焼却灰に無色廃ガラス粉を添加した場合の焼結特性を図1に示す.図1から,廃ガラス粉を10%から50%まで添加するに伴い,焼結温度付近での嵩密度の変化が小さくなる傾向を示すことがわかる.このことから,廃ガラス粉の添加によって焼結温度幅を拡大できる可能性があると考えられる.

表2の廃ガラス粉の化学組成からもわかるように,有色の廃ガラス粉は,無色のものに比べて色の成分である鉄分が多く,クロム,マンガン等も含まれているが,他の成分はほぼ同じである.このことから実際のタイルの製造においては,安価でありリサイクル用途の限られる有色の廃ガラス粉を用いる方が望ましいと考えられる.

##### 3. 2. 2 汚泥-カオリン-廃ガラス粉の3成分系における焼結特性

下水汚泥焼却灰,カオリン(ニュージーランドカオリン)と無色廃ガラス粉の3成分系(以下,調合の名称は表1に示したものによる)における焼結の試験結果の一部を図2に示す.これらの結果より調合A1で60℃以上の焼結温度幅があることがわかった.この調合では,下水汚泥焼却灰の使用量は30%であるものの,廃ガラス粉と合わせると60%の廃棄物を含んでおり,リサイクルという観点からも理想的な調合であると考えられる.

この3成分系混合物の焼成後の結晶組成を調べるために,代表例として,調合A1について粉末X線回折装置を用いて定性分析を行った.同定された結晶は灰長石(CaAl<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub>),燐酸アルミニウム(AlPO<sub>4</sub>, Tridymite type),Ca<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>O<sub>6</sub>及び石英(SiO<sub>2</sub>)であった.

##### 3. 2. 3 汚泥-粘土-廃ガラス粉の3成分系における粘土の種類の影響

汚泥-カオリン-廃ガラス粉の3成分系において,3. 2. 2で述べたように,下水汚泥焼却灰30%,カオリン(ニュージーランドカオリン)40%と廃ガラス粉30%の割合で調合した場合(調合A1),焼結温度幅の広い良好な結果が得られた.しかし,実際のタイルの製造においては,カオリンの代わりに安価な粘土を使用することが考えられる.そのため,カオリンの代わりに,種々の粘土を用いて同様の試験を行っ

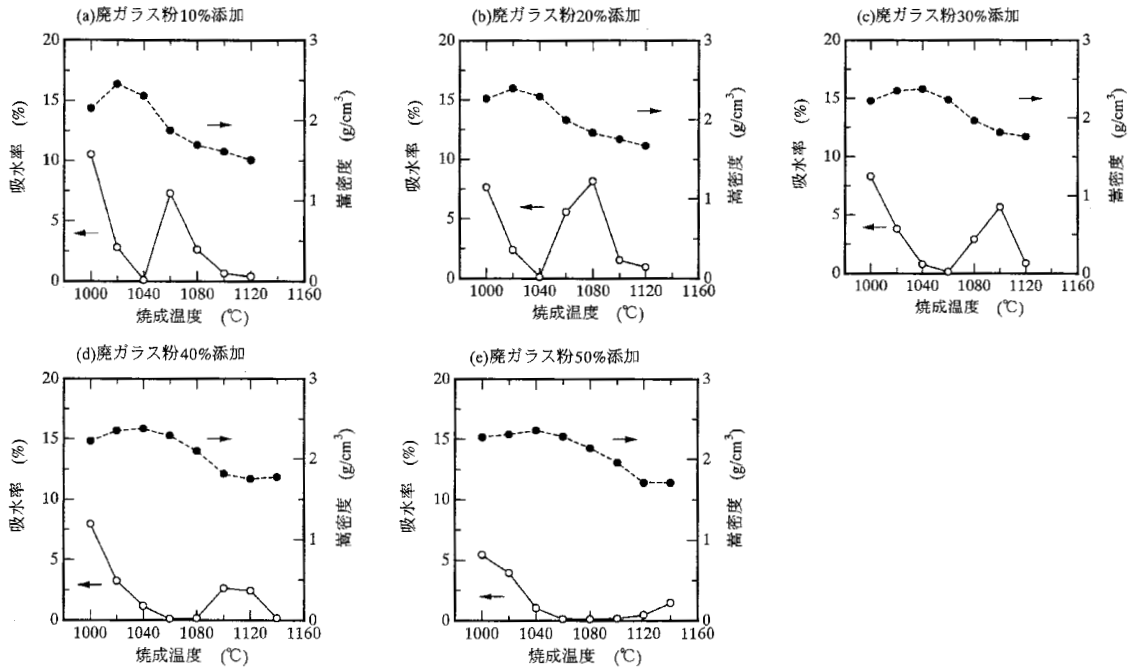


図1 廃ガラス粉を添加した場合の焼成温度と吸水率・嵩密度の関係

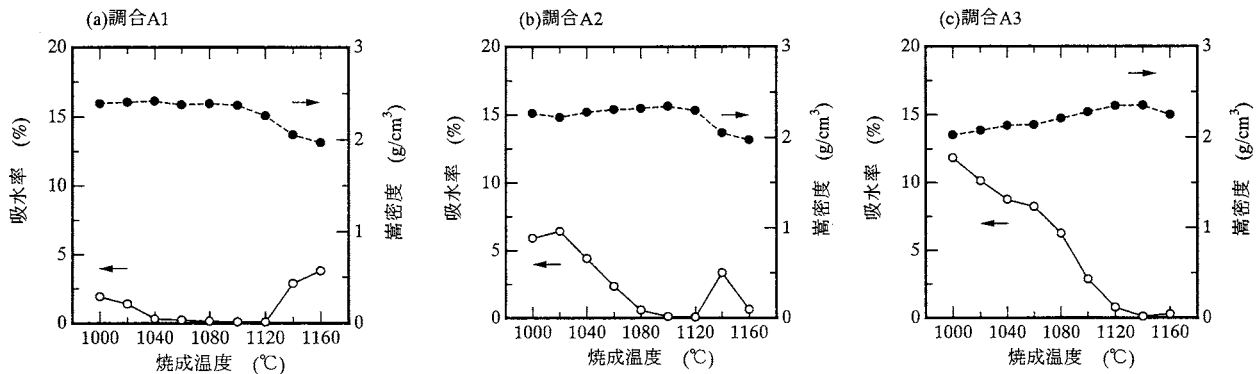


図2 下水汚泥焼却灰 - カオリン - 廃ガラス粉系における焼成温度と吸水率・嵩密度の関係

た．調査は，下水汚泥焼却灰30%，粘土40%，及び廃ガラス粉30%とした．以下，各粘土を使用した調査の名称は表3に示したものとする．

汚泥 - 粘土 - 廃ガラス粉の3成分系において，粘土の種類を変化させた場合の焼成温度と吸水率，嵩密度の関係を図3に示す．図3に示した結果は，粘土の種類によって次の3つの特性を示すグループに分けることができる．(1)調査B1のように非常に低温（1000程度）で焼結し，焼結温度幅の大きいもの．(2)カオリンとよく似た傾向を示すもので，調査B5～B9がそれにあたる．(3)調査B2～B4の焼結温度が非常に高いものである．これらの特徴は，それぞれの粘土の耐火度とは関係が無く，それら粘土に含まれる不純物の影響によるものと考えられるが，さらに検討する必要がある．

- 3. 3 小型タイルの試作
- 3. 3. 1 可塑性粘土の選定

表6に示した配合割合の試験体を各温度で焼成した時の焼成性状を表12に示す．当初，使用した2種類の可塑性粘土について，可塑性の点では赤松粘土が優れており，低温焼結の点では耐火度の低い青岩粘土が適していると思われた．しかし，表12に示したように，赤松粘土を青岩粘土に置換する割合が増加するにともない，焼結温度が上昇する結果が得られた．また，曲げ強度は，最大嵩密度の時にいずれも40MPa以上を示した．低温焼結を目的に，赤松粘土より耐火度が低い青岩粘土を使用することを試したが，むしろ耐火度の高い粘土の方が低温で焼結するという結果になった．これは，3. 2. 3の焼結性の試験においても同様な傾向がみられた．さらに，赤松粘土の方が可塑性も優れており成形性がよく，安定した製品作りには適しているという結果となった．

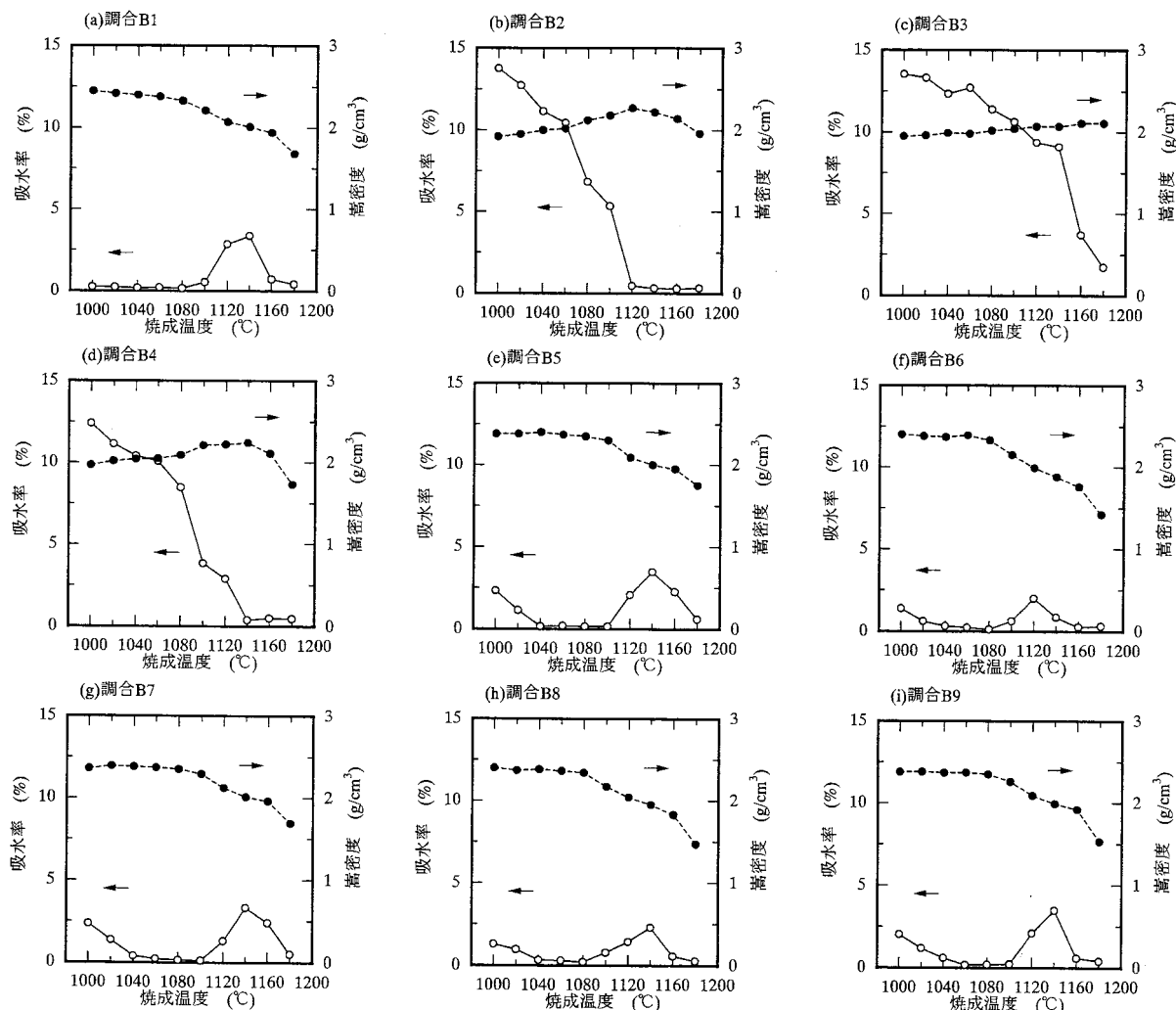


図3 3成分系にて粘土を変えた場合の焼成温度と吸水率・嵩密度の関係

表12 可塑性粘土の配合割合を変えた場合の各温度での焼成性状

(a)青岩粘土10%				
	1060℃	1080℃	1100℃	1120℃
全収縮率 (%)	-	13.0	14.1	12.4
吸水率 (%)	7.6	2.0	0.1	0.1
嵩密度 (g/cm <sup>3</sup> )	2.08	2.30	2.28	2.02
曲げ強度 (MPa)	38.2	46.3	45.7	41.1
(b)青岩粘土20%				
	1060℃	1080℃	1100℃	1120℃
全収縮率 (%)	-	11.4	13.0	11.5
吸水率 (%)	8.6	2.8	0.1	0.1
嵩密度 (g/cm <sup>3</sup> )	2.04	2.24	2.21	2.03
曲げ強度 (MPa)	36.4	42.5	33.6	30.5
(c)青岩粘土30%				
	1060℃	1080℃	1100℃	1120℃
全収縮率 (%)	7.2	10.1	11.0	10.1
吸水率 (%)	9.8	1.8	0.1	0.1
嵩密度 (g/cm <sup>3</sup> )	1.99	2.24	2.32	2.05
曲げ強度 (MPa)	26.8	40.1	47.0	32.9
(d)青岩粘土40%				
	1060℃	1080℃	1100℃	1120℃
全収縮率 (%)	6.1	9.9	10.3	9.4
吸水率 (%)	10.2	2.0	0.1	0.1
嵩密度 (g/cm <sup>3</sup> )	1.96	2.20	2.28	2.01
曲げ強度 (MPa)	27.6	35.3	42.8	31.1

3. 3. 2 シヤモットの粒度を変えた場合の焼成性状

表7に示した配合割合の試験体を各温度で焼成した時の焼成性状を表13に示す。粗い粒子のシヤモットを使用した場合、収縮率は若干大きくなる傾向にあるが、焼結温度幅の拡大という点では有意な差は見られなかった。また、強度の点でもシヤモットの粒度の変化による違いは、ほとんどなかった。従って、市販のシヤモットを粒度調整することなく、そのまま大型タ

表13 シヤモットの粒径を変えた場合の焼成性状

(a)100メッシュ篩上 (>140μm)				
	1060℃	1080℃	1100℃	1120℃
全収縮率 (%)	10.1	12.1	12.5	11.9
吸水率 (%)	5.9	1.3	0.2	0.1
嵩密度 (g/cm <sup>3</sup> )	2.15	2.32	2.39	2.26
曲げ強度 (MPa)	23.7	28.0	33.1	31.4
(b)42メッシュ篩上 (>355μm)				
	1060℃	1080℃	1100℃	1120℃
全収縮率 (%)	11.5	12.6	13.2	11.9
吸水率 (%)	5.4	1.2	0.2	0.1
嵩密度 (g/cm <sup>3</sup> )	2.17	2.32	2.37	2.21
曲げ強度 (MPa)	22.5	27.3	31.8	28.7

イル用素地の調製で使用する事とした。

### 3. 3. 3 廃ガラス粉を添加した素地の焼成性状

表8に示した配合割合の試験体を各温度で焼成した時の焼成性状を表14に示す。この結果から有色廃ガラス粉を用いた場合の方が曲げ強度強さがやや小さい値を示したが、他の焼成性状には大きな違いはみられない。このことと、3. 2. 1で述べたように無色と有色の廃ガラス粉では、主要な化学成分に違いがないことからタイルの製造において廃ガラス粉を用いる場合は、安価でリサイクル用途の限られる有色廃ガラス粉を使う方がよいと考えられる。

表14 廃ガラス粉を使った場合の焼成性状

(a)無色廃ガラス粉				
	1060℃	1080℃	1100℃	1120℃
全収縮率 (%)	5.6	6.2	6.6	5.8
吸水率 (%)	3.6	1.8	0.1	0.1
嵩密度 (g/cm <sup>3</sup> )	2.05	2.13	2.19	2.08
曲げ強度 (MPa)	47.5	47.6	53.2	45.2
(b)有色廃ガラス粉				
	1060℃	1080℃	1100℃	1120℃
全収縮率 (%)	5.3	5.4	6.1	4.9
吸水率 (%)	3.2	2.1	0.3	0.3
嵩密度 (g/cm <sup>3</sup> )	2.11	2.07	2.12	1.94
曲げ強度 (MPa)	38.9	42.3	47.5	31.1

下水汚泥焼却灰-カオリン-廃ガラス粉の3成分系では、3. 2. 2で示したように焼結温度幅も広く非常に良好な焼結性が得られた。しかし、カオリンを赤松粘土に置き換えた本配合試験では、期待していたほど焼結温度幅の拡大は得られなかった。この原因として、粉末プレス成形とミルで湿式粉碎した練り土の押出し成形の違い、及びカオリンの代わりに赤松粘土を使用したことの影響が考えられる。

以上の結果より可塑性粘土に安価な赤松粘土を用いる大型タイルの試作においては、廃ガラス粉を用いても焼結温度幅が拡大しないことから下水汚泥焼却灰の使用率を減らさないためにも、廃ガラス粉を添加しないこととした。

### 3. 3. 4 タイルの軽量化の検討

表9に示した配合割合の試験体を各温度で焼成した時の焼成性状を表15に示す。おがくずと石灰石の添加量が増加するに伴い、吸水率が増加し、嵩密度と強度は低下することがわかる。いずれの配合割合でも焼成温度が1100℃程度の場合、嵩密度は1.5g/cm<sup>3</sup>前後であり、軽量化に効果があることがわかる。また、1100℃付近で焼成すれば、吸水率と嵩密度は比較的安定した値を示しているため、焼成も容易であると考えられる。しかし、曲げ強度が弱い点で実用上の

表15 タイル軽量化用素地の各種温度での焼成性状

(a)おがくず5%, 石灰石20%添加					
	1080℃	1100℃	1120℃	1140℃	1160℃
全収縮率 (%)	1.2	1.3	2.4	4.6	8.2
吸水率 (%)	22.7	21.5	19.0	14.6	6.9
嵩密度 (g/cm <sup>3</sup> )	1.53	1.56	1.61	1.74	2.00
曲げ強度 (MPa)	11.8	13.5	17.0	18.3	24.9
(b)おがくず5%, 石灰石30%添加					
	1080℃	1100℃	1120℃	1140℃	1160℃
全収縮率 (%)	1.0	1.5	2.6	5.4	8.9
吸水率 (%)	24.6	24.1	22.0	16.7	9.3
嵩密度 (g/cm <sup>3</sup> )	1.45	1.49	1.54	1.70	1.94
曲げ強度 (MPa)	10.2	13.0	15.6	20.2	26.5
(c)おがくず10%, 石灰石20%添加					
	1080℃	1100℃	1120℃	1140℃	1160℃
全収縮率 (%)	1.2	1.6	2.6	4.7	8.9
吸水率 (%)	27.8	26.8	24.2	19.3	10.3
嵩密度 (g/cm <sup>3</sup> )	1.43	1.46	1.50	1.62	1.89
曲げ強度 (MPa)	9.2	10.2	12.6	17.6	22.7
(d)おがくず10%, 石灰石30%添加					
	1080℃	1100℃	1120℃	1140℃	1160℃
全収縮率 (%)	1.0	1.6	2.9	5.7	9.2
吸水率 (%)	29.3	28.2	25.2	18.8	10.7
嵩密度 (g/cm <sup>3</sup> )	1.40	1.43	1.49	1.65	1.89
曲げ強度 (MPa)	8.6	10.4	14.6	19.0	22.9



問題がある。

軽量タイルの実用化を検討するために、粉末プレス成形法を用いる方法の検討を行った。軽量化の効果が確認された配合割合の素地土を、50t自動プレス装置を用いて成形し、12cm角タイルを焼成したところ、外見上良好なタイルを試作することができた。本研究においては、押出し成形法を用いるために、これらの方法で軽量化を行うと、実用上タイルの強度に問題が生じると考えられるので、断熱材など特殊な用途として提案したい。

### 3. 4 大型タイルの試作とその品質

#### 3. 4. 1 大型タイル用素地の開発

押出し成形法による小型タイルの試作の場合と比べて、30cm角大型タイルの焼成後の厚さは2.5cmと肉厚のため、最初に調整した試験用素地では、乾燥や焼成の過程で歪みや亀裂の欠点が発生して、歩留まりが悪かった。そこで、良質な木節粘土とシャモットの添加量を増やすことによって、乾燥過程での歪みや亀裂の発生を抑えた。これにより、焼結温度幅も十分な試作品が製造できた。最終的な大型タイル用素地の配合割合は、下水汚泥焼却灰40%、可塑性粘土40%、及びシャモット20%である。また、焼成したタイルの表面の一部に白色の硫酸カルシウムが発生する白華現象がみられた。そこで、素地に約0.3%の炭酸バリウムを添加することで、白華現象の発生を抑制した。これら素地の改良により大型タイル製造の歩留まりを向上することができた。写真1に30cm角大型タイル試作品を示す。

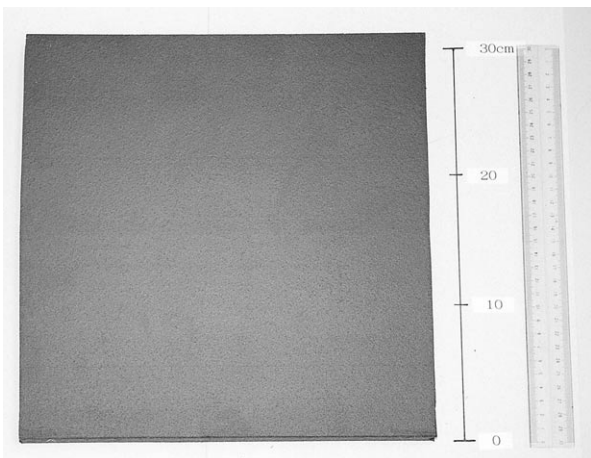


写真1 試作した30cm角大型タイル

#### 3. 4. 2 大型タイルの品質

試作した大型タイルの結晶相を調べるために、粉末X線回折装置を用いて定性分析を行った。

同定された結晶組成は、石英( $\text{SiO}_2$ )、燐酸アルミニウム( $\text{AlPO}_4$ )、ムライト( $\text{Al}_6\text{Si}_2\text{O}_{13}$ )、灰長石( $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ )、ヘマタイト( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ )、及びクリストバライト( $\text{SiO}_2$ )であった。

環境庁告示第13号「産業廃棄物に含まれる金属等の検定方法」に従い、溶出試験を行った結果、鉛、カドミウムともに検出せず、産業廃棄物基準（埋立処分、環告第13号）と土壤環境基準（環告第46号）<sup>7)</sup>の定める基準値以下であった。このことから、試作した大型タイルは環境的にも安全であると考えられる。

試作した大型タイルの性能試験を日本工業規格「陶磁器質タイル」(JIS A 5209-1994)に従って行った結果を以下に示す。これらの結果より性能上問題となる点はないと考えられる。

#### (1)種類

- a)素地の質による区分：石器質タイル
- b)呼び名による区分：床タイル
- c)うわぐすりの有無による区分：無釉タイル

#### (2)タイルの品質

- a)吸水率：0.62%（石器質の基準：5.0%以下を満足する）
- b)耐摩耗性：摩耗減量 0.03g(規定の摩耗減量0.1g以下を満足する)
- c)曲げ強さ：幅1cm当たりの曲げ破壊荷重401N/cm（規定の床タイルの幅1cm当たりの曲げ破壊荷重120N/cm以上を満足する）
- d)耐凍害性：試験体のひび割れ、及び素地ののはがれは認められなかった。
- e)耐薬品性
  - ・耐酸性：試験体表面に異常は認められなかった。
  - ・耐アルカリ性：試験体表面に少し変色が認められた。

耐薬品性試験の前後におけるタイル表面の色を色彩色差計を用いて測定を行った。測定結果を表16に示す。なお、色の表示方法は日本工業規格「色の表示方法 - L\*a\*b\*表色系及びL\*u\*v\*表色系」(JIS Z 8729-1994)<sup>8)</sup>による。

本研究にて試作した30cm角大型タイルは、下水汚泥焼却灰が40%含まれることからエコマーク商品類型No.109<sup>9)</sup>に適合するものである。

表16 耐薬品試験前後のタイル表面の色変化

	L*	a*	b*
耐酸試験前	38.85	11.26	11.15
耐酸試験後	38.67	11.54	11.41
耐アルカリ試験前	38.95	11.31	11.06
耐アルカリ試験後	37.68	11.70	12.20

### 3. 4. 3 大型タイルの性能

試作した大型タイルの実証試験の結果、タイルの色には、おおきな変化は見られず、耐候性に問題はなかった。凍害についても異常は発生しなかった。このことから試作した大型タイルについて性能上に問題はないと考えられる。

また、床タイル以外への利用法として、コンクリート壁に施工を行い、表札プレートとしての活用も行った。

### 3. 4. 4 大型タイル以外への利用法の検討

下水汚泥焼却灰の窯業原料への有効利用を拡大するために、大型タイル用に調製した素地の大型動力成形への可能性について検討した。直径30cm、高さ30cmの大鉢を動力成形法にて成形し、大型タイルの焼成条件と同様に、1050、1080、及び1100℃の各温度にて焼成を行った。その結果、製造工程で問題は発生せず、試作した大鉢には水漏れ等の欠点は発生せずに、性能的にも問題はなかった。本研究にて開発を行った大型タイル用素地は、大鉢の動力成形にも有効であることがわかった。

## 4. まとめ

下水汚泥焼却灰の有効利用を目的に大型タイルの製造を検討した。初めに下水汚泥焼却灰の焼結温度幅の拡大や低温での焼結の可能性を検討するために、廃ガラス粉の添加を中心として焼結特性を調べた。次に、押出し成形法を用いた小型タイルの試作を行い、素地の配合割合の検討や軽量化の検討を行った。これらの試験結果から得た知見を基にして、30cm角大型タイルの押出し成形法による試作を行い、以下の結論を得た。

- (1) 下水汚泥焼却灰のダイオキシン類の分析結果からダイオキシン類の総量は、日本における土壤濃度の1/3以下の値であり、下水汚泥焼却灰の安全性が確認された。
- (2) 素地への廃ガラス粉の添加により、焼結温度幅の拡大や低温焼結に有用であることが、粉末プレス成形した試験体を用いた焼結性の試験よりわかった。しかし、押出し成形による小型タイルの試作においては有意な効果は見られなかった。
- (3) タイル製造用の素地に用いる可塑性粘土と

しては、本研究で用いた2種類の雑粘土の組み合わせよりも、耐火度の高い良質の粘土との組み合わせの方が低温で焼結し、大型タイルの製品化には適している。

- (4) タイルの製造における乾燥や焼成過程での欠点防止のために添加するシャモットは、細かい粒径のものを除いてもタイルの性状に差はない。
- (5) 本研究にて得られたタイルの軽量化に関する技術は、成形方法や焼結の度合いと強度との関係を考慮すれば、用途開発が可能である。
- (6) 試作した30cm角大型タイルの品質は、日本工業規格に適合するものであり、実用においても問題となる点はない。
- (7) 開発したタイル用素地の大型タイル以外への有効利用として、動力成形法による大鉢の試作を行い、良好な結果を得た。

## 謝辞

本研究で使用した下水汚泥焼却灰は、三重県北勢沿岸流域下水道建設事務所より、廃ガラス粉は(有)勝山商店から提供して頂きました。記して感謝の意を表します。

## 参考文献

- 1) 熊谷 哉, 伊濱啓一, 伊藤 隆, 林 茂雄, 日比野剛, 川合啓之, 橋本典嗣: 三重県工総研報, vol.23, p.15-25(1999).
- 2) 日本工業規格“ファインセラミックスの曲げ強さ試験方法”, JIS R 1601, p.1-4(1995).
- 3) 環境庁告示 第13号.
- 4) 日本工業規格“試験用ふるい”, JIS Z 8801, p.1-11(1994).
- 5) 日本工業規格“陶磁器質タイル”, JIS A 5209, p.1-19(1994).
- 6) 環境庁, 平成9年度ダイオキシン類の総合パイロット調査結果について(平成10年10月23日記者発表資料)。
- 7) 環境庁告示 第46号.
- 8) 日本工業規格“色の表示方法 L\*a\*b\*表示系及びL\*u\*v\*表示系”, JIS Z 8729, p.1-12(1994).
- 9) (財)日本環境協会エコマーク事務局, エコマーク商品類型No.109“再生材料を使用したタイル・ブロック”(1998).