

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 1 区分

【発行日】平成24年1月5日 (2012.1.5)

【公表番号】特表2008-509069(P2008-509069A)

【公表日】平成20年3月27日 (2008.3.27)

【年通号数】公開・登録公報2008-012

【出願番号】特願2007-525203(P2007-525203)

【国際特許分類】

C 0 1 G 25/00 (2006.01)

B 0 1 J 23/10 (2006.01)

C 0 1 B 13/34 (2006.01)

【F I】

C 0 1 G 25/00

B 0 1 J 23/10 M

C 0 1 B 13/34

【誤訳訂正書】

【提出日】平成23年11月10日 (2011.11.10)

【誤訳訂正 1】

【訂正対象書類名】特許請求の範囲

【訂正対象項目名】全文

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

次の物理化学的なパラメーター：

- ・ B E T 表面積：40～100 m²/g、
 - ・ $d_n = 3 \sim 30$ nm、ここで d_n は一次粒子の数に関連した平均粒径である、
 - ・ 化学分析により決定され、混合酸化物粉末に対して、酸化イットリウム Y₂O₃ として計算して、5～15 質量%のイットリウム含量、
 - ・ T E M - E D X により決定され、酸化イットリウム Y₂O₃ として計算して、個々の一次粒子中のイットリウム含量（混合酸化物粉末中の含量に相当）：±10%、
 - ・ X 線回折により決定され、かつ混合酸化物粉末に対して、室温での含量
 - ・ 単斜晶の酸化ジルコニウム 1 質量%を上回り 10 質量%まで
 - ・ 正方晶の酸化ジルコニウム 10～95 質量%
 - ・ その際に 1300℃で2時間の加熱後の単斜晶の酸化ジルコニウムの含量は1質量%未満である、
 - ・ 0.2 質量%未満の炭素含量
- を有している凝集された一次粒子の形のナノスケールのイットリウム－ジルコニウム混合酸化物粉末。

【請求項 2】

B E T 表面積が 45～65 m²/g である、請求項 1 記載のナノスケールのイットリウム－ジルコニウム混合酸化物粉末。

【請求項 3】

$d_n / d_a = 0.5 \sim 0.9$ であり、ここで d_n は一次粒子の数に関連した平均粒径であり、かつ d_a は一次粒子の面積に関して平均した平均粒径である、請求項 1 又は 2 記載のナノスケールのイットリウム－ジルコニウム混合酸化物粉末。

【請求項 4】

平均凝集体直径が 200 nm 未満である、請求項 1 から 3 までのいずれか 1 項記載のナノ

スケールのイットリウム－ジルコニウム混合酸化物粉末。

【請求項 5】

ＯＥＭ表面積／ＢＥＴ表面積比が >1.1 であり、その場合にＯＥＭ表面積は $ＯＥＭ = 6000 / (d_a \times \rho)$ により与えられ、ここで d_a は一次粒子の面積に関して平均した粒径であり、 ρ は 6.05 g/cm^3 の酸化ジルコニウムの密度である、請求項 1 から 4 までのいずれか 1 項記載のナノスケールのイットリウム－ジルコニウム混合酸化物粉末。

【請求項 6】

ミクロ孔を有さず、かつ $2 \sim 30 \text{ nm}$ の範囲内のメソ孔の含量が 0.2 ml/g 未満である、請求項 1 から 5 までのいずれか 1 項記載のナノスケールのイットリウム－ジルコニウム混合酸化物粉末。

【請求項 7】

請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項記載のナノスケールのイットリウム－ジルコニウム混合酸化物粉末の製造方法において、

- ・有機溶剤又は有機溶剤混合物中にそれぞれ溶解された、有機の酸化ジルコニウム前駆物質及び無機の酸化イットリウム前駆物質を、その後に望まれるジルコニウム及びイットリウムの比に従って混合し、
 - ・この溶液混合物を、空気（噴霧空気）又は不活性ガスを用いて噴霧し、かつ
 - ・燃焼ガス及び空気（一次空気）と混合し、かつ前記混合物を反応空間中で火炎中で燃焼させ、
 - ・前記の熱いガス及び固体生成物を冷却し、ついで固体生成物を前記ガスから分離し、その場合に
 - ・前記溶液混合物中の酸化ジルコニウム前駆物質の含量は、 ZrO_2 として計算して、少なくとも $15 \text{ 質量\%}$ 及び $35 \text{ 質量\%}$ 以下であり、
 - ・反応空間中へ空気（二次空気）又は不活性ガスがおのおの場合に、一次空気の量の $50\% \sim 150\%$ に相当する量で付加的に導入され、
 - ・使用される空気中に存在する酸素／燃焼ガスの燃焼に必要な酸素の比として定義される λ は、 $2 \sim 4.5$ であり、
 - ・火炎中の有機の酸化ジルコニウム前駆物質及び無機の酸化イットリウム前駆物質の滞留時間は、 $5 \sim 30 \text{ ミリ秒}$ であり、かつ
 - ・空気による燃焼ガスの燃焼後に得られるガス量中の前記溶液混合物の含量は、 $0.003 \sim 0.006 \text{ 体積\%}$ である
- ことを特徴とする、請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項記載のナノスケールのイットリウム－ジルコニウム混合酸化物粉末の製造方法。

【請求項 8】

有機の酸化ジルコニウム前駆物質が、ジルコニウム（IV）エタノラート、ジルコニウム（IV）*n*-プロパノラート、ジルコニウム（IV）イソプロパノラート、ジルコニウム（IV）*n*-ブタノラート、ジルコニウム（IV）*t*-ブタノラート及び／又はジルコニウム（IV）2-エチルヘキサノアートを含む群から選択されている、請求項 7 記載の方法。

【請求項 9】

無機の酸化イットリウム前駆物質が、硝酸イットリウム、塩化イットリウム、炭酸イットリウム及び／又は硫酸イットリウムを含む群から選択されている、請求項 7 又は 8 記載の方法。

【請求項 10】

有機溶剤がメタノール、エタノール、*n*-プロパノール、イソプロパノール、*n*-ブタノール、*t*-ブタノール、2-プロパノン、2-ブタノン、ジエチルエーテル、*t*-ブチルメチルエーテル、テトラヒドロフラン、酢酸エチル、トルエン及び／又はベンジンである、請求項 7 から 9 までのいずれか 1 項記載の方法。

【請求項 11】

充填剤として、キャリアーとして、触媒活性物質として、燃料電池において、歯科用材

料として、膜の製造のため、シリコン及びゴム工業における添加剤として、液体系のレオロジーの調節のため、熱保護安定化のため、表面コーティング工業において、着色する顔料としての、請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項記載の該ナノスケールのイットリウム－ジルコニウム混合酸化物粉末の使用。

【誤訳訂正 2】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0008

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0008】

米国特許(US)第5155071号明細書は、部分的にイットリウムで安定化された酸化ジルコニウム粉末の特許の保護を請求し、前記粉末は凝集された一次粒子の形であり、その場合に凝集体は150nm未満の平均直径を有し、かつイットリウムは酸化ジルコニウム中に均質に分布される。部分的にイットリウムで安定化された酸化ジルコニウム粉末は、ジルコニウム前駆物質及びイットリウム前駆物質からなる均質な混合物の燃焼により製造される。重要な特徴は、前記方法が、酸化ジルコニウム前駆物質、一般的に四塩化ジルコニウムが揮発可能であるが、しかしイットリウム前駆物質が揮発不可能である温度で実施されることである。従ってイットリウム前駆物質は固体の形で燃焼に供給される。この方法の欠点は、小さいBET表面積を有するに過ぎない粉末が得られることである。そのうえ、イットリウムの分布が均質ではなく、むしろ異なるイットリウム濃度の領域が存在することが見出された。さらに、部分的にイットリウムで安定化された酸化ジルコニウム粉末の焼結挙動に関する情報は与えられていない。

【誤訳訂正 3】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0014

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0014】

本発明は、次の物理化学的なパラメーター：

- ・ BET 表面積：40～100m²/g、
 - ・ $d_n = 3 \sim 30$ nm、ここで d_n は一次粒子の数に関連した平均粒径である、
 - ・ 化学分析により決定され、混合酸化物粉末に対して、酸化イットリウム Y_2O_3 として計算して、5～15質量%のイットリウム含量、
 - ・ TEM-EDXにより決定され、粉末中の含量に相当し、酸化イットリウム Y_2O_3 として計算して、±10%の個々の一次粒子のイットリウム含量、
 - ・ X線回折により決定され、かつ混合酸化物粉末に対して、室温での含量
 - ・ 単斜晶の酸化ジルコニウム < 1～10質量%
 - ・ 正方晶の酸化ジルコニウム 10～95質量%
 - ・ その際に1300℃で2時間の加熱後の単斜晶の酸化ジルコニウムの含量は1質量%未満である、
 - ・ 0.2質量%未満の炭素含量
- を有している凝集された一次粒子の形のナノスケールのイットリウム－ジルコニウム混合酸化物粉末を提供する。

【誤訳訂正 4】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0017

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0017】

さらに、本発明による混合酸化物粉末が0.5～0.9の d_n/d_a 比（ここで d_n は一

次粒子の数に関連した平均粒径であり、かつ d_a は一次粒子の面積に関して平均した平均粒径である)を有することは有利でありうる。

【誤訳訂正5】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0018

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0018】

さらに、本発明による混合酸化物粉末が200nm未満である平均凝集体直径を有することは有利でありうる。

【誤訳訂正6】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0019

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0019】

さらに、本発明による混合酸化物粉末が、1.1よりも大きいOEM表面積/BET表面積比を有することが有利でありうる。OEM表面積は、 $OEM = 6000 / (d_a \times \rho)$ により与えられ、ここで d_a は面積に関して平均した粒径であり、 ρ は6.05g/cm³の酸化ジルコニウムの密度である。1.2よりも大きいOEM表面積/BET表面積比が特に有利でありうる。

【誤訳訂正7】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0021

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0021】

さらに、本発明は、本発明による混合酸化物粉末の製造方法を提供し、前記方法において、

- ・有機溶剤又は有機溶剤混合物中にそれぞれ溶解された、有機の酸化ジルコニウム前駆物質及び無機の酸化イットリウム前駆物質を、その後に望まれるジルコニウム及びイットリウムの比に従って混合し、
- ・この溶液混合物を、空気（噴霧空気）又は不活性ガスを用いて噴霧し、かつ
- ・燃焼ガス及び空気（一次空気）を含有しているガス混合物と混合し、かつ反応空間中で火炎中で燃焼させ、
- ・前記の熱いガス及び固体生成物を冷却し、ついで固体生成物を前記ガスから分離し、その場合に
- ・前記溶液中の酸化ジルコニウム前駆物質の含量は、少なくとも15質量%及び35質量%以下、好ましくは20～30質量%であり、
- ・反応空間中へ空気（二次空気）又は不活性ガスがおのおの場合に、一次空気の量の50%～150%に相当する量で付加的に導入され、
- ・使用される空気からの存在する酸素／燃焼ガスの燃焼に必要な酸素の比として定義される λ は、2～4.5であり、
- ・火炎中の前駆物質の滞留時間は、5～30ミリ秒、好ましくは10～20ミリ秒であり、かつ
- ・空気による燃焼ガスの燃焼後に得られる残留ガス量中の前駆物質溶液の含量は、0.003～0.006体積%であり、好ましくは0.004～0.005体積%である。

【誤訳訂正8】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0028

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0028】

実施例

分析：

DIN 66131に従って決定されたBET

TEM／EDX：エネルギー分散型X線分析（EDX）

TEM：Jeol 2070-F；EDX：Noran Voyager 4.2.3

画像分析：一次粒子及び凝集体のサイズを画像分析により決定する。Hitachi製のH 7500 TEM装置及びSIS製のMegaView II CCDカメラを用いて画像分析を実施する。評価のための画像倍率は、3.2nmの画素密度で30,000：1である。評価される粒子の数は1000よりも多い。ASTM3849-89に従って製造を実施する。検出に関する限界値の下限は50画素である。