

【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 28 年 3 月 31 日 (2016.3.31)

【公表番号】特表 2015-509069 (P2015-509069A)

【公表日】平成 27 年 3 月 26 日 (2015.3.26)

【年通号数】公開・登録公報 2015-020

【出願番号】特願 2014-548113 (P2014-548113)

【国際特許分類】

C 0 1 B 33/40 (2006.01)

C 0 1 B 25/36 (2006.01)

C 0 1 B 25/37 (2006.01)

C 0 9 K 21/04 (2006.01)

【F I】

C 0 1 B 33/40

C 0 1 B 25/36 Z

C 0 1 B 25/37 Z

C 0 9 K 21/04

【誤訳訂正書】

【提出日】平成 28 年 2 月 10 日 (2016.2.10)

【誤訳訂正 1】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0 0 6 9

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0 0 6 9】

第四級アンモニウム塩は、トリメチルアルキルアンモニウム、ジメチルベンジルアルキルアンモニウム、ジメチルジアルキルアンモニウム、メチルベンジルジアルキルアンモニウム、ジメチルアルキル 2 - エチルヘキシルアンモニウムおよびメチルアルキルビス - 2 - ヒドロキシエチルアンモニウム塩（該アルキル鎖が少なくとも 12 の炭素原子を有し、獣脂または水素化獣脂のような、合成由来または天然由来成分である）を含む群から選択され；

ホスホニウム塩は、トリヘキシル（テトラデシル）ホスホニウム、トリブチル（テトラデシル）ホスホニウム、テトラブチルホスホニウムおよびテトラ n - オクチルホスホニウム塩を含む群から選択される。

【誤訳訂正 2】

【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】

フィロケイ酸塩の表面上で均質に堆積した無機リン酸塩粒子が階層的に秩序化された構造体の製造方法であって、

- a) 無機リン酸塩の前駆体化合物の酸性溶液を得る工程、
- b) 水性媒体を用いてフィロケイ酸塩粒子分散液を調製し、少なくとも 1 種の酸を添加して該フィロケイ酸塩分散液を酸性化することにより、酸性分散液を得る工程、
- c) 工程 a) で得られた酸性溶液と、工程 b) で得られた分散液を混合する工程、
- d) 攪拌しながら、フィロケイ酸塩粒子上に、対応する無機リン酸塩が堆積するのに必

要な pH 値に到達するまで、工程 c) で得られた混合物に塩基を添加し、フィロケイ酸塩表面に担持された、均質に分散したサブマイクロメートルサイズまたはナノメートルサイズの無機リン酸塩粒子が階層的に秩序化された構造体を生成する工程を含む、製造方法。

【請求項 2】

無機リン酸塩の前駆体化合物の酸性溶液が、少なくともリン酸を含有する酸性溶液中に少なくとも 1 種のカチオンの前駆体化合物を溶解させることにより得られる、請求項 1 に記載の製造方法。

【請求項 3】

工程 a) における無機リン酸塩の前駆体化合物の酸性溶液が、

a 1) 無機リン酸塩の少なくとも 1 種の前駆体カチオン化合物の溶液または分散液を調製する工程、および

a 2) 少なくともリン酸を含有する酸性溶液を、工程 a 1) で調製した溶液または分散液に添加する工程、

を用いることにより得られる、請求項 1 に記載の製造方法。

【請求項 4】

工程 d) の後に、

e) 固体 / 液体分離工程を用いることにより、水性分散液のフィロケイ酸塩表面に担持され、均質に分散したサブマイクロメートルサイズまたはナノメートルサイズの無機リン酸塩粒子が階層的に秩序化された構造体を分離し、次いで、溶液中の未堆積試薬を除去するために、水を用いて、階層的に秩序化された構造体を洗浄する工程をさらに含む、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 5】

工程 d) または e) の後に、

工程 f) フィロケイ酸塩表面に均質に分散し担持されたサブマイクロメートルサイズまたはナノメートルサイズの無機リン酸塩粒子が階層的に秩序化された構造体の表面を有機化するために、有機修飾剤またはカップリング剤を添加する工程を更に含む、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 6】

階層的に秩序化された構造体の固体 / 液体分離が、圧濾器、加圧濾過器、真空濾過器、回転真空濾過器およびヌーチェ濾過器から選択される濾過装置を用いる濾過工程または遠心分離工程により行われる、請求項 4 または 5 に記載の製造方法。

【請求項 7】

工程 d)、e) または f) の後に、

g) 大気圧乾燥、低圧下または真空下で乾燥を行うことにより、階層的に秩序化された構造体中に残留する水または水分を除去する工程を更に含む請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 8】

工程 g) の後に、

h) 粉状生成物を得るために、乾燥した階層的に秩序化された構造体を粉碎または解砕する工程をさらに含む、請求項 7 に記載の製造方法。

【請求項 9】

工程 e) または f) の後に、

i) 衝撃乾燥ミルを用いて階層的に秩序化された構造体を粉碎しながら乾燥する工程をさらに含む、請求項 4 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 10】

無機リン酸塩のカチオンが、Al、Zn、Cd、Fe、Sn、Mn、Ni、Co、B、Sb、W、Mo、Zr、Cu、Ga、In、Be、Mg、Ca、Sr、Ba、 NH_4^+ 、 H^+ 、Li、Na、K、Rb、Cs およびそれらの混合物からなる群から選択される、請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 11】

無機カチオンモル／リン酸モル比が 5 : 1 から 1 : 1 . 2 の間で変化する、請求項 1 ~ 1 0 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 1 2】

フィロケイ酸塩が層状または針状形態を備える 2 : 1 フィロケイ酸塩型である、請求項 1 ~ 1 1 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 1 3】

2 : 1 フィロケイ酸塩型が、二八面体スメクタイト、三八面体スメクタイト、セピオライト、アタパルジャイトまたはそれらの混合物である、請求項 1 2 に記載の製造方法。

【請求項 1 4】

スメクタイトが、モンモリロナイト、サボナイト、スチブンサイト、バイデライト、ノントロナイトまたはヘクトライト種あるいはそれらの混合物である、請求項 1 3 に記載の製造方法。

【請求項 1 5】

セピオライトが、レオロジ－的グレードセピオライトである、請求項 1 3 に記載の製造方法。

【請求項 1 6】

アタパルジャイトが、レオロジ－的グレードアタパルジャイトである、請求項 1 3 に記載の製造方法。

【請求項 1 7】

工程 b) における水性媒体を用いるフィロケイ酸塩分散液が、1 重量 % ~ 2 5 重量 % のフィロケイ酸塩濃度を有する、請求項 1 ~ 1 6 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 1 8】

工程 b) におけるフィロケイ酸塩分散液の p H が 3 未満の p H にて酸で調整される請求項 1 ~ 1 7 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 1 9】

p H を調整するのに使用する酸が、有機酸または無機酸である、請求項 1 8 に記載の製造方法。

【請求項 2 0】

酸が、リン酸、硫酸、塩酸、硝酸およびそれらの混合物から選択される、請求項 1 9 に記載の製造方法。

【請求項 2 1】

工程 b) におけるフィロケイ酸塩分散液が、高せん断にて、周速度が 1 0 m / s より速い条件下で分散される、請求項 1 ~ 2 0 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 2 2】

階層的に秩序化された構造体における無機リン酸塩／フィロケイ酸塩の重量比が、7 0 重量部の無機リン酸塩と 3 0 重量部のフィロケイ酸塩から、3 0 重量部の無機リン酸塩と 7 0 重量部のフィロケイ酸塩の範囲に変化する、請求項 1 ~ 2 1 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 2 3】

フィロケイ酸塩粒子が 1 5 0 μ m 未満の平均粒径を有する、請求項 1 ~ 2 2 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 2 4】

フィロケイ酸塩上に堆積し担持された無機リン酸塩粒子が、1 μ m 未満の粒径を有する、請求項 1 ~ 2 3 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 2 5】

工程 f) で用いる有機修飾剤が、第四級アンモニウム塩、四級ホスホニウム塩、ポリアミネート、ポリグリコール、シリコンオイル、ポリジメチルシロキサン、有機金属化合物、アミンおよびポリアミンならびにそれらの任意の組合せからなる群から選択される、請求項 5 ~ 2 4 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 2 6】

有機金属化合物が、3 - アミノプロピルトリエトキシシラン、3 - アミノプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、3 - メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、3 - メルカプトプロピルトリメトキシシラン、テトラエトキシシラン、n - オクチルトリメトキシシラン、n - オクチルトリエトキシシラン、n - ヘキサデシルトリメトキシシラン、N - 2 - アミノエチル - 3 - アミノプロピルトリメトキシシラン、3 - グリシジルオキシプロピルトリメトキシシラン、アルキルアミントリメトキシシラン、アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、N - (2 - アミノエチル) - 3 - アミノプロピル - メチルジメトキシシラン、ケチミノプロピルトリエトキシシラン、3, 4 - エポキシシクロヘキシルエチルトリメトキシシランおよびアミノプロピルトリメトキシシランを含む群から選択される有機シラン、

有機チタン酸塩、

有機ジルコン酸塩

およびそれらの任意の組み合わせ

を含む群から選択される、請求項 25 に記載の製造方法。

【請求項 27】

第四級アンモニウム塩が、トリメチルアルキルアンモニウム、ジメチルベンジルアルキルアンモニウム、ジメチルジアルキルアンモニウム、メチルベンジルジアルキルアンモニウム、ジメチルアルキル 2 - エチルヘキシルアンモニウムおよびメチルアルキルビス - 2 - ヒドロキシエチルアンモニウム塩(該アルキル鎖が少なくとも 12 の炭素原子を有し、天然由来または合成由来である)を含む群から選択され；

ホスホニウム塩は、トリヘキシル(テトラデシル)ホスホニウム、トリブチル(テトラデシル)ホスホニウム、テトラブチルホスホニウムおよびテトラ n - オクチルホスホニウム塩を含む群から選択される、請求項 25 に記載の製造方法。

【請求項 28】

階層的に秩序化された構造体におけるフィロケイ酸塩上に堆積し担持された無機リン酸塩が、

リン酸アルミニウム、

一塩基性リン酸アルミニウム、

二塩基性リン酸アルミニウム、

それらの組み合わせ

を含む群から選択される、請求項 1 ~ 27 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 29】

階層的に秩序化された構造体のフィロケイ酸塩がセピオライトである、請求項 27 または 28 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 30】

階層的に秩序化された構造体におけるアルミニウム / セピオライトリン酸塩の重量比が 50 : 50 である請求項 29 に記載の製造方法。

【請求項 31】

アルミニウム / セピオライトリン酸塩の重量比が 50 : 50 である階層的に秩序化された構造体が第四級アンモニウム塩で表面修飾される、請求項 30 に記載の製造方法。

【請求項 32】

第四級アンモニウム塩がジメチルジ(水素化獣脂)アンモニウム塩である、請求項 31 に記載の製造方法。

【請求項 33】

ジメチルジ(水素化獣脂)アンモニウム塩の含有量が、アルミニウム / セピオライトリン酸塩の階層的に秩序化された構造体の重量に対して 10 重量% ~ 30 重量%である、請求項 32 に記載の製造方法。

【請求項 34】

階層的に秩序化された構造体が、物理的な乾式または湿式方法を用いて、他の有機材料

粒子または無機材料粒子と混合される、請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 35】

フィロケイ酸塩の表面で均質に担持された少なくとも 1 種の無機カチオンのサブマイクロメートルサイズまたはナノメートルサイズリン酸塩粒子が階層的に秩序化された構造体。

【請求項 36】

無機リン酸カチオンが、Al、Zn、Cd、Fe、Sn、Mn、Ni、Co、B、Sb、W、Mo、Zr、Cu、Ga、In、Be、Mg、Ca、Sr、Ba、 $\text{NH}_4^+ \text{OH}^-$ 、Li、Na、K、Rb、Cs およびそれらの混合物からなる群から選択される、請求項 35 に記載のサブマイクロメートルサイズまたはナノメートルサイズ粒子が階層的に秩序化された構造体。

【請求項 37】

フィロケイ酸塩が、層状または針状形態を備える 2 : 1 フィロケイ酸塩型であり、二八面体スメクタイト、三八面体スメクタイト、セピオライト、アタパルジャイトまたはそれらの混合物から選択される、請求項 35 に記載のサブマイクロメートルサイズまたはナノメートルサイズ粒子が階層的に秩序化された構造体。

【請求項 38】

階層的に秩序化された構造体における無機リン酸塩およびフィロケイ酸塩の重量比が、70 重量部の無機リン酸塩と 30 重量部のフィロケイ酸塩から、30 重量部の無機リン酸塩と 70 重量部のフィロケイ酸塩の範囲で変化する、請求項 35 に記載のサブマイクロメートルサイズまたはナノメートルサイズ粒子の階層的に秩序化された構造体。

【請求項 39】

フィロケイ酸塩粒子の平均粒径が、150 μm 未満であり、フィロケイ酸塩に堆積し担持された無機リン酸塩粒子の平均粒径が 1 μm 未満である、請求項 35 に記載のサブマイクロメートルサイズまたはナノメートルサイズ粒子が階層的に秩序化された構造体。

【請求項 40】

請求項 35 ~ 39 のいずれか 1 項に記載の階層的に秩序化された構造体を含み、粒子が、有機修飾剤またはカップリング剤に結合した、サブマイクロメートルサイズまたはナノメートルサイズ粒子が階層的に秩序化された修飾構造体。

【請求項 41】

使用する有機修飾剤が、第四級アンモニウム塩、四級ホスホニウム塩、ポリアミネート、ポリグリコール、シリコンオイル、ポリジメチルシロキサン、有機金属化合物、アミンおよびポリアミンならびにそれらの任意の組合せからなる群から選択される、請求項 40 に記載のサブマイクロメートルサイズまたはナノメートルサイズ粒子が階層的に秩序化された修飾構造体。

【請求項 42】

階層的に秩序化された構造体または階層的に秩序化された修飾構造体におけるフィロケイ酸塩上に堆積し担持された無機リン酸塩が、

リン酸アルミニウム、
一塩基性リン酸アルミニウム、
二塩基性リン酸アルミニウム、
それらの組み合わせ

を含む群から選択される、請求項 35 または 40 に記載のサブマイクロメートルサイズまたはナノメートルサイズ粒子が階層的に秩序化された構造体。

【請求項 43】

階層的に秩序化された構造体または階層的に秩序化された修飾構造体のフィロケイ酸塩がセピオライトである、請求項 35 または 40 に記載のサブマイクロメートルサイズまたはナノメートルサイズ粒子が階層的に秩序化された構造体。

【請求項 44】

請求項 35 ~ 43 のいずれか 1 項に記載されたサブマイクロメートルサイズまたはナノ

メートルサイズ粒子が階層的に秩序化された構造体を含有する組成物。

【請求項 4 5】

熱可塑性物質、熱硬化性物質およびエラストマーから選択される 1 種以上のポリマーを含有することを特徴とする、請求項 4 4 に記載の組成物。

【請求項 4 6】

2 ~ 4 0 重量 % の階層的に秩序化された構造体または階層的に秩序化された修飾構造体を含有することを特徴とする、請求項 4 4 に記載の組成物。

【請求項 4 7】

燃焼が生じた場合に、難燃性およびセラミック化特性を有する有機材料を提供するための、請求項 3 5 ~ 3 9 のいずれか 1 項に記載の階層的に秩序化された構造体、または請求項 4 0 ~ 4 4 のいずれか 1 項に記載の階層的に秩序化された修飾構造体、あるいは、それらを含む組成物の使用。

【誤訳訂正 3】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0 0 3 4

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0 0 3 4】

クレー型粒子、例えば、繊維状形態のクレー（例えば、セピオライトなど）の水性懸濁液を調製することは、好ましくは高せん断下、機械的攪拌器を用い、1 ~ 2 5 重量 %、好ましくは 4 重量 % ~ 1 2 重量 % の濃度で水中にフィロケイ酸塩を分散することを含む方法を用いて行われる。フィロケイ酸塩の平均粒径は 1 5 0 μm より小さく、好ましくは 4 4 μm より小さい。本発明の特に有利な態様は、フィロケイ酸塩の粒径が 5 μm より小さい態様である。例えば、インパクトミルまたはボールミルを用いてクレー粒子サイズを減少させるためおよび研削するために通常用いる乾式または湿式粉碎法により得られるフィロケイ酸塩を使用できる。その構造を破壊することなくクレーの元素粒子を分離し、最大限にその外部表面を露出させることができる特別な湿式微粉化工程により得られたこれらのクレーの生成物を使用してもよい。これらの生成物の例には、EP 0 1 7 0 2 9 9、EP 0 4 5 4 2 2 および EP 0 1 7 0 2 9 9 に記載された方法により得られる、レオロジーグレードのセピオライトおよびアクパルジャイト生成物が含まれる。その後、工程 b) の分散液を得るために、分散液の pH が 3 より低くなるまで酸を添加してフィロケイ酸塩の分散液を酸性化する。あるいは、酸をフィロケイ酸塩の前に添加し、その後、フィロケイ酸塩を、好ましくは、高剪断条件下で、例えば、周速度が 1 0 m / s より速い条件下で、機械的攪拌器を使用して酸水溶液に分散させてもよい。添加される酸の量は、クレーまたはフィロケイ酸塩分散液の pH が 3 より低くなるのに十分な量でなければならない。例えば、pH を調整するのに使用する酸は、有機酸または無機酸、好ましくは 4 未満の p K a を有する無機酸である。例えば、酸は、リン酸、硫酸、塩酸、硝酸およびそれらの混合物から選択される。