

〈一般研究課題〉 その場固化法による超軽量セラミックス
吸音内壁材の研究開発
助成研究者 名古屋工業大学 藤 正督



その場固化法による 超軽量セラミックス吸音内壁材の研究開発

藤 正督
(名古屋工業大学)

1. はじめに

東濃地域は、焼き物に適した上質の陶土が大量に産出することから、食器、タイルをはじめとする生活関連セラミックスの一大産地に成長した。このため、本地域には、窯業の原料、生産、流通に至るまでの中小企業が集積している。現在はその出荷額において窯業建材が主な部分を占めており、日本国内総生産量の60%が本地域で生産されている。しかし、新設住宅の減少、安価な海外製品や他の素材との競争は厳しく、窯業建材産業は縮小傾向にある。

一方、住宅に対する顧客ニーズは多様化し、結露防止のための高断熱性、外部騒音を遮断・吸収する防音性や顧客の嗜好に対応する装飾性が求められている。さらに、今後需要が見込まれる住宅の内装リフォーム市場においては、軽量化とともに施工を容易にする易加工性も必要である。したがって、これらの多様な要求を満たす多機能超軽量セラミックス建材の開発が切望されている。

そこで本研究では、地域に内在する未利用資源を活用した低コスト化技術と多孔体製造プロセス技術を融合し、従来にない新規の循環型生産プロセスを確立し、多機能で競争力のある内装用超軽量セラミックス建材開発を行うことを目指した。

本研究の成果となる新規製造プロセスと製品の特徴は、以下の通りである。

(1) 未利用資源と空気を主原料とするため、低コストかつ環境に配慮した新規製品ができる。(2) 従来窯業建材の原料である長石や粘土などの天然資源の代わりに、これまでセラミックス原料として利用されてこなかった地域に内在する未利用資源（窯業原料廃材、ガラス瓶など一般家庭から回収されたゴミ及び各種産業界から排出される廃棄物）を90%以上使う原料組成での製品開発が可能となり、エコマーク商品となる。(3) ガラス廃材等の活用により、現在の窯業建材焼成温度よりも約200℃低い1000℃以下で焼成できるため、使用燃料の削減とCO₂等の排出ガスの削減とともに低コストが図れる。(4) 原料スラリーに気泡を導入する方法のため、気泡量を自由に制御でき、嵩比重1.0以下の製品を容易に作製することができる。従来製品に比べて半分以下の重量となるタイルが製造できる。(5) スラリーを流し込む成形法であり、凹凸感のある意匠性に富む製品を作製できる。(6) 粘土等の天然可塑性原料を全く用いない製法であるとともに、超軽量多孔質セラミックス

のため、粉碎が容易である。製品寿命終了後には、再度この建材の原料に利用できエンドレスリサイクル建材とすることが可能である。

多機能超軽量セラミックス建材の製造におけるキーテクノロジーは、スラリー中への気泡混合技術にある。気泡混合操作はこれまでのセラミックス建材の製造にはない工程であり、本研究で初めて提案された。それゆえ、スラリーの含気泡制御についてはこれまでほとんど知見がない。そこで成形基礎技術を確立する為に、含気泡プロセス制御に関する基礎的知見を得ることを目指した。

第一に簡便な気泡剤の選定法について検討し、超軽量セラミックス建材に最適な気泡剤の選定を行なった。次に、含気泡スラリーの気泡率、気泡径などの気泡条件と固化成形後の気孔構造との相関について検討した。さらに、種々の気孔構造を持つ超軽量建材の作製条件についても検討し多様な出口の可能性についても探求した。また、超軽量建材の設計指針を得る為、吸音性、断熱性などの諸機能の性能評価法を確立し、諸機能と気孔構造の関係についても検討した。

2. 実験方法

(1) スラリーの含気泡制御

1) 超軽量建材作製プロセスのテクノロジーは、界面活性剤を添加したスラリーを攪拌により起泡泡させ、これをゲル化固定し成形することが特徴である³⁾したがって、スラリーへの気泡の導入制御は最終的な焼成体の物性を決める重要な要因である。特に、超軽量焼成体を得ようとする場合、多くの気泡混入が必要となり、スラリーに対する界面活性剤の起泡泡性と、含気泡スラリーの安定性が問題となる。また、均一な状態で攪拌を行うには、界面活性剤が添加後、即座に溶解することが望ましい。このため、界面活性剤の水への溶解性も問題となる。ここでは、気泡剤に用いる界面活性剤の簡便な選定方法を用いて、界面活性剤水溶液によるスクリーニングテストと、スラリーを用いたスラリー起泡泡性の評価を行った。蒸留水40mlに対して界面活性剤10mlを添加し、その溶解の様子を観察した。次に調製した界面活性剤水溶液を気泡評価装置のシリンダー部に10ml注入し、気体を流入させ、ガラスビーズ部にて起泡泡させた。得られた気泡の、量および、10分後の気泡の保持量を測定し、これらから起泡泡量、気泡保持率を算出した。起泡泡条件の変化として、気体流入量を300、400、500ml/minについて測定を行い、平均値を評価値として用いた。気体の流入時間は30sec、圧力を1atm、温度25℃とした。

2) 含気泡スラリーの気泡評価

スラリー100gに界面活性剤を0.2ml添加し、攪拌機によって3分間高速攪拌を行い起泡泡させ、含気泡スラリーを得、含気泡率の測定および、気泡保持の様子を観察を行った。

(2) 吸音特性

吸音率の測定には、2マイクロホンインピーダンス測定管BK4206(Bruel&Kjer製)を用い、垂直入射吸音率を測定した。測定には外形27mm及び97mmの円盤状の試料を用いた。住宅用の吸音材料については、中、高音域の吸音特性が求められるため、500Hz以上の音域での測定を行った。

試料は開発品である多孔体のうち、同一多孔体を用いた、釉薬有り、釉薬なしの試料各一種、気孔構造が異なる二種(以後N1、N2)を用いた。また、参照試料として、アルミナ多孔体一種、従来市販品の「外壁用タイル」二種、「サイディング材」一種の測定を行なった。

また、多孔質材料の吸音は気体の透過率に関係するため、気体の流れ抵抗を測定した。流れ抵抗

は、多孔体試料両面での差圧 $\Delta P(\text{g/cm}^2)$ 、および気体流量 $Q(\text{ml/s})$ から(1)式を用いて算出した⁵⁾。

$$R = \frac{\Delta P \cdot A}{d \cdot Q} \quad (1)$$

ここで、 d は試料の厚さ、 A は試料断面積である。

(3) 断熱特性

熱伝導率測定は迅速熱伝導率計（QTM-500型：京都電子工業株式会社製）を用いて測定を行った。測定は室温中（17～19℃）で行い、温度上昇の範囲を最大20℃に設定して測定を行った。試料には吸音率測定で用いたものと同じ、直径97mmの円盤型の試料を用いた。測定試料は吸音測定と同じものを用いた。

3. 結果および考察

(1) スラリーの含気泡制御

1) 界面活性剤スクリーニングテスト

界面活性剤水溶液を調製した結果を表1に示す。13種の界面活性剤中、高濃度で希釈可能であり、起泡性を示したのはA-アニオン系、B-アニオン系、C-ノニオン系の三種であった。D、E、Fの三種は、均一な水溶液となったが粘性が高く、起泡性を示さなかった。G、H、I、Jは、白濁し、均一な水溶液が得られなかった。K、Lは、水と分離し、水溶しなかった。Mはゾル状となり、液性が失われた。次に、A、B、Cの三種の界面活性剤を用いて、気泡評価装置を用いて気泡率及び気泡保持率を測定した。起泡率は、式(2)で求めた。

$$\text{起泡率} = \frac{\text{気泡体積}}{\text{流入気体体積}} \quad (2)$$

起泡率の結果を図1に示す。いずれの場合にも、80%を超える高い起泡性を示した。

気泡保持率は、式(3)で求めた。

表1 界面活性剤溶解試験

	界面活性剤種	結果
A	アニオン	可溶
B	アニオン	可溶
C	ノニオン	可溶
D	ノニオン	可溶（高粘性）
E	ノニオン	可溶（高粘性）
F	ノニオン	可溶（高粘性）
G	ノニオン	不溶（白濁）
H	ノニオン	不溶（白濁）
I	ノニオン	不溶（白濁）
J	ノニオン	不溶（白濁）
K	ノニオン	不溶（相分離）
L	ノニオン	不溶（相分離）
M	アニオン	不溶（ゾル状）

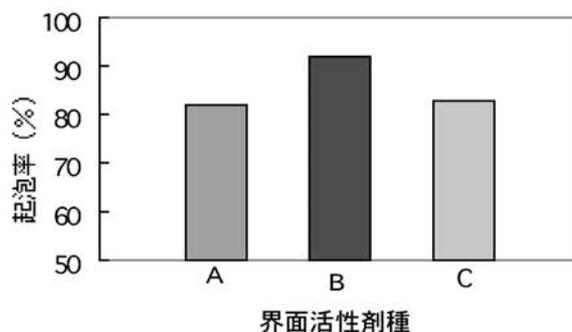


図1 界面活性剤水溶液の起泡性

$$\text{気泡保持率} = \frac{\text{10分経過時気泡体積}}{\text{起泡時気泡体積}} \quad (3)$$

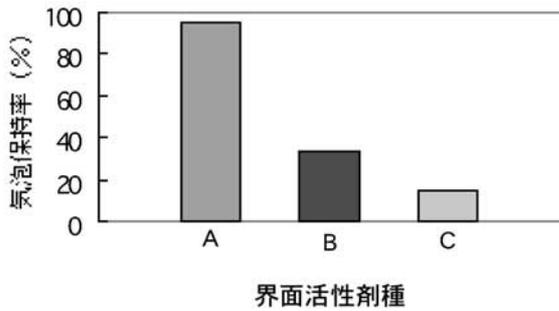


図2 界面活性剤水溶液の気泡保持率

2) 含気泡スラリーの気泡評価

含気泡スラリーは30分経過後も気泡の減衰がほとんど見られなかった。気泡の破壊の原因となる気泡液壁面の排液速度を示す式(4)を以下に示す。

$$v = \frac{\rho g h^2}{8\eta} \quad (4)$$

ここで、排液速度 v 、液体密度 ρ 、重力加速度 g 、気泡間隔 h 、液体の粘度 η である³⁾。液体密度は、界面活性剤水溶液の密度がおよそ1、スラリーは1.74であり、約1.74倍。これに対し、液体粘度は、水の1mPa・sに対してスラリーは約100mPa・s程度の値を示し、100倍となる。式(4)より、粘度が大きく増加し、排液速度が低下したため、気泡の安定性が増したと考えられる。

スラリー起泡性を起泡直後のスラリー含気泡率として図3に示した。界面活性剤種により、起泡性に大きく差が見られた。また、界面活性剤水溶液の気泡保持率とスラリー含気泡率の比較を図4に示す。水溶液の気泡保持率が高く、安定性のよい界面活性剤を用いた場合にスラリーの含気泡率が高くなっている。安定性の低い界面活性剤を用いた場合、攪拌機によるせん断応力が、起泡作用だけでなく、機械的消泡としても作用する²⁾。起泡と消泡が同時に起こるため、安定性の低い界面活性剤では起泡性が低くなっていると考えられる。

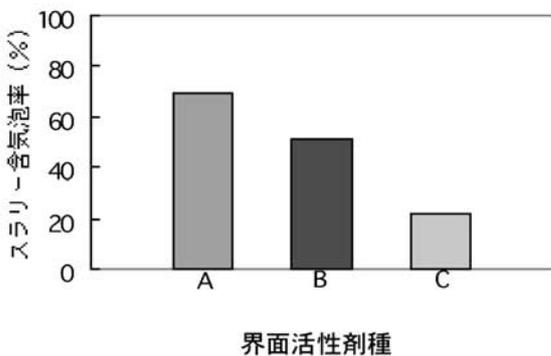


図3 スラリーの起泡性

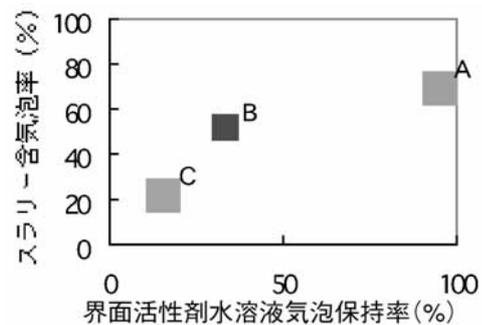


図4 界面活性剤水溶液の気泡保持率とスラリー含気泡率

界面活性剤を変えることで含気泡率を変えたスラリーを用い作製した焼成体の嵩密度と、スラリーの含気泡率を図5に示す。界面活性剤を変えスラリーの含気泡率をコントロールすることで、

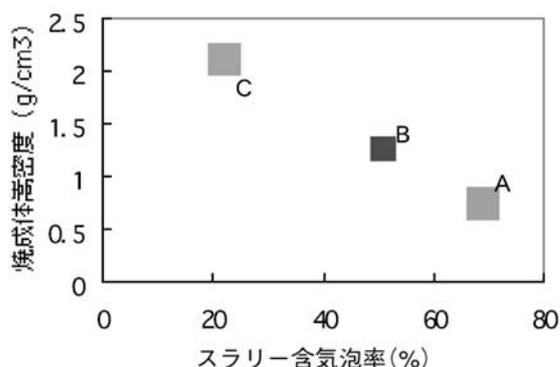


図5 スラリーの含気泡率と焼成体嵩密度

焼成体の嵩密度のコントロールが可能であることが確認された。

(2) 吸音特性

測定結果を図6に示す。「釉薬有り」に関しては、「釉薬無し」と同等の多孔体でありながら、表面に釉薬の層ができることで、著しく吸音率が低下した。これは、多孔質型の吸音材料の吸音機構をつかさどる表面の気孔が塞がれた結果である⁴⁶⁾。釉薬無し、N1、N2、アルミナ多孔体については、1000Hz以上の周波数帯において0.5以上の高い吸音率を示した。これら四種のサン

プル以外は、吸音率0.2以下であり、吸音性はほとんど認められなかった。

高い吸音率を示した多孔体について表面観察による気孔形状、流れ抵抗、気孔率についての比較を行った。比較内容を表2に示す。

表2 多孔体比較

名称	釉薬無し	N1	N2	アルミナ多孔体
気孔形状				
全気孔率 (%)	77.6	69.6	68.1	72.0
気体流れ抵抗 (N/m ² ・s)	4.49 × 10 ⁴	7.02 × 10 ⁵	1.06 × 10 ⁵	8.79 × 10 ³
最大吸音率	0.73	0.58	0.77	0.80
最大吸収周波数 (Hz)	858	700	1690	1080

流れ抵抗の値の小さい多孔体の方が、最大吸音率は若干高い傾向が見られた。多孔質材料における吸音は、気孔内の粘性の高い空気が音の伝播により縦振動し、音のエネルギーが熱エネルギーに変化して起こる⁴⁾。音の伝播は空気の振動によって起こるため、流れ抵抗が低い材料のほうが、振動している空気が材料中の気孔に入りやすく、吸音効果が得られやすいものと考えられる。

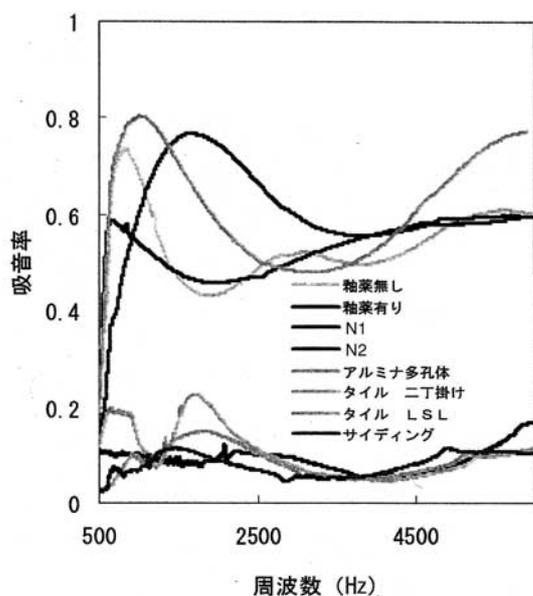


図6 吸音率測定結果

(3) 断熱特性

測定結果を表3に示す。参考値として、ポリエチレン、ポリスチレンの熱伝導率の値を付記する。多孔体の熱伝導率は一般的に市販されている外壁タイルの1/2から1/3の値であり、ポリエチレンに近い値であった。ポリエチレンやポリスチレンは断熱性を必要とされる食品容器などにも使用されており、これらの値に近いことから、多孔体の断熱性が良好であるといえる。

一般的に閉気孔多孔体の断熱性が良いとされる。しかしながら、本実験では開気孔を有する多孔体において良好な断熱性が確認された。これは、伝熱機構における対流効果は高温域ではその影響を無視することはできないが、住宅建材の使用温度条件では伝導効果が支配的であるからと考えられる。

表3 熱伝導率測定結果

試料名	気孔率 (%)	熱伝導率 (W/m・K)
タイル1 (二丁掛 白)		1.45
タイル2 (LSL)		0.754
サイディング材		0.400
釉薬無し	77.6	0.388
釉薬有り	77.6	0.390
N1	69.6	0.358
N2	68.1	0.353
ポリエチレン (低密度)		0.33
ポリエチレン (高密度)		0.46~0.50
ポリスチレン		0.10~0.14

4. 結言

1) シリンダーを用いて界面活性剤水溶液の気泡の保持率とスラリーに界面活性剤を添加、攪拌した際の起泡性に相関関係が認められた。これにより、簡便に泡剤に用いる界面活性剤の選定ができた。また、超軽量セラミックスを作製するための含気泡のスラリーを得るための泡剤として、高い含気泡率が得られるA-アニオン系が最適であった。

2) 界面活性剤種の変更により異なる含気泡率のスラリーが作製可能である。スラリーの含気泡率

のコントロールにより、焼成体の嵩密度のコントロールも可能であった。

3) 従来の外壁材と比較して、吸音性の良好な多孔体が得られていることが確認できた。

4) 表面の気孔の状態を変えることで、気孔を保持した状態では吸音材料、塞いだ状態では遮音材として、利用条件にあわせた特性の選択ができることがわかる。

5) 本研究で作製されたような開気孔を有する多孔体においても、断熱性は良好であることが確認できた。

参考文献

1) Fernandez-Rodrigues, I.M., *et al.*, *J. Mater. Sci.*, **23**, 2391(1989)

2) McCormick, P.G., *et al.*, *Adv. Mater.*, **13**, 1008 (2001)

3) Lee, J., *et al.*, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **40**, 4785 (2001)

4) Kano, J., *et al.*, *J. Chem. Eng. Jpn.*, **32**, 445 (1999)

5) Kano, J., *et al.*, *Miner. Eng.*, **14**, 1213 (2001)

6) Mio, H., *et al.*, *Mat. Sci. Eng. A*, **332**, 75 (2002)