

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2020年1月9日(09.01.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/009226 A1

(51) 国際特許分類:

C04B 30/02 (2006.01) *D06M 11/79* (2006.01)
C01B 33/18 (2006.01) *F16L 59/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2019/026834

(22) 国際出願日: 2019年7月5日(05.07.2019)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:

特願 2018-129047 2018年7月6日(06.07.2018) JP

(71) 出願人: デンカ株式会社 (**DENKA COMPANY LIMITED**) [JP/JP]; 〒1038338 東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号 Tokyo (JP). 国立大学法人大阪大学 (**OSAKA UNIVERSITY**) [JP/JP]; 〒5650871 大阪府吹田市山田丘1番1号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 水田 航平 (**MIZUTA, Kohei**); 〒1948560 東京都町田市旭町三丁目5番1号 デンカ株式会社 デンカイノベーションセンター内 Tokyo (JP). 長崎 浩徳 (**NAGASAKI, Hironori**); 〒1948560 東京都町田市旭町三丁目5番1号 デンカ株式会社 デンカイノベーションセンター内 Tokyo (JP). 田原 和人 (**TABARA, Kazuto**); 〒1948560 東京都町田市旭町三丁目5番1号 デンカ株式会社 デンカイノベーションセンター内 Tokyo (JP). 内藤 牧男 (**NAITO, Makio**); 〒5650871 大阪府吹田市山田丘1番1号 国立大学法人大阪大学内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 田口 昌浩, 外 (**TAGUCHI, Masahiro et al.**); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号 虎ノ門ESビル8階 ダイワ特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ,

BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) **Title:** THERMAL INSULATION FILLER, THERMAL INSULATION MATERIAL AND THERMAL INSULATION STRUCTURE

(54) 発明の名称: 断熱充填材、断熱材、断熱構造

(57) **Abstract:** A thermal insulation filler which contains a mixed silica powder that is composed of from 10% by mass to 80% by mass of dry silica and from 20% by mass to 90% by mass of wet silica having a moisture content of 2% by mass or more. It is preferable that from 1 part by mass to 10 parts by mass of inorganic fibers are contained per 100 parts by mass of the mixed silica powder; and it is also preferable that the inorganic fibers have an average fiber diameter of from 0.1 μm to 50 μm .

(57) 要約: 乾式シリカ10質量%~80質量%と、含水率が2質量%以上の湿式シリカ20質量%~90質量%とからなる混合シリカ粉末を含む断熱充填材であり、混合シリカ粉末100質量部に対して、無機繊維を1質量部~10質量部を含むことが好ましく、無機繊維が平均繊維径0.1 μm ~50 μm であることが好ましい。



WO 2020/009226 A1

明 細 書

発明の名称：断熱充填材、断熱材、断熱構造

技術分野

[0001] 本発明は、断熱充填材、断熱材、断熱構造に関する。

背景技術

[0002] 近年、省エネルギーの観点から放熱エネルギーを抑制するために、断熱材の需要が益々大きくなってきている。また、従来の住宅や配管、溶鉱炉、電気炉といった用途だけでなく、例えば内燃機関や燃料電池等の保温といった観点からも断熱材は注目されており、成型体に限らない様々な形状に適応可能な断熱材が求められている。

[0003] 室温付近での空気の平均自由行程は100nmであるため、100nm以下の微細気孔を含む多孔質体が優れた断熱性を示すことがよく知られている。このような多孔質断熱材には様々な種類があり、例えば特許文献1～5に示されるような乾式法によって製造されたシリカ微粒子を使用した無機系多孔質断熱材が挙げられる。これは、微細気孔を内包する乾式シリカによって微細な多孔質構造が形成されていることで流体熱伝達が抑制されるため、優れた断熱性を示す。

[0004] 上記従来技術における断熱材としての使用形態は、機械プレスによる成型体をベースとしたものが多く、上述した特許文献のように、発塵性や成型後の強度を改善する検討が多く成されてきている。このとき、均一な成型体を得るために、使用粉体には金型に対して均一に充填出来る良好な流動性が求められる。しかしながら、乾式シリカ微粒子は、小さな嵩密度とクーロン力に由来する強い付着性、噴出性を示すために製造工程中でのハンドリング性が課題である。

[0005] また、特許文献6、7で袋状の外皮材中に粉末を充填することによって製造される断熱材について示されているように、粉末の流動によって空間に粉体を充填することで断熱層を形成する手法があり、充填性に優れる断熱性粉

体が必要とされる。しかし、流動による充填では、対象空間中の空気を粉体へと置換するため、嵩密度が非常に小さな乾式シリカ微粒子では不向きである。

[0006] 特許文献8は、1) 主成分としてのシリカ微粒子と、2) 補強繊維と、3) 水を含浸させた蓄液性物質とを含む混合物を湿式成形し、乾燥する断熱材の製造方法を記載している。特許文献9、10は、一次粒子径の異なる2種以上の微粒子が充填されてなる断熱ボードを記載している。しかし、特許文献8～10は、含水率について記載がない。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特許第4860005号公報
特許文献2：特開平7-237957号公報
特許文献3：特許第05081464号公報
特許文献4：特許第4367612号公報
特許文献5：特表平11-513349号公報
特許文献6：特許第5783717号公報
特許文献7：特開2013-1596号公報
特許文献8：特許第5409939号公報
特許文献9：特開平1-199095号公報
特許文献10：特開平1-135998号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 本発明は、上記課題と背景を鑑みてなされたものであり、良好な断熱性を有し、優れた充填性を発揮しうる断熱充填材を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者らは、上記課題と背景を鑑みて、鋭意検討を重ねた結果、乾式シリカ微粒子と湿式シリカ微粒子とを所定の割合で混合してなる混合シリカ粉

末を含む断熱充填材により当該課題が解決できることを見出した。すなわち、本発明は下記のとおりである。

[0010] [1] 乾式シリカ10質量%～80質量%と、含水率が2質量%以上の湿式シリカ20質量%～90質量%とからなる混合シリカ粉末を含む断熱充填材。

[2] 前記混合シリカ粉末100質量部に対して、無機繊維を1質量部～10質量部含む[1]に記載の断熱充填材。

[3] 前記無機繊維が平均繊維径0.1 μ m～50 μ mである[2]に記載の断熱充填材。

[4] 輻射散乱粒子を含む[1]～[3]のいずれかに記載の断熱充填材。

[5] 前記乾式シリカの平均粒径が0.8 μ m以下であり、前記湿式シリカの平均粒径が1 μ m以上である[1]～[4]のいずれかに記載の断熱充填材。

[6] 固体である[1]～[5]のいずれかに記載の断熱充填材。

[7] [1]～[6]のいずれかに記載の断熱充填材を配合してなる断熱材。

[8] [7]に記載の断熱材を含む断熱構造。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、良好な断熱性を有し、優れた充填性を発揮する断熱充填材を提供できる。その結果、様々な形状物に対し優れた断熱効果、保温効果を提供できる。

発明を実施するための形態

[0012] 以下、本発明の詳細を説明する。

[1. 断熱充填材]

本発明の一実施形態（本実施形態）に係る断熱充填材は、乾式シリカ10質量%～80質量%と、含水率が2質量%以上の湿式シリカ20質量%～90質量%とからなる混合シリカ粉末を含む。

[0013] 本実施形態においては、具体的には、乾式シリカによって形成される微細気孔構造で低熱伝導率を維持でき、上記湿式シリカ中の水分によって表面の電荷が拡散されるために付着性が改善されることで、流動性が向上し優れた充填性発揮されると推察される。さらにこれらを混合した混合シリカ粉末の凝集と無機繊維への混合シリカ微粒子の添着によって流動性がより向上することが見出された。

[0014] 本発明で使用する「乾式シリカ」とは、乾式法によって製造される非晶質シリカ物質の総称であり、燃焼法もしくはアーク法等、いずれの方法で製造されたものも使用できる。燃焼法とは例えば、四塩化珪素を高温の炎の中で反応させる方法をいう。乾式シリカ（乾式シリカ微粒子が好ましい）は微細な気孔を含んだ粒子であり、混合シリカ粉末において微細な多孔質構造を与えるものである。そのため、熱伝導率低減の観点から、含有量は10質量%～80質量%とし、30～70質量%とすることが好ましい。10質量%未満では十分な断熱性を発揮しない場合があり、80質量%を超えると粉体流動性が十分に確保できず、充填性が低下する場合がある。

[0015] 本発明で使用する「湿式シリカ」とは、湿式法によって製造される非晶質シリカ物質の総称であり、沈降法もしくはゲル法等、いずれの方法で製造されたものも使用できる。沈降法とは例えば、珪酸ソーダの水溶液を中和してシリカを析出し、濾過、乾燥する方法をいう。この湿式シリカ（湿式シリカ微粒子が好ましい）は、乾式シリカを自身の周囲に添着させることで、粉末の付着性および噴出性を抑える粒子である。また、含有量は、混合シリカ粉末とした時の流動性と付着性の観点から20質量%～90質量%とし、30～70質量%とすることが好ましい。20質量%未満では良好なハンドリング性を発揮しない場合があり、90質量%を超えて添加してもそれ以上の効果の増進は期待できない。ここで、混合シリカ粉末とは、乾式シリカと湿式シリカとを含み、任意の無機繊維を（必要な場合は輻射散乱粒子も）混合することで得られる粉末のことである。

[0016] 乾式シリカと湿式シリカとの混合時に含まれる水分は粒子に働くファンデ

ルワールス力を抑える役割がある。この含水率は、湿式シリカの質量に対して2質量%以上であれば特に限らない。2質量%未満では、粒子に働く静電気により付着性が増大するため、良好なハンドリング性を発揮しない場合がある。湿式シリカの含水率は3～15質量%であることが好ましく、5～10質量%であることがより好ましい。

[0017] また、乾式シリカと湿式シリカとを混合してなる混合シリカ粉末の含水率は、良好なハンドリング性の観点から、2～8質量%であることが好ましく、3～7質量%であることがより好ましい。

[0018] 上記乾式シリカ、湿式シリカ、混合シリカの含水率は、熱重量分析装置（TGA）によって200℃まで昇温し、昇温前の重量Xと減少した重量 X_1 を用いて含水率Wを算出する。

$$\text{含水率} W (\text{質量}\%) = (X_1 / X) \times 100$$

[0019] 乾式シリカ及び湿式シリカのそれぞれの平均粒径（より具体的にはレーザー回折式粒度測定器（コールター社製「モデルLS-230」型）によって測定される50%積算粒子径 D_{50} ）は0.01 μm ～100 μm が好ましく、流体熱伝達を抑える観点から、乾式シリカの平均粒径は10 μm 以下が好ましい。また、混合シリカ粉末とした時の流動性を向上させ、噴出性を抑えるために、湿式シリカの平均粒径は乾式シリカより大きいことが好ましい。

[0020] 乾式シリカの平均粒径は1 μm 以下が好ましく、0.8 μm 以下がより好ましく、0.5 μm 以下が最も好ましい。乾式シリカの平均粒径は0.01 μm 以上が好ましく、0.03 μm 以上がより好ましく、0.05 μm 以上が最も好ましい。湿式シリカの平均粒径は、0.5 μm 以上が好ましく、1 μm 以上がより好ましく、5 μm 以上が最も好ましい。湿式シリカの平均粒径は、50 μm 以下が好ましく、30 μm 以下がより好ましく、20 μm 以下が最も好ましい。

[0021] 本実施形態においては、混合シリカ粉末にさらに無機繊維を混合することが好ましい。

本発明で使用する無機繊維は、混合シリカ粉末の繊維添着により充填性を

向上させるものであれば特に限定されるものではなく、いかなるものでも使用できる。また、成形時には断熱充填材に成形性を与える役割を持つ。代表的なものとして、耐熱性に優れる人造繊維であるシリカ繊維、アルミナシリカ繊維、ガラス繊維、ジルコニア繊維、炭化ケイ素繊維、鉱物を原料として製造されるロックウール、天然鉱物のウォラストナイト、セピオライトなどが挙げられ、必要に応じてこれらを一種あるいは複数種使用することができる。

[0022] 上記無機繊維の平均繊維径とは、走査型電子顕微鏡（SEM）観察によって確認される繊維100本の直径の平均値である。平均繊維径は0.1 μm ～50 μm が好ましく、シリカ微粒子が付着する確率が増大し、粉体の噴出性を抑えられるため、1 μm 以上がより好ましく、5 μm 以上が最も好ましい。

[0023] 上記無機繊維の平均繊維長は特に限定するものではないが、混合シリカ粉末の充填性を考慮すると10 μm 以上が好ましく、15～35 μm がより好ましい。

なお、上記無機繊維の平均繊維長は、走査型電子顕微鏡（SEM）観察によって確認される繊維100本の繊維長の平均値として求めることができる。

[0024] 上記無機繊維の含有量は、混合シリカ粉末100質量部に対して、1質量部～10質量部であることが好ましく、3～7質量部であることがより好ましい。

1質量部以上であることで、十分な成形性が発揮されやすくなり、10質量部以下であることで繊維同士の接触が抑えられ、物質熱伝導が小さくなり熱伝導率を低下させることができる。

[0025] 本発明の断熱充填材は、高温中（200℃以上）での断熱性を向上させるために輻射散乱粒子をさらに含有することができる。輻射散乱粒子は、赤外線を効果的に散乱又は吸収できるものであれば特に限定されるものではなく、例えば炭化ケイ素や酸化ジルコニウム、酸化チタン、酸化銅などが使用で

き、これらの粒子を一種あるいは複数種使用してよい。

輻射散乱粒子の使用量は、断熱充填材 100 質量%に対して、0.5 質量%～35 質量%が好ましく、1.0 質量%～20 質量%がより好ましい。

[0026] 本発明によって得られる断熱充填材の熱伝導率は、25℃における熱伝導率が $0.05\text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 以下であることが好ましく、 $0.029\text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 以下であることがより好ましい。

[0027] 疎充填嵩密度とは、すり切り容器に対して一定の高さから粉体を落として充填し、すり切った際に得られる密度である。

[0028] 本発明で得られる断熱充填材は、設計した充填密度に近づける観点から混合シリカ粉末の状態で疎充填嵩密度が $40\text{ kg}/\text{m}^3$ 以上であることが好ましく、 $50\sim 80\text{ kg}/\text{m}^3$ であることがより好ましい。 $40\text{ kg}/\text{m}^3$ 以上であることで十分な充填性が発揮され、空隙が増大しすぎず、十分な断熱性が得られやすくなる。

[0029] 断熱充填材の製造方法は特に限定するものではないが、例えば、乾式シリカ 10 質量%～80 質量%と、含水率が 2 質量%以上の湿式シリカ 20 質量%～90 質量%とを、数 mm のクリアランスを持たせた磨砕式ミルによって混合することで得る方法や、気流で巻き上げながら金属羽でこれらを混合する二軸混合によって得る方法等が挙げられる。

以上のような本実施形態の断熱充填材は固体として使用できる。また、固体の中では、粉末として使用できる。

[0030] [2] 断熱材

本実施形態に係る断熱材は、既述の断熱充填材を配合してなる。

具体的には、既述の断熱充填材を原料として充填することによって得られる断熱層又は断熱材のことであり、例えば、粉体の流動を利用して空間に充填することにより得られる断熱層であって、金型に加圧充填することによって得られる断熱材が挙げられる。

[0031] 加圧充填によって得る場合の詳細な手法は、特に限定するものではないが、例えば、金型を使用した乾式一軸プレスによって板状に成型してもよい。

ただし、乾燥時の空隙や亀裂の発生による成型欠陥の観点から、乾式成形が好ましい。

[0032] また、本実施形態に係る断熱材は、外皮材によって既述の断熱充填材の全体を被覆させてなるものでもよい。外皮材は、ガラス繊維、アルミナ繊維等の無機繊維織物や無機繊維不織布、樹脂フィルム、有機繊維織物、有機繊維不織布、アルミニウム、銅箔などの金属箔等シート形状のものが望ましいが、材質については特に限定されるものではない。

[0033] 被覆方法は特に限定されるものではなく、断熱充填材の充填率は使用用途によって適宜設定できる。例えば、加圧成型した断熱充填材を前述したシートによって被覆するものでもよく、シートを袋状に加工したものに断熱充填材を充填するものでもよい。

[0034] [3] 断熱構造

本実施形態に係る断熱構造は既述の断熱材を含む。

本実施形態に係る断熱充填材は、そのまま断熱材として使用してよいが、他の断熱材と組み合わせて、断熱構造としてもよい。他の断熱材と組み合わせて使用する場合、例えば、異なる耐熱性を有する他の断熱材上に充填積層させた積層構造によって構成される断熱構造は、本実施形態に係る断熱充填材に断熱材を組み合わせた層状の断熱構造といえる。また、中空の箱に本実施形態に係る断熱充填材を断熱材として充填した断熱構造としてもよい。

実施例

[0035] 以下、実施例及び比較例を挙げてさらに詳細に内容を説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0036] 「実験例1」

乾式シリカと湿式シリカを表1で示す混合比率で混合し、これらの混合物（混合シリカ粉末）100質量部に対して無機繊維4.5質量部を混合することで、断熱充填材を作製した。

[0037] これらの乾式シリカ、湿式シリカ、混合シリカ粉末や断熱充填材等について、含水率、疎充填嵩密度の割合及び熱伝導率をそれぞれ測定した。得られ

た結果を表1に示す。なお、使用材料は下記のとおりである。

[0038] (使用材料)

乾式シリカ1 (F1) : CAB-O-SIL M-5 粉末 (商品名、Cabot Specialty Chemicals 社製) 平均粒径 $0.20\ \mu\text{m}$ 、嵩密度 $70\ \text{g/L}$ 、含水率 $0.9\ \text{質量}\%$

乾式シリカ2 (F2) : AEROSIL 380 (商品名、日本アエロジル社製) 平均粒径 $0.05\ \mu\text{m}$ 未満、嵩密度 $50\ \text{g/L}$ 、含水率 $1.0\ \text{質量}\%$

乾式シリカ3 (F3) : NDK-N20 (商品名、旭化成ワッカーシリコン社製) 平均粒径 $0.15\ \mu\text{m}$ 、嵩密度 $40\ \text{g/L}$ 、含水率 $1.2\ \text{質量}\%$

[0039] 湿式シリカ1 (W1) : CARPLEX #80 粉末 (商品名、エボニック・ジャパン株式会社製) 平均粒径 $15\ \mu\text{m}$ 、嵩密度 $145\ \text{g/L}$ 、含水率 $8.0\ \text{質量}\%$

湿式シリカ2 (W2) : トクシール NP (商品名、Oriental Silicas Corporation 製) 平均粒径 $10\ \mu\text{m}$ 、嵩密度 $63\ \text{g/L}$ 、含水率 $6.2\ \text{質量}\%$

湿式シリカ3 (W3) : ミズカシル P-527 (商品名、水澤化学工業社製) 平均粒径 $1.8\ \mu\text{m}$ 、嵩密度 $190\ \text{g/L}$ 、含水率 $5.2\ \text{質量}\%$

[0040] 無機繊維1 (IF1) : シリカファイバーシート AS-300 (商品名、旭産業社製) 平均繊維径 $10\ \mu\text{m}$ 、 $25\ \text{mm}$ 裁断解繊加工 (平均繊維長さ : $25\ \text{mm}$)

[0041] 上記使用材料の嵩密度は、密充填嵩密度のことであり、ホソカワミクロン (株) 社製の「パウダテスターPT-S型」により測定される。

[0042] (評価方法)

含水率 : 乾式シリカ、湿式シリカ、混合シリカ粉末の含水率は、示差熱量分析装置 TGA-DTA 2000SR (商品名、Bruker AXS 社) を使用して、 200°C 時点での重量減少率とした。

[0043] 疎充填嵩密度は、内径 $\Phi 63\ \text{mm}$ 、容量 $200\ \text{mL}$ のステンレスビーカー

に対して、150mmの間隔をあけて、漏斗から断熱充填材を落下させ、すり切り充填させることで算出される密度とした。疎充填嵩密度は大きいほど充填性が良好であり、好ましくは40kg/m³以上である。

[0044] 熱伝導率：作製した断熱充填材を、一軸プレスを使用した金型成型によって成型体（200mm×200mm×20mm、密度230kg/m³程度）を作製し、ISO8301に準拠した熱伝導率測定装置（英弘精機社製）を用いて23℃で測定した。

[0045] 成形性：一軸プレスを使用した金型成型によって成型体（寸法等は同上）を作製し、成形性を目視で評価した。成型体にひび割れが確認されなかった場合を○、ひび割れあるいは破損が確認された場合を×とした。

[0046] [表1]

表 1

実験 No.	乾式シリカ (質量部)		湿式シリカ (質量部)		断熱充填材 における 含水率 (質量%)	疎充填 嵩密度 (kg/m ³)	熱伝導率 (W/(m・K))	成形性	備考
1-1	F1	0	W1	100	8.5	83	0.031	×	比較例
1-2	F1	10	W1	90	7.4	72	0.029	○	実施例
1-3	F1	30	W1	70	6.2	62	0.028	○	実施例
1-4	F1	50	W1	50	4.8	57	0.025	○	実施例
1-5	F1	70	W1	30	3.4	45	0.024	○	実施例
1-6	F1	80	W1	20	2.5	40	0.023	○	実施例
1-7	F1	100	W1	0	1.0	36	0.030	×	比較例
1-8	F2	50	W1	50	4.7	53	0.026	○	実施例
1-9	F3	50	W1	50	4.9	49	0.025	○	実施例
1-10	F1	50	W2	50	3.7	45	0.024	○	実施例
1-11	F1	50	W3	50	3.2	63	0.026	○	実施例
1-12	F1/F2	25/25	W1	50	4.9	63	0.025	○	実施例
1-13	F1	50	W1/W2	25/25	4.3	48	0.025	○	実施例

[0047] 表1より、湿式シリカの割合が増大するに従い、熱伝導率に悪影響を及ぼすことなく粉体の充填性が向上し、含水率と疎充填嵩密度、及び成形性が向上していることがわかる。

[0048] 「実験例2」

乾式シリカF1を50質量%、湿式シリカW1を50質量%の比率で混合

し、得られた混合物（混合シリカ粉末：実験No. 1-4）に対して表2に示す無機繊維を使用し、表2の通りその配合量を変えて断熱充填材を作製したこと以外は実験例1と同様に行った。結果を表2に示す。

[0049]（使用材料）

無機繊維2（IF2）：ガラス繊維（日本電気硝子社製）平均繊維径50 μm 、平均繊維長25mm

無機繊維3（IF3）：アルミナシリカ繊維（商品名デンカアルセン、デンカ製）平均繊維径5.0 μm 、平均繊維長25mm

[0050] [表2]

表2

実験 No.	無機繊維 (混合シリカ粉末100質量部 に対する質量部)		断熱充填材 における 含水率 (質量%)	疎充填 嵩密度 (kg/m^3)	熱伝導率 ($\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$)	成形性	備考
2-1	IF1	1	4.8	50	0.024	○	実施例
2-2	IF1	3	4.8	55	0.025	○	実施例
1-4	IF1	4.5	4.8	57	0.025	○	実施例
2-3	IF1	7	4.8	57	0.025	○	実施例
2-4	IF1	10	4.8	57	0.026	○	実施例
2-5	IF2	4.5	4.7	62	0.026	○	実施例
2-6	IF3	4.5	4.7	60	0.026	○	実施例
2-7	IF1/IF2	2.5/2	4.7	60	0.025	○	実施例

[0051] 表2より、本発明の範囲内で無機繊維を配合することにより熱伝導率に悪影響を及ぼすことなく粉体の充填性が向上し、含水率と疎充填嵩密度、及び成形性が向上していることがわかる。

[0052] 「実験例3」

実験No. 1-4の配合を使用し、表3に示す輻射散乱粒子を使用し、表3の通り配合量を変え、高温（600℃）での熱伝導率（高温熱伝導率）を測定したこと以外は実験例1と同様に行った。

[0053]（実験方法）

高温熱伝導率：作製した断熱充填材を、一軸プレスを使用した金型成型に

よって成型体（寸法等は同上）を作製し、J I S A 1 4 1 2 - 1 に準拠した保護熱板法熱伝導率測定装置（英弘精機社製）を用いて 6 0 0 °C で測定した。

[0054] （使用材料）

輻射散乱粒子（R 1）：炭化ケイ素（デンカ製）平均粒径 4. 2 μ m

輻射散乱粒子（R 2）：酸化チタン（富士フィルム和光純薬社製）平均粒径 5. 0 μ m

輻射散乱粒子（R 3）：ケイ酸ジルコニウム 和光一級（富士フィルム和光純薬社製）平均粒径 5. 0 μ m

[0055] [表3]

表 3

実験 No.	輻射散乱粒子 (断熱充填材 1 0 0 質量%に対する質量%)		断熱充填材 における 含水率 (質量%)	疎充填 嵩密度 (kg/m ³)	熱伝導率 (W/(m·K))	成形性	高温熱伝導率 (W/(m·K))	備考
1-4	-	0	4. 8	57	0. 025	○	0. 080	実施例
3-1	R1	0. 5	4. 8	57	0. 025	○	0. 070	実施例
3-2	R1	1. 0	4. 7	57	0. 025	○	0. 069	実施例
3-3	R1	5	4. 6	58	0. 025	○	0. 069	実施例
3-4	R1	20	4. 4	60	0. 026	○	0. 068	実施例
3-5	R1	30	4. 3	61	0. 027	○	0. 069	実施例
3-6	R2	5	4. 6	59	0. 025	○	0. 075	実施例
3-7	R3	5	4. 6	59	0. 025	○	0. 076	実施例
3-8	R1/R2	2. 5/2. 5	4. 6	58	0. 025	○	0. 070	実施例

[0056] 表 3 より、本発明の範囲内で輻射散乱粒子を配合することによりその他の物性に悪影響を及ぼすことなく高温熱伝導率が低減されていることがわかる。

産業上の利用可能性

[0057] 以上のように構成された本発明の断熱充填材は優れた操作性と充填性を有し、かつ従来以上の耐熱性と断熱性を有するため、複雑な形状に対しても適応可能であり、車両や飛行機、その他内燃機関、配管の省エネルギー化に寄与することができる。

請求の範囲

- [請求項1] 乾式シリカ 10 質量%～80 質量%と、含水率が 2 質量%以上の湿式シリカ 20 質量%～90 質量%とからなる混合シリカ粉末を含む断熱充填材。
- [請求項2] 前記混合シリカ粉末 100 質量部に対して、無機繊維を 1 質量部～10 質量部含む請求項 1 に記載の断熱充填材。
- [請求項3] 前記無機繊維が平均繊維径 0.1 μm ～50 μm である請求項 2 に記載の断熱充填材。
- [請求項4] 輻射散乱粒子を含む請求項 1～3 のいずれか一項に記載の断熱充填材。
- [請求項5] 前記乾式シリカの平均粒径が 0.8 μm 以下であり、前記湿式シリカの平均粒径が 1 μm 以上である請求項 1～4 のいずれか一項に記載の断熱充填材。
- [請求項6] 固体である請求項 1～5 のいずれか一項に記載の断熱充填材。
- [請求項7] 請求項 1～6 のいずれか一項に記載の断熱充填材を配合してなる断熱材。
- [請求項8] 請求項 7 に記載の断熱材を含む断熱構造。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/026834

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. C04B30/02 (2006.01) i, C01B33/18 (2006.01) i, D06M11/79 (2006.01) i, F16L59/00 (2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl. C04B30/02, C01B33/18, D06M11/79, F16L59/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2019

Registered utility model specifications of Japan 1996-2019

Published registered utility model applications of Japan 1994-2019

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2013-199421 A (JAPAN INSULATION CO., LTD.) 03 October 2013, claims 1, 4, 7, 10, paragraphs [0001], [0015]-[0109] (Family: none)	1-8
A	JP 2003-26759 A (NIPPON POLYURETHANE INDUSTRY CO., LTD.) 29 January 2003, paragraph [0069] (Family: none)	1-8

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
17.07.2019

Date of mailing of the international search report
30.07.2019

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C04B30/02(2006.01)i, C01B33/18(2006.01)i, D06M11/79(2006.01)i, F16L59/00(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C04B30/02, C01B33/18, D06M11/79, F16L59/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2019年
日本国実用新案登録公報	1996-2019年
日本国登録実用新案公報	1994-2019年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2013-199421 A（日本インシュレーション株式会社）2013.10.03, 請求項1, 4, 7, 10, [0001], [0015]-[0109]（ファミリーなし）	1-8
A	JP 2003-26759 A（日本ポリウレタン工業株式会社）2003.01.29, [0069]（ファミリーなし）	1-8

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

17.07.2019

国際調査報告の発送日

30.07.2019

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

末松 佳記

4 T

3443

電話番号 03-3581-1101 内線 3465