

## 調湿タイルの量産製造技術の開発

野村 隆文, 執行 達弘, 吉田 憲司, 橋本 祐二, 斎藤 隆之, 工藤 和彦

### Development of Mass-Production Technology for Humidity Control Tiles

Takafumi NOMURA, Tatsuhiro SHIGYO, Kenji YOSHIDA, Yuji HASHIMOTO  
Takayuki SAITOU, Kazuhiko KUDOH

キーワード：調湿, 非焼成, 押出成形法, 稚内層珪質頁岩, メソポア

#### 1. はじめに

道北で産出される珪藻土起源の稚内層珪質頁岩はメソポア（直径2～50nm）を多量に含有し、高吸放湿性を持つ調湿機能材料である。現在、稚内層珪質頁岩を利用したタイル、塗り壁材、床下調湿材等が多くの企業により商品化されている。需要が多い塗り壁材は、施工に熟練を要する非焼成の調湿機能建材である。我々は、施工が容易な非焼成型調湿機能タイルを企業と共同開発してきた<sup>1)</sup>。このタイルは、樹脂型を利用した成形法および水溶性のコロイダルシリカと遊離Caイオンの硬化反応により作製されている<sup>2)</sup>。その量産製造技術として、押出成形法によるタイルの製造法を検討し、調湿機能タイルを製品化した。調湿機能を最大限発現させるため、タイル原料の組成重量比は調湿材（稚内層珪質頁岩）：石膏＝7：3で配合し、高い調湿機能（700g/m<sup>2</sup>）を実現させることに成功した。しかしながら、タイルの機械的強度や押出成形機による成形歩留まりの改善、すなわち、安定した成形条件の検討が課題とされている。

本研究では、非焼成型調湿タイルの最適量産製造技術の確立を目的として、押出成形法により各種タイルを試作し、その曲げ強度と吸放湿量を測定、調湿材の粒度が強度と成形性に及ぼす影響を検討し、強度と歩留まりを向上させる配合組成や新規バインダーの種類と添加量を選定した。さらに、原料混練に起因するタイルの変形や亀裂対策の視点から、新規成形法を提案した。

#### 2. 実験方法

##### 2.1 タイル強度に影響する調湿材粒度と石膏配合量の検討

出発原料として、調湿材（WS）に粒度の異なる稚内層珪質頁岩粉末（WSL:粒度1mm以下, WSS:粒度0.25mm以下）、結合材に石膏ボード粉砕物（GB:0.5mm以下）とコロイダルシリカ（AT-30:ADEAKA製）を用いた。強度向上に寄与する因子として、主原料である調湿材の粒度（微粉）と石膏の配合量が考えられるため、これらの配合量の変化から、強度向上を実現する配合組成を検討した。

押出成形用配合組成を迅速に決定するため、金型を用いたプレス成形法（プレス圧54kgf/cm<sup>2</sup>）で、GBの配合量を30wt%に固定し、調湿材のWSS配合比率（WSS/(WSL+WSS)）を0.2～0.4に変化させた配合組成でタイル（長さ222mm, 幅76mm, 厚さ13mm）を作製した。次に押出成形法により、プレス成形法で決定した調湿材のWSS配合比率、GB配合量を30～50wt%に変化させた配合組成でタイル（長さ190mm, 幅58mm, 厚さ8mm）を作製した。作製したタイルについて、3点曲げ強度試験と25℃で異種湿度に伴う24h毎の重量変化（90%と50%相対湿度の吸湿量の差）から吸放湿量を測定した。

##### 2.2 最適配合組成に適合するコロイダルシリカの検討

決定した最適配合組成に対し、これまで標準で使用していたAT30と比較して、コロイダルシリカの種類を変えた配合組成で押出成形法により、タイル（長さ140mm, 幅43mm, 厚さ10mm）を作製した。作製したタイルについて、成形性、乾燥性、曲げ強度、吸放湿量を把握した。

##### 2.3 新規バインダーの検討

強度向上と調湿機能の効率的な発現を目的として、新規バインダーの検討を行った。コロイダルシリカとCaイオンの

事業名：重点研究

課題名：道内資源の使用量拡大を目指した建材開発と利用法に関する研究（平成21～23年度）

反応による硬化技術は、調湿材の調湿機能を効果的に発現可能な方法としては有効であるが、一方で、大幅な強度向上は困難であることから、本試験では、バインダーにメチルセルロース（以下MC）、天然ゼオライト、ツノマタ、骨材は天然ゼオライト、阿寒貝化石、成形助剤はグリセリン（以下G）、脂肪酸Na（以下Na）を選定し、さらなる強度向上の可能性について検討した。成形は2.2項と同条件で行い、作製したタイルについて、成形性、乾燥性、曲げ強度、吸放湿量を把握した。

### 2.4 新規成形方法の検討

現在、使用している土練押出成形機は2つのオーガスクリューで原料を混練しながら成形するため、粘土原料の成形には適しているが、コロイダルシリカと石膏の硬化反応を伴う原料の成形では、押出成形時の発熱による水分変化により、硬化反応が促進され、極めて成形が困難になる場合がある。そこで、ピストン式押出成形の予備試験を行い、その可能性を検討した。

## 3. 結果と考察

### 3.1 タイル強度に影響する調湿材粒度と石膏配合量の検討

プレス成形法で作製したタイルの強度は、3点曲げ強度試験と相関のあるデジタルフォースゲージ（DS 2 -500N、㈱イマダ製）で破壊荷重を測定した。また、押出成形法で作製したタイルの強度はオートグラフ（㈱島津製作所製AG-50 kNG）を用いて、3点曲げ強度試験により、曲げ破壊荷重を測定した。測定条件は、JIS A 1509-4「陶磁器質タイル試験法第4部：曲げ破壊荷重及び曲げ強度の測定方法」に準拠した。表1に調湿材の粒度を変化させたタイル原料の配合組成を、図1にGBを30%に固定し、調湿材のWSS配合比率を0.2~0.4と変化させた時のタイル曲げ破壊荷重を示す。WSS配合比率が0.3で強度が最大となり、0.4では強度の低下が認められた。この要因として、調湿材は調湿機能の他に骨材としても機能しており、その最適粒度組成の設定により、強度が向上したと推察される。

表1 調湿材の粒度を変化させたタイル原料の配合組成

配合組成	(wt%)			
	①WSL	②WSS	②/(①+②)	GB
WS7GB3(0.2)	56	14	0.2	30
WS7GB3(0.3)	49	21	0.3	30
WS7GB3(0.4)	42	28	0.4	30

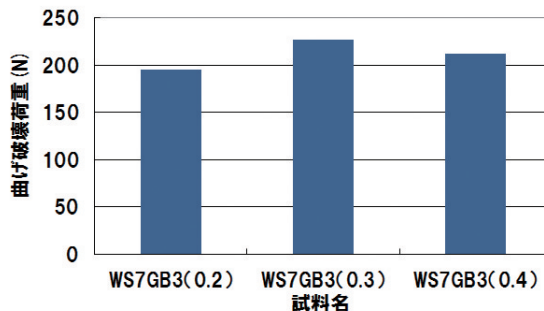


図1 調湿材の粒度と曲げ強度の関係

プレス成形による配合試験の結果から、押出成形法では、調湿材のWSS配合比率を0.3に固定した配合組成でタイルを作製した。表2に押出成形用タイルの配合組成を、図2に押出成形状況を示す。各組成ともに、原料混練用土練機で、1回混練した原料の投入により、良好に押出成形が可能であった。GB30~40%配合では、従来組成と比較して、可塑性があり、容易に成形可能で、GB50%配合では、40%と比べて粘りが少ない状態であった。

表2 押出成形用タイルの配合組成

配合組成	(wt%)			
	①WSL	②WSS	②/(①+②)	GB
WS7GB3(0.3)	49	21	0.3	30
WS6GB4(0.3)	42	18	0.3	40
WS5GB5(0.3)	35	15	0.3	50

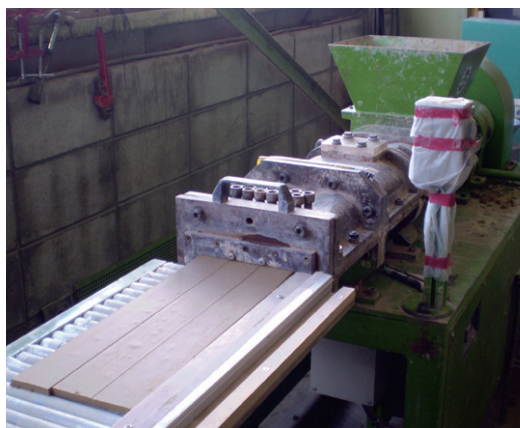


図2 押出成形状況

図3に調湿材のWSS配合比率を0.3に固定し、GBの配合量を30~50%と変化させた時のタイルの曲げ破壊荷重を、図4に原料の混練回数とタイルの曲げ破壊荷重の関係を示す。

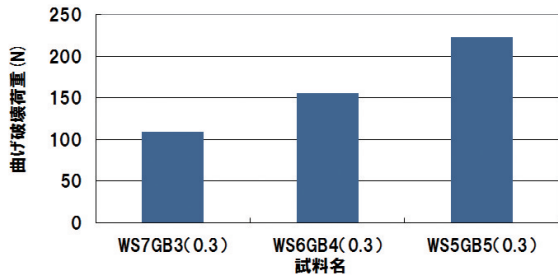


図3 石膏配合量と曲げ強度の関係

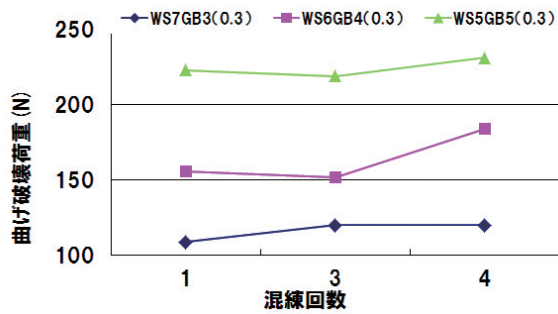


図4 原料の混練回数と曲げ強度

曲げ破壊荷重はGB配合量と正の相関があり、WS5GB5(223N) > WS6GB4(156N) > WS7GB3(109N)の序列で、GBの増加とともに、強度向上が認められた。JIS A 5209内装壁タイルの曲げ破壊荷重の基準である108N以上をいずれもクリアした。GB50%配合では、従来品の約2倍の強度となった。これはGBの配合量の増加により、コロイダルシリカと遊離Caイオンの硬化反応(ケイ酸カルシウム水和物の生成)が促進されたこととGBの自硬性によると考えられる。土練押出成形機に投入する原料の混練回数(原料混練用土練機で混合する回数)4回では、1回混練時の曲げ強度と比較して、約4~18%の強度向上が認められた。強度向上の要因として、混練回数を多くすることで、原料および水分の均一化による効率的な硬化反応が促進したためと推察される。従来組成では、押出成形にバラツキがあり、安定した成形が困難であったが、今回の組成では、容易に成形可能となった。特に、WSSの配合により、粒子間隙に成形および反応に寄与する水を保持できることが成形性および強度向上に影響していると推察される。

調湿機能は、温度一定で相対湿度変化を与えた時の試料重量変化から評価した。測定条件は、各試料を吸湿面(190×58mm)以外を断湿した後、60℃で24時間乾燥し、乾燥重量(Wa)を測定後、温度25℃、90%RHの恒温恒湿槽内で24時間静置後、吸湿重量(Wb)を測定し、(1)式より、吸湿量(H90)を算出した。同様に、25℃、50%RHに設定した槽内に24時間静置した試料の吸湿重量を測定し、吸湿量(H50)を算出した。次に、(2)式により、25℃、90-50%RH

条件下における試料の調湿機能(Hca)を算出した。

$$\text{吸湿量H90(またはH50)}(\text{g/m}^2) = (\text{Wb} - \text{Wa}) / \text{A} \quad (1)$$

$$\text{調湿機能Hca} = \text{H90} - \text{H50} \quad (2)$$

A: 吸湿面積 (m<sup>2</sup>)

湿度変化に伴う試料重量変化が大きい試料は、調湿機能が優れていると判断される。作製タイルの調湿機能を図5に示す。GBの配合量の増加とともに調湿機能は低下し、WS7GB3(705g/m<sup>2</sup>) > WS6GB4(631g/m<sup>2</sup>) > WS5GB5(544g/m<sup>2</sup>)の序列であった。

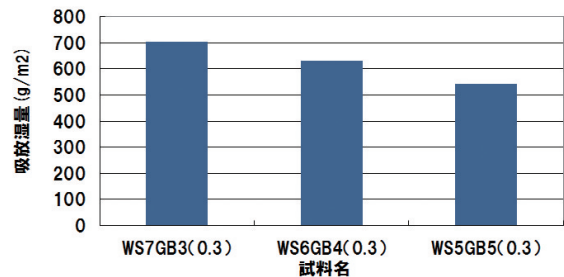


図5 押出成形法で作製したタイルの調湿機能

以上から、タイルの成形性、曲げ強度、調湿機能を考慮し、押出成形法の最適配合組成として、調湿材のWSS配合比率を0.3、WS(WSL+WSS):60wt%、GB:40wt%を決定した。

### 3.2 最適配合組成に適合するコロイダルシリカの検討

表3に使用したコロイダルシリカの種類を示す。いずれもADEAKA製コロイダルシリカで、SiO<sub>2</sub>含有量、pH、粘性が異なる5種類である。AT20、AT20Qでは粘性が少ないが原料投入量の調整により、良好に成形可能であった。AT30、AT40では粘性が少なく、成形体に亀裂が多く認められた。いずれも原料と押出成形機内部の摩擦熱による機械の温度上昇が発生した。AT30Aは粘性が高く、若干の亀裂は認められたが、曲り等の変形はなく、比較的良好に成形できた。

乾燥収縮率は大きくなると乾燥時の曲りや亀裂の発生に繋がる。乾燥収縮率はAT20Qが最も小さく、AT20Q(5.7%) < AT20、AT30A(5.8%) < AT40(6.0%) < AT30(6.1%)の序列であり、AT30、AT40は6%以上の大きい値を示した。

表3 コロイダルシリカの種類

	SiO <sub>2</sub> (wt%)	pH	粒子径 (nm)	粘度 (mPas)
AT20	20	10	15	6
AT20Q	20	3	15	5
AT30	30	10	15	15
AT30A	30	9	15	20
AT40	40	10	15	20

図6にコロイダルシリカの種類と曲げ破壊荷重の関係を示す。いずれもJIS A 5209内装壁タイルの曲げ破壊荷重108N以上をクリアした。特にAT30, AT20Qはそれぞれ284,277Nと大きな値を示し、以下AT30A>AT20>AT40の序列であった。

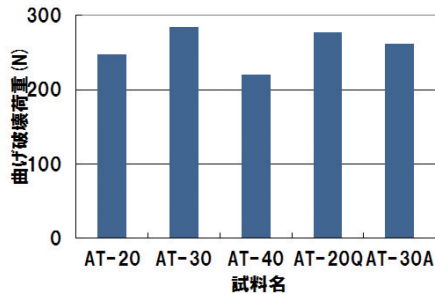


図6 コロイダルシリカの種類と曲げ強度

図7にコロイダルシリカの種類と調湿機能の関係を示す。AT30は最も調湿機能が大きく、596g/m<sup>2</sup>を示したが、その他のタイルはいずれも540~580g/m<sup>2</sup>であり、コロイダルシリカの種類の違いによる調湿機能の低下は最大10%以内であった。

以上から、これまで標準で使用しているAT30は曲げ強度、調湿機能ともに大きいことが確認された。コロイダルシリカの種類により、タイルの成形性、乾燥性は変化し、特にAT20, AT20Qは他のコロイダルシリカと比較して、成形性、乾燥性が良好であることから、歩留りの向上に有効であることが示唆された。

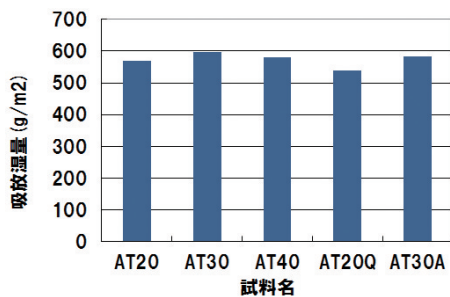


図7 コロイダルシリカの種類と調湿機能

### 3.3 新規バインダーの検討

表4に原料の配合組成を示す。すべての組成で成形は可能であったが、配合組成3は最も成形性が良好であった。逆に、配合組成4は成形性・ハンドリングともに困難であった。

表4 原料の配合組成

配合組成	(wt%)					
	WSL	MC	ゼオライト	貝化石	ツノマタ	G Na
1	100	3				
2	100	3				2
3	100	2				2
4	100				2.2	
5	70	3	30TZ			
6	70	3	30NZ			
7	70	3		30		
8	70		30TZ			
9	50		50TZ			

※TZ：十勝ゼオライト，NZ：仁木ゼオライト

図8に各種バインダーを用いたタイルの曲げ強度を示す。配合組成4および8以外はいずれも、内装壁タイルの曲げ破壊荷重108Nをクリアした。特に配合組成1, 5, 6, 7は400N以上の高強度であり、MCが強度向上に有効なバインダーであることが示唆された。

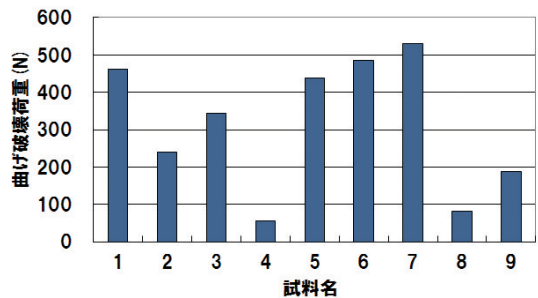


図8 各種バインダーとタイルの曲げ強度

図9に各種バインダーを用いたタイルの調湿機能を示す。配合組成4および8はいずれも800g/m<sup>2</sup>以上の高い調湿機能を発現した。配合組成1および3は曲げ破壊荷重が350~460N、調湿機能はいずれも600g/m<sup>2</sup>以上であり、強度と調湿機能を兼ね備えた配合組成にはMCの有効性が示唆された。

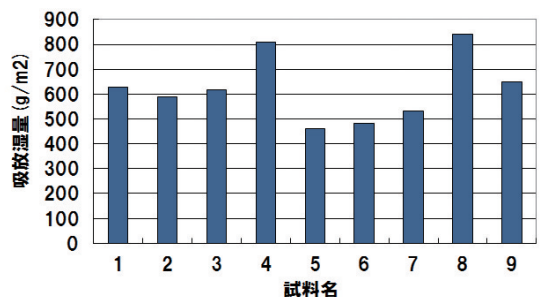


図9 各種バインダーとタイルの調湿機能

### 3.4 新規成形方法の可能性の検討

図10, 11に成形状況を示す。成形は混練しながら成形せず、装置に充填した原料を、後方から加圧装置により、一軸加圧成形する方法である。この方法では、土練成形機で見られた



オーガーによる原料の混練に起因するタイルの曲りや亀裂が減少することから、歩留りの向上が期待できる。



図10 新規成形試験（ピストン式）



図11 成形機の加圧部

#### 4. まとめ

押出成形法による非焼成型調湿タイルの最適生産製造技術の確立を目的として、強度及び歩留まり向上を実現する配合組成や新たなバインダーの検討、さらには新規成形方法を検討した結果、以下のことが明らかとなった。

- 1) 押出成形法によるタイルの最適配合組成は、調湿材のWSS配合比率0.3, WS:60wt%, GB:40wt%であり、作製したタイルの曲げ破壊荷重は156N, 調湿機能は631g/m<sup>2</sup>だった。
- 2) 標準で使用しているコロイダルシリカAT30は曲げ強度、調湿機能ではいずれも最大値を示し、成形性や歩留りの向上にはAT20, AT20Qが有効であることが示唆された。
- 3) 新規バインダーとして、強度と調湿機能を兼ね備えた配合組成ではMCの有効性が示唆された。
- 4) 新規成形方法（ピストン式）により、土練成形機のオーガーによる原料の混練に起因する曲りや亀裂が減少し、歩

留りが向上することが判明した。

本研究で実施したタイルの量産化技術（押出成形に適した原料組成）を企業へ導入し、成形性及び強度の向上を実現した。従来の樹脂型枠によるタイル成形の生産量と比べて、押出成形法の導入により、約3倍の生産能力を実現し、製造コストは約1/3に低減することができた。一方、現在のタイル販売価格は他社製品と比較して約2倍であるため、さらなる効率的な量産製造条件の確立と歩留りの向上等により、コストの低減化が今後の重要な検討課題である。また、調湿機能のみならず、VOCガスや脱臭等多様なガス吸着分解機能もニーズとして増加が見込まれることから、製品の競争力強化、製品のバージョンアップを図りながら、商品開発を進めていく。また、多様な室内環境改善に効果が期待される光触媒との複合化技術の蓄積により、ニーズに適合した製品開発が期待される。

#### 引用文献

- 1) H21年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会講演要旨（非焼成型光触媒担持調湿機能材料の開発）
- 2) 特許5070529