

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号  
特許第7701933号  
(P7701933)

(45)発行日 令和7年7月2日(2025.7.2)

(24)登録日 令和7年6月24日(2025.6.24)

(51)国際特許分類

F I

C 0 1 F 7/448(2022.01)

C 0 1 F 7/448

C 0 1 F 7/441(2022.01)

C 0 1 F 7/441

請求項の数 12 (全17頁)

|                   |                               |          |                                          |
|-------------------|-------------------------------|----------|------------------------------------------|
| (21)出願番号          | 特願2022-555630(P2022-555630)   | (73)特許権者 | 522363494                                |
| (86)(22)出願日       | 令和3年3月12日(2021.3.12)          |          | アルマティス ゲー・エム・ペー・ハー                       |
| (65)公表番号          | 特表2023-518222(P2023-518222 A) |          | Almatiss GmbH                            |
| (43)公表日           | 令和5年4月28日(2023.4.28)          |          | ドイツ連邦共和国 67065 ルートヴィヒスハーフェン ギュリニシュトラッセ 2 |
| (86)国際出願番号        | PCT/EP2021/056339             |          | Giulinistrasse 2, 6                      |
| (87)国際公開番号        | WO2021/180924                 |          | 7065 Ludwigshafen, Germany               |
| (87)国際公開日         | 令和3年9月16日(2021.9.16)          | (74)代理人  | 100114890                                |
| 審査請求日             | 令和6年2月20日(2024.2.20)          |          | 弁理士 アインゼル・フェリックス＝ラインハルト                  |
| (31)優先権主張番号       | 20162967.2                    | (74)代理人  | 100098501                                |
| (32)優先日           | 令和2年3月13日(2020.3.13)          |          | 弁理士 森田 拓                                 |
| (33)優先権主張国・地域又は機関 | 欧州特許庁(EP)                     | (74)代理人  | 100116403                                |

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 高純度アルミニウム－水和物およびα - アルミナの製造方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項 1】

以下の工程：

- 製錬グレードアルミナ、前処理製錬グレードアルミナ、化学グレードアルミナ、前処理化学グレードアルミナ、遷移アルミナ、およびアルミニウム三水和物から選択されるアルミナ原料をエチレンジアミン四酢酸と混合して、原料混合物を得る工程、および
  - 前記原料混合物を水熱処理に付す工程
- を含み、その際、前記原料混合物のpHが少なくとも8である、アルミニウム－水和物の製造方法。

【請求項 2】

前記原料混合物のpHが、少なくとも9、より好ましくは少なくとも10、特に10～12の範囲、最も好ましくは10～11の範囲である、請求項1記載の方法。

【請求項 3】

前記原料混合物が、アンモニアを含有し、その際、前記アルミナ原料とアンモニアとの質量比が、100：1～10：1、特に50：1～10：1である、請求項1または2記載の方法。

【請求項 4】

前記原料混合物が、アンモニアを含有し、その際、前記アルミナ原料の含有量に対するアンモニアの含有量が、1.25質量％～3.70質量％の範囲である、請求項1から3までのいずれか1項記載の方法。

## 【請求項 5】

前記アルミナ原料が、浸出製錬グレードアルミナおよび浸出化学グレードアルミナから選択される、請求項 1 から 4 までのいずれか 1 項記載の方法。

## 【請求項 6】

前記アルミナ原料と前記エチレンジアミン四酢酸との質量比が、50 : 1 ~ 20 : 1、任意に 40 : 1 ~ 20 : 1 である、請求項 1 から 5 までのいずれか 1 項記載の方法。

## 【請求項 7】

前記原料混合物が、水酸化アンモニウムをさらに含む、請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項記載の方法。

## 【請求項 8】

前記原料混合物が、過酸化水素、水酸化ナトリウムまたは水酸化カリウムをさらに含む、請求項 1 から 7 までのいずれか 1 項記載の方法。

## 【請求項 9】

前記原料混合物の固体化合物と前記原料混合物の液体化合物との質量比が、1 : 1 ~ 1 : 2 の範囲であり、かつ / または前記水熱処理中の温度が、150 ~ 260 の範囲であり、かつ / または前記水熱処理中の水熱圧力が、1 バール ~ 300 バール、特に 1 バール ~ 50 バールの範囲であり、かつ / または前記水熱処理が、1 ~ 100 時間行われ、かつ / または前記原料混合物が、前記水熱処理中に攪拌される、請求項 1 から 8 までのいずれか 1 項記載の方法。

## 【請求項 10】

請求項 1 から 9 までのいずれか 1 項記載の方法に従ってアルミニウム－水和物を調製し、次いで前記アルミニウム－水和物を焼して  $\alpha$  - アルミナを得ることを含む、 $\alpha$  - アルミナの製造方法。

## 【請求項 11】

前記アルミニウム－水和物の純度レベルが、99.9 質量% ~ 99.99 質量% である、請求項 1 から 10 までのいずれか 1 項記載の方法。

## 【請求項 12】

アルミニウム－水和物の製造における、アンモニアとの組み合わせでのエチレンジアミン四酢酸の使用であって、前記製造が、以下の工程：

- 製錬グレードアルミナ、前処理製錬グレードアルミナ、化学グレードアルミナ、前処理化学グレードアルミナ、遷移アルミナ、およびアルミニウム三水和物から選択されるアルミナ原料をエチレンジアミン四酢酸と混合して、pH が少なくとも 8 である原料混合物を得る工程、および

- 前記原料混合物を水熱処理に付す工程を含む、前記使用。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

説明

本発明は、水熱処理を使用して低純度アルミナ原料から高純度アルミニウム－水和物（例えば、ペーマイトおよび / またはダイアスポア）および高純度  $\alpha$  - アルミナを製造する方法に関する。さらに、錯化剤の使用が記載されている。

## 【0002】

水熱処理を用いたペーマイトの製造は、当該技術分野で公知である。欧州特許第 0304721 号明細書には、pH 5 以下または pH 8 以上の水性媒体中で、0.02  $\mu\text{m}$  より細かいペーマイト種粒子の存在下で、ペーマイトに水熱的に変換可能な前駆体化合物を自生圧力下で加熱することを含む、微結晶ペーマイト製品の製造方法が開示されている。前駆体として、酸化アルミニウム、水酸化アルミニウムまたはアルミニウムアルコキシドを使用することができる。水熱処理後、微結晶のペーマイトが得られる。中国特許出願公開第 110357135 号明細書には、水酸化アルミニウムおよび超微細な水酸化アルミニ

10

20

30

40

50

ウムの種結晶を使用して、これらをアンモニアと混合するリチウム電池セパレータ用アルミナを製造する方法が教示されている。しかしながら、双方の方法とも技術的に複雑であり、高価な種粒子を多量に必要とする。

【 0 0 0 3 】

先行技術に鑑み、本発明の基礎となる課題は、低純度（不純物）、したがって、より安価な原料および最小量の技術装置を用いて高純度のアルミニウム－水和物を製造する、より安価で容易に制御可能な方法を提供することである。本発明のさらなる課題は、錯化剤の特定の使用を提供することである。

【 0 0 0 4 】

上記見出しの問題に対する解決策は、独立請求項に記載されている。従属請求項は、本発明の有利な実施形態を含む。

10

【 0 0 0 5 】

したがって、上記見出しの課題は、ペーサイトおよび／またはダイアスポアなどのアルミニウム－水和物の製造方法であって、アルミナ原料を、窒素含有錯化剤、酢酸およびクエン酸から選択される錯化剤と混合して原料混合物を得る工程と、原料混合物を水熱処理に付す工程とを含む方法により解決される。驚くべきことに、水熱処理前のアルミナ原料への特定の錯化剤の添加のために、製造されたアルミニウム－水和物の純度が著しく改善され得ることが見出された。

【 0 0 0 6 】

したがって、本発明の重要な第 1 の態様は、以下の工程：

- アルミナ原料をエチレンジアミン四酢酸と混合して、原料混合物を得る工程、および
- 該原料混合物を水熱処理に付す工程

を含み、その際、該原料混合物の pH が少なくとも 8 である、アルミニウム－水和物の製造方法に関する。

20

【 0 0 0 7 】

先行技術では、簡単かつ効率的な方法において、（低純度の）原料を使用して、高純度のアルミニウム－水和物（またはアルミニウム－水和物のか焼時に  $\alpha$  - アルミナ）を製造することができ、その際、水熱処理に付された原料混合物中でエチレンジアミン四酢酸が使用され、その原料混合物の pH が少なくとも 8 であるということは認識されていなかった。

30

【 0 0 0 8 】

特に、純度 99.8% 以下、特に純度 99.6% 以下のアルミナ原料を使用する場合、本発明の方法を実施した後のアルミニウム－水和物の純度は、少なくとも 99.90%、好ましくは 99.99% までである。アルミナ原料に含まれ、本発明の方法で除去できる代表的な不純物としては、 $\text{Na}_2\text{O}$ 、 $\text{CaO}$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、 $\text{MnO}$ 、 $\text{CuO}$ 、 $\text{Ga}_2\text{O}_3$  および  $\text{BeO}$  が挙げられる。このような不純物は、しばしばアルミナ原料の粒子や凝集体に吸蔵されている。本発明では、99.8% 以下の純度、特に 99.6% 以下の純度を有するアルミナ原料を、「低純度」アルミナ原料と呼ぶ。本発明の好ましい実施形態では、処理前の原料の純度（例えば、製錬所グレードのアルミナまたはアルミニウム水和物）と本明細書に記載の方法によって得られるアルミニウム－水和物生成物とを比較できるようにするために、すべての純度値は、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  ベースで報告されている。

40

【 0 0 0 9 】

このように、「アルミナ原料をエチレンジアミン四酢酸と混合し、原料混合物を得る」という工程によって、本明細書の開示から明らかな通り、アルミナ原料を含むだけでなく、エチレンジアミン四酢酸、さらに任意で他の成分も含む原料混合物が調製される。原料混合物（すなわち、水熱処理に付す前）の pH は、少なくとも 8 である。

【 0 0 1 0 】

水熱処理中、これは典型的には圧力および昇温下でオートクレーブ中で行われ、アルミナ原料は、再結晶化して、熱力学的により安定な相を形成する。本発明の錯化剤を用いる場合、水熱処理中に錯形成および任意で溶解を行うことによって不純物の除去が可能にな

50

り、そしてこの不純物は、水熱処理が終了し、反応混合物が冷却された後に得られた生成物を、濾過、洗浄、乾燥することによって容易に分離することができ、それによって少なくとも99.90%の純度を有する高純度アルミニウム一水和物が得られることが認められた。高純度アルミニウム一水和物は、最終的に乾燥することができる。

#### 【0011】

本発明の方法は、特定の追加の方法工程を必要とせず、単に、アルミナ原料に窒素含有錯化剤、酢酸およびクエン酸から選択される錯化剤を添加し、水熱処理を行うことによって原料混合物を調製することを必要とするのみであり、その際、錯化剤は単独で使用してもよいし、または2種以上の錯化剤を組み合わせで使用することもできる。上記見出しの錯化剤、特に窒素含有錯化剤は、当該技術分野でよく知られており、低コストで入手可能である。窒素含有錯化剤は、概して無毒であるため、その使用は容易であり、特定の予防措置を必要としない。本発明の方法は、容易に制御可能であり、短い処理時間で実施することができるので、本発明の方法のコストは低い。

10

#### 【0012】

原料混合物のpHは、好ましくは少なくとも8、より好ましくは少なくとも9、さらにより好ましくは少なくとも10に設定され、それによって驚くべきことに、得られるアルミニウム一水和物の純度を高めることができる。99.99%という並外れた高純度を得る観点から、原料混合物のpHは、特に10~12の範囲に設定され、最も好ましくは10~11の範囲に設定される。本明細書で使用される「原料混合物のpH」とは、水熱処理前、すなわち原料混合物を水熱処理に付す前の原料のpHを指す。

20

#### 【0013】

不純物の溶解性を改善し、水熱処理中のアルミナ原料の再結晶化を促進するために、原料混合物は、好ましくはアンモニアを含有し、その際、アルミナ原料とアンモニアとの質量比は、好ましくは100:1~10:1、特に50:1~10:1である。アンモニアは、水溶液として使用することができる。例として、25質量%のアンモニア水溶液を調製して、原料混合物に添加することができる。アンモニアは、好ましくは、100gのアルミナ原料に対して22gの純粋なアンモニアの量で使用するすることができる。

#### 【0014】

驚くべきことに、原料混合物がアンモニアを含有し、アルミナ原料の含有量に対するアンモニアの含有量が1.25質量%~3.70質量%の範囲であると好ましいことがさらに判明した。

30

#### 【0015】

アルミナ原料は、低コストで容易に入手できることから、好ましくは、製錬グレードアルミナ、化学グレードアルミナ、遷移アルミナ（すなわち、 $\lambda$ -アルミナ、 $\delta$ -アルミナ、 $\eta$ -アルミナ、 $\theta$ -アルミナ、 $\kappa$ -アルミナ、 $\rho$ -アルミナおよび $\chi$ -アルミナ）、ならびにアルミニウム三水和物から選択される。これらのうち、製錬グレードアルミナ、化学グレードアルミナ、遷移アルミナ（すなわち、 $\lambda$ -アルミナ、 $\delta$ -アルミナ、 $\eta$ -アルミナ、 $\theta$ -アルミナ、 $\kappa$ -アルミナ、 $\rho$ -アルミナおよび $\chi$ -アルミナ）ならびにアルミニウム三水和物、特に製錬グレードアルミナまたはアルミニウム三水和物が、特に好ましい。上記見出しの原料の粉碎物を使用することは、処理時間の短縮の観点から特に好ましい。また、これらの粉碎物を使用することは、純度の向上にも寄与し得る。したがって、粉碎後の上記見出しの原料の粉碎物のD50粒子径は、好ましくは0.1 $\mu$ m~100 $\mu$ mの範囲、より好ましくは1 $\mu$ m~45 $\mu$ mの範囲である。「アルミナ原料」という用語は、本明細書では、アルミニウム三水和物を含む、上記の原料を包含するように用いられている。したがって、「アルミナ原料」という用語は、本明細書では、アルミニウム一水和物（およびアルミニウム一水和物の焼時の $\alpha$ -アルミナ）の調製に適した任意の原料を定義するために、「原料」または「アルミニウム一水和物の調製のための原料」の同義語として用いられている。

40

#### 【0016】

本発明では、本明細書に記載のアルミニウム一水和物の調製方法において、好ましくは

50

少なくとも1つの電子供与性窒素を含む少なくとも窒素含有錯化剤の群からの特定の錯化剤の使用が、非常に有利であることが判明した。

【0017】

したがって、窒素含有錯化剤は、好ましくはエチレンジアミン四酢酸であり、このことは、驚くべきことに、低純度の出発物質（アルミナ原料）から出発する場合であっても、 $\text{Na}$ （ $\text{Na}_2\text{O}$ として計算）、 $\text{Fe}$ （ $\text{Fe}_2\text{O}_3$ として計算）および/または $\text{Ca}$ （ $\text{CaO}$ として）などの不純物の量が非常にわずかな、本明細書に記載の、極めて高いレベルの純度を有するアルミニウム－水和物（または $\alpha$ -アルミナ）の調製方法において特に有利であることが判明している。驚くべきことに、エチレンジアミン四酢酸は、原料混合物の酸性とアルカリ性とのバランスをとるようであり、本明細書に記載されているように、低純度のアルミナ原料から出発する単純で直接的な方法で高純度のアルミニウム－水和物を得ることを可能にしている。エチレンジアミン四酢酸の二ナトリウム塩は、最も一般的に使用されている錯化剤の1つであるが、純粋なエチレンジアミン四酢酸は、特に少なくとも $\text{pH} 8$ 、好ましくは少なくとも $\text{pH} 9$ で、より好ましくは $\text{pH} 10 \sim 12$ 、最も好ましくは $\text{pH} 10 \sim 11$ の範囲内で、より良い結果をもたらす、総 $\text{Na}_2\text{O}$ 濃度を増加させないことが判明した。

10

【0018】

さらに、不純物は、アルミナ原料と錯化剤（特にエチレンジアミン四酢酸）との質量比が、 $50:1 \sim 20:1$ である場合に、原料混合物から最もよく分離されることが判明した。アルミニウム－水和物の不純物レベルの改善に関しては、錯化剤の量が多いほど、著しく良好な結果が得られるというものではなかった。しかしながら、錯化剤の量が少ないほど、不純物レベルは高くなる。 $1000\text{ g}$ のアルミナ原料に対して $20 \sim 30\text{ g}$ の錯化剤を使用することが、特に好ましいことが判明した。上記のように、本発明の好ましい実施形態によれば、錯化剤は、エチレンジアミン四酢酸である。本発明の一実施形態によれば、アルミナ原料と錯化剤（特にエチレンジアミン四酢酸）との質量比は、原料混合物（水熱処理に付される）に使用されるアルミナ原料の乾燥質量および原料混合物中に存在する錯化剤（特にエチレンジアミン四酢酸）の乾燥質量に基づいて（すなわち、好ましくは、一般に1質量%未満、例えば、約0.5質量%以下である材料の残存水分を比率計算に入れずに）算出される。

20

【0019】

さらなる好ましい実施形態によれば、原料混合物は、水酸化アンモニウムを含む。理論に束縛されるものではないが、水酸化アンモニウムは、特にアンモニアと組み合わせると緩衝剤として機能するようであり、水酸化アンモニウムを添加をすることで、所望の $\text{pH}$ 値を容易に維持することができる。これにより、不純物の溶解性が高まり、アルミナの再結晶化が高速で進行しやすくなる。

30

【0020】

原料混合物は、原料混合物の $\text{pH}$ 値を（ $\text{pH} 8$ 超または $\text{pH} 9$ 超に、特に $\text{pH} 10 \sim 11$ の範囲内に）バランス/調整するために、必要に応じて、さらに酸を含んでもよく、その際、酸は、特に、塩酸、リン酸、硫酸、硝酸、ホウ酸、フッ化水素酸およびカルボン酸からなる群から選択され、カルボン酸は、好ましくは、炭酸、ギ酸およびプロピオン酸から選択される。驚くべきことに、これらの酸のうちの1種またはそれらの混合物の添加が、 $\text{Na}_2\text{O}$ および $\text{CaO}$ のより効率的な還元に寄与することが判明した。

40

【0021】

原料混合物は、さらに好ましくは、過酸化水素、水酸化ナトリウムまたは水酸化カリウムを含む。これにより、 $\text{pH}$ 値をより容易に調整することができる。

【0022】

調製されるアルミニウム－水和物の純度を向上させる観点から、原料混合物の固体化合物と原料混合物の液体化合物との質量比が $1:1 \sim 1:2$ の範囲であると、さらに有利である。

【0023】

50

製造されるアルミニウム－水和物の高純度の観点から、水熱処理中の温度を 150 ~ 260 の範囲内に設定することが、さらに好ましい。より高い温度でも効果はあるが、温度を高く設定するほど、よりコストがかかる方法となる。温度を低く設定するほど、再結晶化が遅くなる。温度を 150 ~ 260 の範囲内に設定すると、すべての有利な効果のバランスがとれ、製品の純度の観点から良い結果が得られる。

【0024】

水熱処理中の圧力は、特に制限されず、最大値は、使用される容器の安定性に依存することになる。しかしながら、水熱処理中の水熱圧力が 1 バール ~ 300 バール、特に 1 バール ~ 50 バールの範囲であると、良好な反応速度およびコスト効率を達成することができる。

【0025】

より好ましくは、水熱処理は 1 ~ 100 時間実施される。

【0026】

水熱処理中の反応は、好ましくは水熱処理中に原料混合物を攪拌することによって加速することができる。

【0027】

本発明のさらなる態様として、上記の方法に従って得られたアルミニウム－水和物をか焼する、 $\alpha$ -アルミナの製造方法が提供される。か焼は、700 超、より具体的には 800 超、最も具体的には 900 ~ 1500 の間の温度で実施することができる。加えて、か焼は、電気、ガスまたは他の燃焼炉 / キルン（連続または周期的）で行うことができ、滞留 / 保持時間は柔軟である。か焼パラメータは、好ましくは、 $\alpha$ -アルミナの特定の結晶サイズおよび表面積を調整するために設定される。製造される所望の製品に応じて、一次結晶サイズは、好ましくは 0.1 ~ 6  $\mu\text{m}$  であり、比表面積は、0.1 ~ 50  $\text{m}^2 / \text{g}$  であり、その際、粒度分布は、DIN EN 725 / T5 に従って測定され、表面積は、ISO 9227 に従って測定される。高純度アルミニウム－水和物の使用により、 $\alpha$ -アルミナも高純度を示す。

【0028】

本発明のさらなる態様は、アルミニウム－水和物の調製における、特に水熱処理におけるエチレンジアミン四酢酸 (EDTA) の使用に関する。本発明のさらなる態様は、アルミニウム－水和物が、水熱処理に付される原料混合物から得られ、水熱処理前の原料混合物の pH が、少なくとも 8、好ましくは少なくとも 9、より好ましくは 10 ~ 12 の範囲、最も好ましくは 10 ~ 11 の範囲にあり、原料とエチレンジアミン四酢酸との質量比が、50 : 1 ~ 20 : 1、任意に 40 : 1 ~ 20 : 1 である、前述の使用に関する。

【0029】

本発明のさらなる態様として、ペーライトおよび / またはダイアスポアなどのアルミニウム－水和物の製造における、特に水熱処理における、窒素含有錯化剤、酢酸およびクエン酸から選択される錯化剤とアンモニアとの組み合わせの使用が開示されている。特定の錯化剤をアンモニアと組み合わせると、製造されるアルミニウム－水和物の純度が向上する。

【0030】

本発明の以下の実施形態も、本明細書に開示されている：

1. アルミニウム－水和物の製造方法であって、以下の工程：

- アルミナ原料を、窒素含有錯化剤、酢酸およびクエン酸から選択される錯化剤と混合して、原料混合物を得る工程、および

- 該原料混合物を水熱処理に付す工程

を含む、方法。

2. 原料混合物の pH が、少なくとも 5、好ましくは少なくとも 8、より好ましくは少なくとも 9、さらにより好ましくは少なくとも 10 であり、その際、原料混合物の pH が、最も好ましくは 10 ~ 11 の範囲である、実施形態 1 記載の方法。

3. 原料混合物が、アンモニアを含有し、その際、アルミナ原料とアンモニアとの質量

10

20

30

40

50

比が、100 : 1 ~ 10 : 1である、実施形態1または2記載の方法。

4. 原料混合物が、アンモニアを含有し、その際、アルミナ原料の含有量に対するアンモニアの含有量が、1.25質量% ~ 3.70質量%の範囲である、実施形態1から3までのいずれかに記載の方法。

5. アルミナ原料が、製錬グレードアルミナ、前処理（浸出）製錬グレードアルミナ、化学グレードアルミナ、前処理（浸出）化学グレードアルミナ、遷移アルミナ、およびアルミニウム三水和物から選択される、実施形態1から4までのいずれかに記載の方法。

6. 窒素含有錯化剤が、少なくとも1つの電子供与性窒素を含み、その際、窒素含有錯化剤が、特にニトリロ三酢酸、エチレンジアミン四酢酸、エチレンジアミン四酢酸二ナトリウム塩、1,2-シクロヘキシレンジアミン四酢酸、ジ-エチレントリアミン五酢酸、ビス（アミノエチル）-グリコールエーテル-N,N,N'-N'-四酢酸、N-（2-ヒドロキシエチル）-エチレンジアミン-N,N,N'-三酢酸三ナトリウム塩、トリエチレンテトラミン六酢酸、N,N-ビス（カルボキシメチル）-L-グルタミン酸四ナトリウム、L-グルタミン酸、N,N-二酢酸四ナトリウム塩GLDA、エチレンジアミン-N,N'-ビス（2-ヒドロキシフェニル酢酸）、エチレンジアミン、2-（2-アミノエチルアミノ）エタノール、ジエチレントリアミン、ジエチレンテトラミン、イミノジアセテート、トリエチレンテトラミン、トリアミノトリエチルアミン、ビス（サリチリデン）エチレンジアミン、エチレンジアミノトリアセテート、1,4,7,10-テトラアザシクロドデカン-1,4,7,10-テトラアセテート、ジメチルグリオキシム、8-ヒドロキシキノリン、2,2'-ビピリジンおよび1,10-フェナンスロリンから特に選択される、実施形態1から5までのいずれかに記載の方法。

7. 窒素含有錯化剤が、エチレンジアミン四酢酸である、実施形態1から6までのいずれかに記載の方法。

8. アルミナ原料と窒素含有錯化剤との質量比が、50 : 1 ~ 20 : 1である、実施形態1から7までのいずれかに記載の方法。

9. 原料混合物が、水酸化アンモニウムをさらに含む、実施形態1から8までのいずれかに記載の方法。

10. 原料混合物が、酸をさらに含み、その際、酸が、特に、塩酸、リン酸、硫酸、硝酸、ホウ酸、フッ化水素酸およびカルボン酸からなる群から選択され、その際、カルボン酸が、好ましくは、炭酸、ギ酸およびプロピオン酸から選択される、実施形態1から9までのいずれかに記載の方法。

11. 原料混合物が、過酸化水素、水酸化ナトリウムまたは水酸化カリウムをさらに含む、実施形態1から10までのいずれかに記載の方法。

12. 原料混合物の固体化合物と原料混合物の液体化合物との質量比が、1 : 1 ~ 1 : 2の範囲であり、かつ/または水熱処理中の温度が、150 ~ 260の範囲であり、かつ/または水熱処理中の水熱圧力が、1パール ~ 300パール、特に1パール ~ 50パールの範囲であり、かつ/または水熱処理が、1 ~ 100時間行われ、かつ/または原料混合物が、水熱処理中に攪拌される、実施形態1から11までのいずれかに記載の方法。

13. 実施形態1から12までのいずれか1つに記載の方法に従って得られた、アルミニウム-水和物をか焼する工程を含む、 $\alpha$ -アルミナの製造方法。

14.  $\alpha$ -アルミナの純度レベルが、99.8質量% ~ 99.99質量%である、実施形態13記載の方法。

15. アルミニウム-水和物の製造における、特に水熱処理における、窒素含有錯化剤、酢酸およびクエン酸から選択される、錯化剤の使用。

【図面の簡単な説明】

【0031】

【図1】実施例1、2、3および5の不純物レベルに関する試験結果を示す図である。

【図2】実施例4 ~ 10の不純物レベルに関する試験結果を示す図である。

【図3】pHの関数としての不純物濃度の依存性を示す図である。

【0032】

10

20

30

40

50

## 実施例

## 実施例 1

オートクレーブ内で、約 0.25 質量%の不純物 ( $\text{Na}_2\text{O}$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{CaO}$ 、 $\text{Li}_2\text{O}$ および $\text{ZnO}$ )濃度を有する 50 g の水酸化アルミニウム ( $\text{Al}(\text{OH})_3$ ) (詳細は表 1 を参照) を、0.5 g の EDTA (エチレンジアミン四酢酸)、1.5 ml の純  $\text{NH}_3$  および 50 g の  $\text{H}_2\text{O}$  と混合した。水熱処理を、攪拌しながら、190、12 パールの水蒸気圧で 48 時間行った。反応混合物を濾過し、濾液を洗浄して乾燥させた後に、高純度のペーマイトが、41.75 g の量で得られた。

## 【0033】

不純物の低減に関する結果を、以下の表 1 に示し、その際、2 行目は、各不純物の初期量を示す。他に定義されていない場合、表 1 に表示された数値は、質量%で示されている。処理前の原料 (例えば、製錬グレードアルミナまたはアルミニウム水和物) の純度を、アルミニウム水和物生成物と比較できるようにするために、すべての純度値を、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  基準で報告する。

## 【表 1】

表1

| 実施例<br>No. | EDTA<br>[g] | $\text{NH}_3$ [ml] | pH   | $\text{Na}_2\text{O}$ | $\text{Fe}_2\text{O}_3$ | $\text{MgO}$ | $\text{CaO}$ | $\text{Li}_2\text{O}$ | $\text{ZnO}$ |
|------------|-------------|--------------------|------|-----------------------|-------------------------|--------------|--------------|-----------------------|--------------|
| 処理前の<br>原料 |             |                    |      | 0.1835                | 0.0084                  | 0.0008       | 0.0101       | 0.0234                | 0.0255       |
| 1          | 0.5         | 1.5                | 11   | 0.0199                | 0.0044                  | 0.0003       | 0.0031       | 0.0044                | -            |
| 2          | 1           | 3                  | 11   | 0.0082                | 0.0022                  | 0.0004       | 0.0014       | 0.0015                | 0.0051       |
| 3          | 1.2         | 3                  | 10   | 0.0082                | 0.0020                  | 0.0001       | 0.0013       | 0.0019                | 0.0042       |
| 4          | 1.5         | 2                  | 8.5  | 0.0035                | 0.0025                  | 0.0001       | 0.0024       | 0.0015                | 0.0067       |
| 5          | 1.5         | 3                  | 9    | 0.0059                | 0.0019                  | 0.0002       | 0.0012       | 0.0016                | 0.0041       |
| 6          | 1.5         | 3.5                | 9.5  | 0.0071                | 0.0020                  | 0.0002       | 0.0012       | 0.0016                | 0.0052       |
| 7          | 1.5         | 4                  | 10   | 0.0059                | 0.0016                  | 0.0001       | 0.0011       | 0.0020                | 0.0051       |
| 8          | 1.5         | 4.5                | 10.5 | 0.0035                | 0.0016                  | 0.0002       | 0.0007       | 0.0014                | 0.0042       |
| 9          | 1.5         | 6                  | 11   | 0.0059                | 0.0013                  | 0.0002       | 0.0007       | 0.0018                | 0.0038       |
| 10         | 1.5         | 10                 | 11   | 0.0094                | 0.0013                  | 0.0002       | 0.0011       | 0.0024                | 0.0036       |

## 【0034】

不純物  $\text{Na}_2\text{O}$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{CaO}$  および  $\text{Li}_2\text{O}$  について、不純物レベルの大幅な低減が達成されたことが分かる。

## 【0035】

## 実施例 2 ~ 10

実施例 2 ~ 10 は、EDTA および  $\text{NH}_3$  の量を上記表 1 に示すように調整した以外は、実施例 1 と同様にして調製した。不純物  $\text{Na}_2\text{O}$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{CaO}$ 、 $\text{Li}_2\text{O}$  および  $\text{ZnO}$  について、不純物レベルの大幅な低減が達成されたことが分かる。

## 【 0 0 3 6 】

上記の表 1 より、さらに、アンモニア含有量を 6 m l から 1 0 m l に増加させても（実施例 9 および 1 0 を参照）、さらなる改善、すなわち不純物のさらなる低減には至らず、代わりに、いくつかの不純物（ $\text{Na}_2\text{O}$ 、 $\text{CaO}$ 、 $\text{Li}_2\text{O}$ ）がわずかに増加したことが分かる。

## 【 0 0 3 7 】

図 1 では、実施例 1、2、3 および 5 の不純物レベルに関する試験結果が比較されており、EDTA の量の影響の概要が示されている。実施例 1 は、EDTA 含有量が最も少ない（50 g のアルミナ原料 -  $\text{Al}(\text{OH})_3$  当たり 0.5 g の EDTA : アルミナ原料 : EDTA 質量比 = 100 : 1）である。実施例 2 は、50 g のアルミナ原料当たり 1 g の EDTA を含有し、これは 50 : 1 のアルミナ原料 : EDTA 質量比に相当する。実施例 3 は、50 g のアルミナ原料当たり 1.2 g の EDTA を含有し、これは 42.7 : 1 のアルミナ原料 : EDTA 質量比に相当する。実施例 5 は、50 g のアルミナ原料当たり 1.5 g の EDTA を含有し、これは 33.3 : 1 のアルミナ原料 : EDTA 質量比に相当する。アルミナ原料と窒素含有錯化剤との質量比が 50 : 1 ~ 20 : 1 の範囲であれば、最良の試験結果が得られることが分かる。EDTA の量が多くなると著しくコストが増加するが、不純物レベルはさらに著しく低下しない。

## 【 0 0 3 8 】

図 2 では、実施例 4 ~ 10 の不純物レベルに関する試験結果が比較されており、 $\text{NH}_3$  の量の影響の概要が示されている。実施例 4 では、アンモニア含有量は最も少ない（1.5 g のアンモニアに相当する 2 m l のアンモニア : アルミナ原料 : アンモニア質量比 = 32.4 : 1）。実施例 5 では、2.3 g のアンモニアに相当する 3 m l のアンモニアが含有されている : アルミナ原料 : アンモニア質量比 = 21.6 : 1。実施例 6 では、2.7 g のアンモニアに相当する 3.5 m l のアンモニアが含有されている : アルミナ原料 : アンモニア質量比 = 18.5 : 1。実施例 7 では、3.1 g のアンモニアに相当する 4 m l のアンモニアが含有されている : アルミナ原料 : アンモニア質量比 = 16.2 : 1。実施例 8 では、3.5 g のアンモニアに相当する 4.5 m l のアンモニアが含有されている : アルミナ原料 : アンモニア質量比 = 14.4 : 1。実施例 9 では、4.6 g のアンモニアに相当する 6 m l のアンモニアが含有されている : アルミナ原料 : アンモニア質量比 = 10.8 : 1。実施例 10 では、7.7 g のアンモニアに相当する 6 m l のアンモニアが含有されている : アルミナ原料 : アンモニア質量比 = 6.5 : 1。

## 【 0 0 3 9 】

アルミナ原料とアンモニアとの質量比が 100 : 1 ~ 10 : 1 の範囲であれば、不純物の優れた低減効果が得られることが分かる。アンモニアの量が多くなっても、不純物レベルにさらに大きな影響を与えない。

## 【 0 0 4 0 】

## 実施例 11

8  $\mu\text{m}$  の D50 を有する出発物質としてアルミニウム三水和物を用いて、実施例 1 と同様に、実施例 11 を調製した。アルミニウム三水和物を、1.1 g の EDTA および 4.5 m l の  $\text{NH}_3$  と混合した。水熱処理を、攪拌しながら、190、12 バールの水蒸気圧で 24 時間行った。高純度のペーマイトが得られ、これを濾過し、洗浄し、乾燥させた。

## 【 0 0 4 1 】

不純物の低減に関する結果を、以下の表 2 に示し、その際、2 行目は、各不純物の初期量を示し、最終行は、水熱処理後の不純物測定の結果を示す。他に定義されていない場合、表 2 に表示された数値は、質量 % で示されている。処理前の原料（例えば、製錬グレードアルミナまたはアルミニウム三水和物）の純度を、アルミニウム三水和物生成物と比較できるようにするために、すべての純度値を、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  基準で報告する。

10

20

30

40

## 【表 2】

表2

|            | pH  | Na <sub>2</sub> O<br>(%) | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub><br>(%) | MgO<br>(%) | CaO<br>(%) | Li <sub>2</sub> O<br>(%) | ZnO<br>(%) | CuO<br>(%) | Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub><br>(%) | BeO<br>(%) |
|------------|-----|--------------------------|---------------------------------------|------------|------------|--------------------------|------------|------------|---------------------------------------|------------|
| 処理前<br>の原料 | --- | 0.122                    | 0.0098                                | 0.0003     | 0.0099     | 0.0092                   | 0.0170     | 0.0064     | 0.0096                                | 0.0014     |
| 水熱<br>処理後  | 11  | 0.002                    | 0.0021                                | 0.0002     | 0.0007     | 0.0006                   | 0.0010     | 0.0017     | 0.0062                                | 0.0010     |

10

## 【0042】

不純物 Na<sub>2</sub>O、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、MgO、CaO、Li<sub>2</sub>O、ZnO、CuO、Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> および BeO について、不純物レベルの大幅な低減が達成されたことが分かる。

## 【0043】

## 実施例 12

84 μm の粒子径を有し、出発物質として 5 μm の粒子径を有する製錬グレードアルミナ (SGA) 原料を用いて、実施例 1 と同様にして、実施例 12 を調製した。製錬グレードアルミナを、1.5 g の EDTA および 6 ml の NH<sub>3</sub> と混合した。水熱処理を、攪拌しながら、190℃、12 パールの水蒸気圧で 60 時間行った。高純度のベーマイトが得られ、これを濾過し、洗浄し、乾燥させた。

20

## 【0044】

不純物の低減に関する結果を、以下の表 3 に示す。他に定義されていない場合、表 3 に表示された数値は、質量 % で示されている。処理前の原料 (例えば、製錬グレードアルミナまたはアルミニウム水和物) の純度を、アルミニウム水和物生成物と比較できるようにするために、すべての純度値を、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基準で報告する。

## 【表 3】

表3

|                                | pH  | Na <sub>2</sub> O<br>(%) | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub><br>(%) | MgO<br>(%) | CaO<br>(%) |
|--------------------------------|-----|--------------------------|---------------------------------------|------------|------------|
| 処理前:<br>SGA 84 μm              | --- | 0.133                    | 0.0176                                | 0.0069     | 0.0216     |
| 水熱処理後:<br>SGA 84 μm            | 11  | 0.025                    | 0.0060                                | 0.0040     | 0.0051     |
| 処理前:<br>SGA 5 μm               | --- | 0.488                    | 0.0208                                | 0.0003     | 0.0294     |
| 水熱処理後:<br>SGA 5 μm<br>オートクレーブ済 | 11  | 0.006                    | 0.0044                                | 0.0008     | 0.0010     |

30

40

## 【0045】

不純物 Na<sub>2</sub>O、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、MgO および CaO について、不純物レベルの大幅な低減が達成されたことが分かる。

## 【0046】

## 実施例 13

製錬グレードアルミナ (SGA) 原料を用いて、実施例 12 と同様にして、実施例 13

50

を調製した。試料Aは、浸出しなかった。試料Bは、HCl / 水混合液で浸出した。EDTAを1.5gの量で添加し、NH<sub>3</sub>を6mlの量で非浸出の製錬グレードアルミナ試料Aおよび浸出した製錬グレードアルミナ試料Bに添加した。水熱処理を、攪拌しながら、190℃、12バールの水蒸気圧で48時間行った。得られたペーマイトを、濾過し、洗浄し、乾燥させた。

【0047】

不純物の低減に関する結果を、以下の表4に示す。他に定義されていない場合、表4に表示された数値は、質量%で示されている。処理前の原料（例えば、製錬グレードアルミナまたはアルミニウム水和物）の純度を、アルミニウム-水和物生成物と比較できるようにするために、すべての純度値を、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>基準で報告する。

10

【0048】

#### 実施例14

同じ製錬グレードアルミナ（SGA）原料を用いて、実施例13と同様にして、実施例14を調製した。試料Cは、浸出しなかった。試料Dは、HCl / 水混合液で浸出した。EDTAを添加しなかったが、NH<sub>3</sub>を6mlの量で非浸出の製錬グレードアルミナ試料Cに添加し、製錬グレードアルミナ試料Dを浸出させた。水熱処理を、攪拌しながら、190℃、12バールの水蒸気圧で48時間行った。得られたペーマイトを、濾過し、洗浄し、乾燥させた。

【0049】

不純物の低減に関する結果を、以下の表4に示す。他に定義されていない場合、表4に表示された数値は、質量%で示されている。処理前の原料（例えば、製錬グレードアルミナまたはアルミニウム水和物）の純度を、アルミニウム-水和物生成物と比較できるようにするために、すべての純度値を、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>基準で報告する。

20

【0050】

#### 実施例15

同じ製錬グレードアルミナ（SGA）原料を用いて、実施例13と同様にして、実施例15を調製した。試料Eは、浸出しなかった。試料Fは、HCl / 水混合液で浸出した。EDTAを1.5gの量で添加したが、NH<sub>3</sub>は添加しなかった。水熱処理を、攪拌しながら、190℃、12バールの水蒸気圧で48時間行った。得られたペーマイトを、濾過し、洗浄し、乾燥させた。

30

【0051】

不純物の低減に関する結果を、以下の表4に示す。他に定義されていない場合、表4に表示された数値は、質量%で示されている。処理前の原料（例えば、製錬グレードアルミナまたはアルミニウム水和物）の純度を、アルミニウム-水和物生成物と比較できるようにするために、すべての純度値を、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>基準で報告する。

【表4】

表4

| SGA | 浸出 | D50<br>[μm] | 温度<br>[°C] | 時間<br>[h] | EDTA<br>[g] | NH3<br>[ml] | Na <sub>2</sub> O | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | CaO    |
|-----|----|-------------|------------|-----------|-------------|-------------|-------------------|--------------------------------|--------|
| 処理前 | なし | 84          |            |           |             |             | 0.319             | 0.0136                         | 0.0192 |
| 試料A | なし | 6           | 190        | 48        | 1.5         | 6           | 0.006             | 0.0044                         | 0.0007 |
| 試料B | あり | 6           | 190        | 48        | 1.5         | 6           | 0.002             | 0.0051                         | 0.0011 |
| 試料C | なし | 6           | 190        | 48        | 0           | 6           | 0.034             | 0.0160                         | 0.0218 |
| 試料D | あり | 6           | 190        | 48        | 0           | 6           | 0.007             | 0.0181                         | 0.0215 |
| 試料E | なし | 6           | 190        | 48        | 1.5         | 0           | 0.022             | 0.0120                         | 0.0111 |
| 試料F | あり | 6           | 190        | 48        | 1.5         | 0           | 0.032             | 0.0187                         | 0.0085 |

40

50

【 0 0 5 2 】

表 4 の試験結果から分かるように、E D T A および N H <sub>3</sub> を添加することで（試料 A および B ）、不純物の低減の観点から最も良好な試験結果が得られる。しかしながら、E D T A のみの添加でも（試料 E および F ）、表 4 に示した不純物の低減は良好である。試料 F の F e <sub>2</sub> O <sub>3</sub> の不純物レベルが、わずかに増加しているだけである。しかしながら、N a <sub>2</sub> O および C a O の不純物濃度は、著しく低減されている。N H <sub>3</sub> の添加により（試料 C および D を参照）、N a <sub>2</sub> O は低減するが、F e <sub>2</sub> O <sub>3</sub> および C a O の不純物レベルは高い。

【 0 0 5 3 】

実施例 1 6

実施例 1 6 は、E D T A を 1 . 5 g の量で添加し、N H <sub>3</sub> を 6 m l の量で添加した製錬グレードアルミナ原料の試料 G ~ V のソーダ不純物レベルの試験結果を示す。水熱処理を、攪拌せずに、1 9 0 、 1 2 バールの水蒸気圧で行った。得られたベーマイトを、濾過し、洗浄し、乾燥させた。試料 G ~ V は、したがって同じ温度であるが、異なる時間にわたり処理されていた。加えて、製錬グレードアルミナ原料試料 G ~ V の D 5 0 は、以下の表 5 に概略を示すように変化した。

10

20

30

40

50

【表 5】

表5

| 試料 | d50<br>[μm] | ソーダ[質量%]<br>(HT前) | ソーダ[質量%]<br>(HT後) | 時間<br>[h] | 温度<br>[°C] | 圧力<br>[バール] | pH |
|----|-------------|-------------------|-------------------|-----------|------------|-------------|----|
| G  | 2           | 0.334             | 0.045             | 6         | 190        | 12          | 11 |
| H  | 5           | 0.087             | 0.027             | 6         | 190        | 12          | 11 |
| I  | 84          | 0.087             | 0.051             | 6         | 190        | 12          | 11 |
| J  | 5           | 0.087             | 0.025             | 12        | 190        | 12          | 11 |
| K  | 84          | 0.087             | 0.045             | 12        | 190        | 12          | 11 |
| L  | 2           | 0.334             | 0.015             | 18        | 190        | 12          | 11 |
| M  | 5           | 0.087             | 0.009             | 18        | 190        | 12          | 11 |
| N  | 5           | 0.087             | 0.009             | 24        | 190        | 12          | 11 |
| O  | 84          | 0.087             | 0.036             | 24        | 190        | 12          | 11 |
| P  | 5           | 0.087             | 0.002             | 48        | 190        | 12          | 11 |
| Q  | 9           | 0.087             | 0.006             | 48        | 190        | 12          | 11 |
| R  | 15          | 0.087             | 0.008             | 48        | 190        | 12          | 11 |
| S  | 68          | 0.087             | 0.018             | 48        | 190        | 12          | 11 |
| T  | 84          | 0.087             | 0.028             | 48        | 190        | 12          | 11 |
| U  | 5           | 0.087             | 0.002             | 60        | 190        | 12          | 11 |
| V  | 84          | 0.087             | 0.026             | 60        | 190        | 12          | 11 |

## 【0054】

表5から、EDTAおよびNH<sub>3</sub>の添加は、ソーダ不純物レベルの低減に有利な効果があったことが分かる。また、D50が高いほど、ソーダ不純物レベルの低減効果が低いことも分かる。ソーダ低減の特別な改善は、2～15 μmの範囲のD50に対して得られる可能性がある。また、表5の試験結果から、18～48時間の水熱処理によってソーダ不純物レベルの優れた低減効果が得られ、60時間の処理時間では、さらなる有利な効果が得られなかったことも分かる。

## 【0055】

## 実施例17

出発物質として4.5 μmの粒子径(D50)を有する製錬グレードアルミナ(SGA)原料を用いて、実施例1と同様に、実施例17を調製した。50gの製錬グレードアルミナを、100mlの水ならびに異なる量のEDTAおよびNH<sub>3</sub>と、表6に示すように混合した。水熱処理を、攪拌しながら、190℃、12バールの水蒸気圧で48時間行った。高純度のペーマイトが得られ、これを濾過し、洗浄し、乾燥させた。

## 【0056】

不純物の低減に関する結果を、以下の表 6 に示す。他に定義されていない場合、表 6 に表示された数値は、質量 % で示されている。処理前の原料（例えば、製錬グレードアルミナまたはアルミニウム水和物）の純度を、アルミニウム－水和物生成物と比較できるようにするために、すべての純度値を、 $Al_2O_3$  基準で報告する。

【表 6】

表 6

| 試料        | EDTA<br>[g] | NH <sub>3</sub><br>[ml] | 水熱処理前<br>のpH | 水熱処理後<br>のpH | Na <sub>2</sub> O<br>(%) | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub><br>(%) | CaO<br>(%) |
|-----------|-------------|-------------------------|--------------|--------------|--------------------------|---------------------------------------|------------|
| SGA<br>原料 | -           | -                       | -            | -            | 0.3300                   | 0.0165                                | 0.0218     |
| 17/1      | 1.5         | 0.1                     | 7.0          | 5.9          | 0.0188                   | 0.0082                                | 0.0071     |
| 17/2      | 1.5         | 1                       | 9.1          | 8.6          | 0.0118                   | 0.0047                                | 0.0013     |
| 17/3      | 1.5         | 6                       | 10.4         | 10.3         | 0.0094                   | 0.0047                                | 0.0014     |
| 17/4      | 0.5         | 6                       | 10.8         | 10.7         | 0.0224                   | 0.0138                                | 0.0021     |

10

## 【0057】

## 実施例 18

出発物質として 8  $\mu m$  の粒子径を有するアルミニウム水和物原料を用いて、実施例 1 と同様に、実施例 18 を調製した。50 g のアルミニウム水和物を、100 ml の水ならびに異なる量の EDTA および NH<sub>3</sub> と、表 7 に示すように混合した。水熱処理を、攪拌しながら、190℃、12 パールの水蒸気圧で 24 時間行った。高純度のペーマイトが得られ、これを濾過し、洗浄し、乾燥させた。

## 【0058】

不純物の低減に関する結果を、以下の表 7 に示す。他に定義されていない場合、表 7 に表示された数値は、質量 % で示されている。処理前の原料（例えば、製錬グレードアルミナまたはアルミニウム水和物）の純度を、アルミニウム－水和物生成物と比較できるようにするために、すべての純度値を、 $Al_2O_3$  基準で報告する。

30

【表 7】

表 7

| 試料              | EDTA<br>[g] | NH <sub>3</sub><br>[ml] | 水熱処理前<br>のpH | 水熱処理後<br>のpH | Na <sub>2</sub> O<br>(%) | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub><br>(%) | CaO<br>(%) |
|-----------------|-------------|-------------------------|--------------|--------------|--------------------------|---------------------------------------|------------|
| アルミニウム<br>水和物原料 | -           | -                       | -            | -            | 0.2647                   | 0.0093                                | 0.0034     |
| 18/1            | 1.5         | 0.1                     | 3.4          | 5.3          | 0.0612                   | 0.0079                                | 0.0013     |
| 18/2            | 1.5         | 0.5                     | 6.1          | 6.2          | 0.0129                   | 0.0077                                | 0.0009     |
| 18/3            | 1.5         | 1                       | 9.1          | 9.2          | 0.0082                   | 0.0048                                | 0.0006     |
| 18/4            | 1.5         | 6                       | 10.3         | 10.1         | 0.0082                   | 0.0041                                | 0.0006     |

40

## 【0059】

材料の精製における原料混合物の pH（すなわち水熱処理前に測定）の重要性は、SGA およびアルミニウム水和物について、それぞれ表 6 および表 7 から分かる。8 以下の低

50

い pH の混合物は、ある程度まで精製されるが、重大な不純物、特に  $\text{Na}_2\text{O}$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 、および  $\text{CaO}$  を効果的に低減するためには、少なくとも 8、好ましくは少なくとも 9 の pH が必要である。さらに、表 6 は、異なる量の錯化剤の存在の効果を示す。すべての不純物の好ましいレベルへの最適な低減（すなわち、この例では  $< 0.010\%$  の  $\text{Na}_2\text{O}$ 、 $< 0.005\%$  の  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  および  $< 0.0015\%$  の  $\text{CaO}$ ）が、（アルミナ）原料と EDTA との質量比について  $50:1 \sim 20:1$  以内の範囲、任意に  $40:1 \sim 20:1$  に相当する、 $1.5\text{ g}$  の EDTA を添加する場合のみ認められる。

#### 【0060】

pH の関数としての不純物濃度の依存性を、上記の表 7 の試料 18 / 1 ~ 18 / 4 について図 3 にグラフで示す。 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  および  $\text{CaO}$  の不純物については、全体の濃度が低い  
10  
ため、異なるスケールが使用されている（図の右側）。EDTA を含有する原料混合物の pH が 8 超であることの非常に有利な効果は、図 3 から容易に分かる。

#### 【0061】

異なる量の EDTA の効果を、以下の表 8 に示すように、 $\text{Na}_2\text{O}$  不純物レベルへの効果について追加の実験 / 試料でさらに試験した。このように、EDTA の量は、試料 18 / 5 では  $0.5\text{ g}$  のみ、試料 18 / 6 では  $1\text{ g}$  のみであった。その結果、 $1.5\text{ g}$  の EDTA を有する試料 18 / 4 との比較から分かるように、 $\text{Na}_2\text{O}$  不純物レベルの低減は劣っていた。

#### 【表 8】

表 8

| 試料              | EDTA<br>[g] | $\text{NH}_3$<br>[ml] | 水熱処理前<br>の pH | 水熱処理後<br>の pH | $\text{Na}_2\text{O}$<br>(%) |
|-----------------|-------------|-----------------------|---------------|---------------|------------------------------|
| アルミニウム<br>水和物原料 | -           | -                     | -             | -             | 0.2647                       |
| 18/5            | 0.5         | 6                     | 10.8          | 10.6          | 0.0247                       |
| 18/6            | 1           | 6                     | 10.5          | 10.4          | 0.0129                       |
| 18/4            | 1.5         | 6                     | 10.3          | 10.1          | 0.0082                       |

10

20

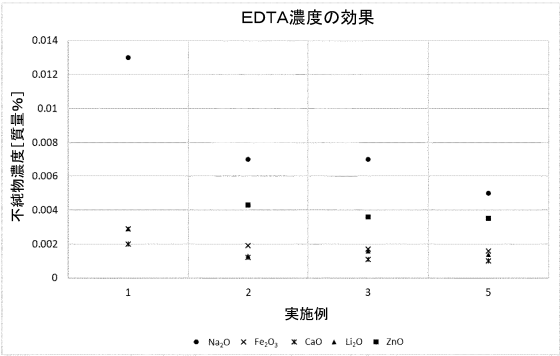
30

40

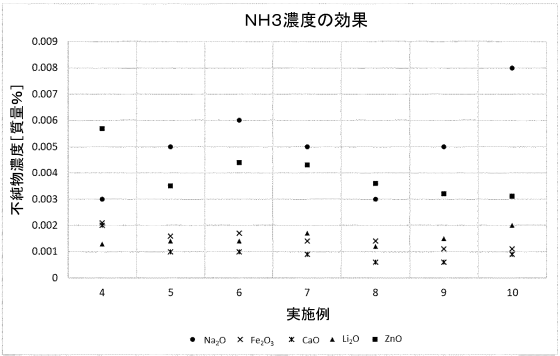
50

【図面】

【図 1】

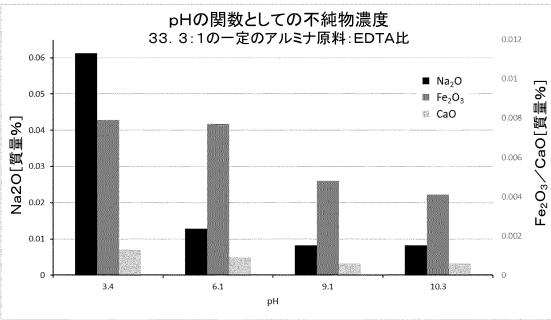


【図 2】



10

【図 3】



20

30

40

50

フロントページの続き

弁理士 前川 純一  
(74)代理人 100134315  
弁理士 永島 秀郎  
(74)代理人 100162880  
弁理士 上島 類  
(72)発明者 トビアス フリュー  
ドイツ連邦共和国 6 7 0 6 5 ルートヴィヒスハーフェン ギウリニシュトラーク 2 ケア・オブ  
アルマティス ゲー・エム・ペー・ハー  
(72)発明者 マリウス バウアー  
ドイツ連邦共和国 6 7 0 6 5 ルートヴィヒスハーフェン ギウリニシュトラーク 2 ケア・オブ  
アルマティス ゲー・エム・ペー・ハー  
(72)発明者 ヴォルフラム ヨット・リンゲンベアケ  
ドイツ連邦共和国 6 7 0 6 5 ルートヴィヒスハーフェン ギウリニシュトラーク 2 ケア・オブ  
アルマティス ゲー・エム・ペー・ハー  
審査官 森坂 英昭  
(56)参考文献 特開 2 0 0 0 - 0 8 6 2 3 5 ( J P , A )  
特開 2 0 0 3 - 0 0 2 6 4 2 ( J P , A )  
特表 2 0 0 4 - 5 0 5 1 7 3 ( J P , A )  
特開 2 0 1 5 - 1 6 0 7 5 5 ( J P , A )  
(58)調査した分野 (Int.Cl., D B 名)  
C 0 1 F 7 / 0 0 - 7 / 7 8 8