

(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
2010 年 4 月 15 日(15.04.2010)



(10) 国際公開番号
WO 2010/041648 A1

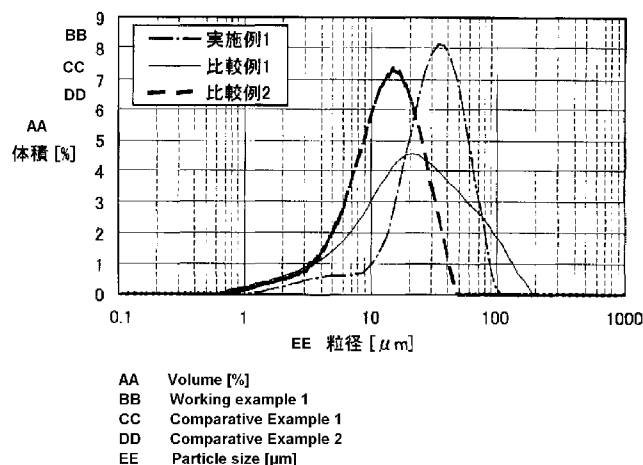
- (51) 国際特許分類:
C01G 23/00 (2006.01) C04B 35/46 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/067388
- (22) 国際出願日: 2009 年 10 月 6 日(06.10.2009)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2008-260240 2008 年 10 月 7 日(07.10.2008) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友化学株式会社(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目 2 7 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 鈴木 敬一郎(SUZUKI, Keiichiro) [JP/JP]; 〒7920871 愛媛県新居浜市八幡 3-3-3 Ehime (JP). 鳴海 雅之(NARUMI, Masayuki) [JP/JP]; 〒7920811 愛媛県新居浜市庄内町 1-13-17-301 Ehime (JP).
- (74) 代理人: 植木 久一, 外(UEKI, Kyuichi et al.); 〒5300003 大阪府大阪市北区堂島 2 丁目 1 番 1 6 号 フジタ東洋紡ビル 9 階 Osaka (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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (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, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: ALUMINUM TITANATE CERAMIC POWDER MANUFACTURING METHOD

(54) 発明の名称: チタン酸アルミニウム系セラミックス粉末の製造方法

【図2】



(57) Abstract: Provided is a method wherein the formation of microparticle and coarse particle components is suppressed and aluminum titanate ceramic powder having a very sharp particle size distribution can be manufactured efficiently and with good yield. The aluminum titanate ceramic powder manufacturing comprises a process for keeping a precursor mixture that comprises titanium source powder, aluminum source powder and silicon source powder at a temperature in the range of 1100-1350°C for 3 h or more, a process for raising the temperature to 1400°C or higher and baking at the same temperature the precursor mixture that was held at the previous temperature to obtain baked aluminum titanate ceramic, and a process for grinding and classifying the baked aluminum titanate ceramic. The grinding and classifying process is provided with a process (A) wherein powder smaller than a prescribed particle size is obtained by grinding the baked aluminum titanate ceramic and then classifying the ground product, and a process (B) wherein powder smaller than a prescribed particle size is obtained by regrinding the remainder of the ground product and then classifying the ground product obtained.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2010/041648 A1



添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

微粒成分および粗粒成分の生成が抑えられ、非常にシャープな粒径分布を有するチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を、効率的に歩留まり良く製造することができる方法を提供することを目的とする。本発明は、チタン源粉末、アルミニウム源粉末およびシリコン源粉末を含む前駆体混合物を、 $1100^{\circ}\text{C}\sim 1350^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で3時間以上保持する工程と、 1400°C 以上の温度に昇温し同温度で前記保持後の前駆体混合物の焼成を行ない、チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を得る工程と、チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を粉砕し、分級する工程とを含み、前記粉砕および分級をする工程は、チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を粉砕した後、前記粉砕物を分級することにより、所定粒度以下の粉末を得る工程(A)と、前記粉砕物の残りを再度粉砕した後、得られた粉砕物を分級することにより、所定粒度以下の粉末を得る工程(B)とを備える、チタン酸アルミニウム系セラミックス粉末の製造方法である。

明 細 書

発明の名称：

チタン酸アルミニウム系セラミックス粉末の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、チタン酸アルミニウム系セラミックス粉末の製造方法に関し、より詳しくは、チタン源粉末、アルミニウム源粉末およびシリコン源粉末を含む前駆体混合物を焼成し、これを粉砕及び分級してチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を製造する方法に関する。

背景技術

[0002] チタン酸アルミニウムは、耐熱性に優れたセラミックスとして知られており、たとえば特許文献1には、粉末状のチタン源、アルミニウム源を混合し、得られた前駆体混合物を焼成する方法が開示されている。かかる方法により得られるチタン酸アルミニウム系セラミックスは通常、塊状であるが、これを粉砕することにより粉末を得ることができる。得られたチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末は、水などの液体成分を加えて粘土状とした後、押出成形法などの方法により成形体にすることができる。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：国際公開第05／105704号パンフレット

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] しかし、チタン酸アルミニウム系セラミックスは、粉砕の際に微細化し易いことから、粉砕により得られたチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末には、多くの微粒成分が含まれている。このため、粉砕後のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末は通常、篩い分けなどの分級操作により微粒成分および粗粒成分を取り除いてから成形に用いられている。

[0005] 取り除かれた微粒成分は、押出成形品製造時に得られるセラミックス成形

体の細孔を閉塞することが知られている。また、粗粒成分は、押出機を詰まらせることがあり、粗粒成分からは、薄い壁面を有する成形品が得られないという不具合がある。したがって、取り除かれたチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末の微粒成分および粗粒成分は、そのままでは成形に用いることができず、全て無駄になっているのが現状である。

[0006] 本発明の目的は、微粒成分および粗粒成分の生成が抑えられ、非常にシャープな粒径分布を有するチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を、効率的に歩留まり良く製造することができる方法を提供することである。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明は、チタン源粉末、アルミニウム源粉末およびシリコン源粉末を含む前駆体混合物を、 $1100^{\circ}\text{C}\sim 1350^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で3時間以上保持する工程と、 1400°C 以上の温度に昇温し、同温度で前記保持後の前駆体混合物の焼成を行なうことにより、チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を得る工程と、前記チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を粉砕し、分級する工程とを含み、ここで、前記チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を粉砕し、分級する工程は、前記チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体に衝撃を加えて粉砕した後、得られた粉砕物を分級することにより、所定粒度以下のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を得る工程（A）と、前記粉砕物の残りに衝撃を加えて再度粉砕した後、得られた粉砕物を分級することにより、所定粒度以下のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を得る工程（B）と、を備える、チタン酸アルミニウム系セラミックス粉末の製造方法を提供する。本発明において、工程（B）は、2回以上繰り返されることが好ましい。

[0008] 工程（B）が2回以上繰り返されるとき、2回目以降の工程（B）における「前記粉砕物の残り」は、「前回の工程（B）における分級で得られた粉砕物の残り」と読み替えられる。

[0009] 本発明の方法において、粉砕によって生じた所定粒度以下のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末をただちに分級して粉砕領域から排出しつつ、

粉碎領域に存在する粉碎物の残りについて粉碎を継続することで、前記工程（Ａ）及び工程（Ｂ）を連続的に行うことが好ましく、また、前記粉碎および分級をする工程は、分級機構内蔵型粉碎機によって行うことが好ましい。

[0010] 上記工程（Ａ）および工程（Ｂ）で得られる所定粒度以下のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末は、最大粒径が $110\mu\text{m}$ 以下のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末であることが好ましい。また、上記前駆体混合物は、マグネシウム源粉末をさらに含んでもよい。

[0011] チタニア換算のチタン源粉末の使用量は、チタニア換算のチタン源粉末の使用量、アルミナ換算のアルミニウム源粉末の使用量、およびマグネシア換算のマグネシウム源粉末の使用量の合計量 100 質量部あたり、 20 質量部以上 60 質量部以下であることが好ましい。また、アルミナ換算のアルミニウム源粉末の使用量は、チタニア換算のチタン源粉末の使用量、アルミナ換算のアルミニウム源粉末の使用量、およびマグネシア換算のマグネシウム源粉末の使用量の合計量 100 質量部あたり、 30 質量部以上 70 質量部以下であることが好ましい。さらに、マグネシア換算のマグネシウム源粉末の使用量は、チタニア換算のチタン源粉末の使用量、アルミナ換算のアルミニウム源粉末の使用量、およびマグネシア換算のマグネシウム源粉末の使用量の合計量 100 質量部あたり、 0.1 質量部以上 10 質量部以下であることが好ましい。

[0012] 本発明は、上記のいずれかの方法により得られたチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末も包含する。前記チタン酸アルミニウム系セラミックス粉末は、粒径 $10\mu\text{m}$ 以下の微粒成分の含有量が 20 体積％以下であり、かつ、粒径 $70\mu\text{m}$ 以上の粗粒成分の含有量が 10 体積％未満であることが好ましい。

発明の効果

[0013] 本発明によれば、微粒成分および粗粒成分を含まない非常にシャープな粒径分布を有するチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を効率的に製造することができる。すなわち、本発明の製造方法によれば、微粒成分および粗

粒成分などの成形粉末として不適な成分の発生が抑制されており、成形粉末として好適な粒径分布を有するチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を歩留まり良く製造することができる。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]本発明において好適に用いられる分級機構内蔵型の粉砕装置の一例を示す概略断面図である。

[図2]実施例1、比較例1および比較例2で得られたチタン酸アルミニウムマグネシウム粉末の粒径分布スペクトルである。

発明を実施するための形態

[0015] 本発明のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末の製造方法は、下記の工程を含む。

(1) チタン源粉末、アルミニウム源粉末およびシリコン源粉末を含む前駆体混合物を、 $1100^{\circ}\text{C}\sim 1350^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で3時間以上保持する工程（保持工程）。

(2) 1400°C 以上の温度に昇温し、同温度で前記保持後の前駆体混合物の焼成を行なうことにより、チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を得る工程（焼成工程）。

(3) 前記チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を粉砕し、分級する工程（粉砕・分級工程）。

[0016] (1) 保持工程

本工程では、チタン源粉末、アルミニウム源粉末およびシリコン源粉末を含む前駆体混合物を $1100^{\circ}\text{C}\sim 1350^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で3時間以上保持する。前記前駆体混合物は、チタン源粉末、アルミニウム源粉末、およびシリコン源粉末を混合することにより得ることができる。この前駆体混合物は、焼成されることによりチタン酸アルミニウム系セラミックスに導かれるものである。

[0017] 前駆体混合物を構成するチタン源粉末とは、チタン酸アルミニウム系セラミックスを構成するチタン成分となる物質の粉末であり、かかる物質として

は、たとえば酸化チタンの粉末が挙げられる。酸化チタンとしては、たとえば、酸化チタン(IV)、酸化チタン(III)、酸化チタン(II)などが挙げられ、酸化チタン(IV)が好ましく用いられる。酸化チタンは(IV)は結晶性であってもよく、アモルファスであってもよい。酸化チタン(IV)が結晶性である場合、結晶型としてはアナターゼ型、ルチル型、ブルッカイト型などが挙げられ、好ましくは、アナターゼ型、ルチル型である。

[0018] 本発明で用いられるチタン源粉末は、空气中で焼成することによりチタニア(酸化チタン)に導かれる物質の粉末であってもよい。かかる物質としては、たとえばチタニウム塩、チタニウムアルコキシド、水酸化チタニウム、窒化チタン、硫化チタン、チタンなどが挙げられる。

[0019] チタニウム塩として具体的には、三塩化チタン、四塩化チタン、硫化チタン(IV)、硫化チタン(VI)、硫酸チタン(IV)などが挙げられる。チタニウムアルコキシドとして具体的には、チタン(IV)エトキシド、チタン(IV)メトキシド、チタン(IV)tert-ブトキシド、チタン(IV)イソブトキシド、チタン(IV)n-プロポキシド、チタン(IV)テトライソプロポキシド、および、これらのキレート化物などが挙げられる。

[0020] チタン源粉末としては、酸化チタン粉末が好ましく用いられ、より好ましくは、酸化チタン(IV)粉末である。

[0021] アルミニウム源粉末とは、チタン酸アルミニウム系セラミックスを構成するアルミニウム成分となる物質の粉末であり、たとえば、アルミナ(酸化アルミニウム)の粉末が挙げられる。アルミナは結晶性であってもよく、アモルファスであってもよい。アルミナが結晶性である場合、その結晶型は、 γ 型、 δ 型、 θ 型、 α 型などが挙げられ、好ましくは α 型のアルミナが用いられる。

[0022] 本発明で用いられるアルミニウム源粉末は、空气中で焼成することによりアルミナに導かれる物質の粉末であってもよい。かかる物質としては、たとえばアルミニウム塩、アルミニウムアルコキシド、水酸化アルミニウム、金属アルミニウムなどが挙げられる。

- [0023] アルミニウム塩は、無機酸の塩（無機塩）であってもよいし、有機酸の塩（有機塩）であってもよい。アルミニウム無機塩として具体的には、たとえば、硝酸アルミニウム、硝酸アンモニウムアルミニウムなどの硝酸塩；炭酸アンモニウムアルミニウムなどの炭酸塩などが挙げられる。アルミニウム有機塩としては、たとえば、蓚酸アルミニウム、酢酸アルミニウム、ステアリン酸アルミニウム、乳酸アルミニウム、ラウリン酸アルミニウムなどが挙げられる。
- [0024] また、アルミニウムアルコキシドとして具体的には、たとえば、アルミニウムイソプロポキシド、アルミニウムエトキシド、アルミニウム *sec*-ブトキシド、アルミニウム *tert*-ブトキシドなどが挙げられる。
- [0025] 水酸化アルミニウムは結晶性であってもよく、アモルファスであってもよい。水酸化アルミニウムが結晶性である場合、その結晶型は、たとえば、ギブサイト型、バイヤライト型、ノロソランダイト型、ベーマイト型、擬ベーマイト型などが挙げられる。アモルファスの水酸化アルミニウムとしては、たとえば、アルミニウム塩、アルミニウムアルコキシドなどのような水溶性アルミニウム化合物の水溶液を加水分解して得られるアルミニウム加水分解物も挙げられる。
- [0026] アルミニウム源粉末としては、アルミナ粉末が好ましく用いられ、より好ましくは、 α 型のアルミナ粉末である。
- [0027] シリコン源粉末は、シリコン成分となってチタン酸アルミニウム系セラミックスに含まれる物質の粉末であって、たとえば、二酸化ケイ素、一酸化ケイ素などの酸化ケイ素（シリカ）の粉末が挙げられる。
- [0028] 本発明で用いられるシリコン源粉末は、空气中で焼成することによりシリカに導かれる物質の粉末であってもよい。かかる物質としては、たとえば、ケイ酸、炭化ケイ素、窒化ケイ素、硫化ケイ素、四塩化ケイ素、酢酸ケイ素、ケイ酸ナトリウム、オルトケイ酸ナトリウム、ガラスフリットなどが挙げられ、好ましくは、工業的に入手が容易である点で、ガラスフリットなどである。

- [0029] ガラスフリットとは、珪砂、長石、石灰等からなる原料混合物を熔解し、得られた熔解物を急冷して得られるガラスのフレーク又は粉末をいう。
- [0030] シリコン源粉末として、シリコン源とアルミニウム源とを兼ねた物質の粉末を用いることもできる。このような物質としては、たとえば、アルカリ長石などの長石が挙げられる。
- [0031] 前駆体混合物は、マグネシウム源粉末を含有していてもよく、この場合、チタン酸アルミニウム系セラミックスとして、チタン酸アルミニウムマグネシウムを得ることができる。マグネシウム源粉末とは、チタン酸アルミニウム系セラミックスを構成するマグネシウム成分となる物質の粉末であり、たとえば、マグネシア（酸化マグネシウム）の粉末が挙げられる。
- [0032] マグネシウム源粉末は、空气中で焼成することによりマグネシアに導かれる物質の粉末であってもよい。かかる物質としては、たとえば、マグネシウム塩、マグネシウムアルコキシド、水酸化マグネシウム、窒化マグネシウム、金属マグネシウムなどが挙げられる。
- [0033] マグネシウム塩として具体的には、塩化マグネシウム、過塩素酸マグネシウム、リン酸マグネシウム、ピロリン酸マグネシウム、蓚酸マグネシウム、硝酸マグネシウム、炭酸マグネシウム、酢酸マグネシウム、硫酸マグネシウム、クエン酸マグネシウム、乳酸マグネシウム、ステアリン酸マグネシウム、サリチル酸マグネシウム、ミリスチン酸マグネシウム、グルコン酸マグネシウム、ジメタクリル酸マグネシウム、安息香酸マグネシウムなどが挙げられる。
- [0034] マグネシウムアルコキシドとして具体的には、マグネシウムメトキシド、マグネシウムエトキシドなどが挙げられる。
- [0035] マグネシウム源粉末として、マグネシウム源とアルミニウム源とを兼ねた物質の粉末を用いることもできる。このような物質としては、たとえば、マグネシアスピネル（ MgAl_2O_4 ）が挙げられる。
- [0036] チタン源粉末の使用量、アルミニウム源粉末の使用量、マグネシウム源粉末の使用量、およびシリコン源粉末の使用量は、それぞれに含まれるのと同

量のTi、Al、Mg、またはSiを含有する、チタニア〔TiO₂〕の量、アルミナ〔Al₂O₃〕の量、マグネシア〔MgO〕の量、およびシリカ〔SiO₂〕の量に換算した結果に基づいて決定される。チタニア換算のチタン源粉末の使用量は、チタニア換算のチタン源粉末の使用量、アルミナ換算のアルミニウム源粉末の使用量およびマグネシア換算のマグネシウム源粉末の使用量の合計量（以下、全チタニア・アルミナ・マグネシア量と呼ぶ）100質量部あたり、通常、20～60質量部であり、好ましくは30～50質量部である。アルミナ換算のアルミニウム源粉末の使用量は、全チタニア・アルミナ・マグネシア量100質量部あたり、通常、30～70質量部であり、好ましくは40～60質量部である。また、シリカ換算のシリコン源粉末の使用量は、全チタニア・アルミナ・マグネシア量100質量部あたり、通常、0.1～20質量部であり、好ましくは1～10質量部である。マグネシア換算のマグネシウム源粉末の使用量は、全チタニア・アルミナ・マグネシア量の100質量部あたり、通常、0.1～10質量部であり、好ましくは0.5～5質量部である。

[0037] 前駆体混合物は、たとえば、チタン源粉末、アルミニウム源粉末、シリコン源粉末および任意で使用されるマグネシウム源粉末を混合することにより得ることができる。混合は、乾式で行なってもよいし、湿式で行なってもよい。混合の順序は特に限定されるものではなく、たとえば、これらの原料粉末を同時に混合することができる。

[0038] 上記原料粉末を混合する際には、通常、粉砕容器内で、粉砕メディアと共に攪拌することにより、粉砕しながら混合する。粉砕容器としては、通常、ステンレス鋼などの金属材料で構成されたものが用いられ、内表面がフッ素樹脂、シリコーン樹脂、ウレタン樹脂などでコーティングされていてもよい。粉砕メディアとしては、たとえば、粒子径1mm～100mm、好ましくは5mm～50mmのアルミナビーズ、ジルコニアビーズなどが挙げられる。

[0039] 攪拌は、たとえば、上記原料粉末および粉砕メディアを投入した粉砕容器

を振動させたり、回転させることにより行なうことができる。粉砕容器を振動または回転させることにより、原料粉末が粉砕メディアと共に攪拌されて混合されると共に、粉砕される。粉砕容器を振動または回転させるためには、たとえば、振動ミル、ボールミル、遊星ミルなどのような通常の粉砕機を用いることができ、工業的規模での実施が容易である点で、振動ミルが好ましく用いられる。混合は、連続式で行なってもよいし、回分式で行なってもよいが、工業的規模での実施が容易である点で、連続式で行なうことが好ましい。混合および粉砕に要する時間は、通常、1分～6時間、好ましくは1.5分～2時間である。

[0040] 混合および粉砕にあたっては、分散剤、粉砕助剤、解膠剤などの添加剤を加えてもよい。粉砕助剤としては、たとえば、メタノール、エタノール、プロパノールなどの1価アルコール類；プロピレングリコール、ポリプロピレングリコール、エチレングリコールなどの2価アルコール類；トリエタノールアミンなどのアミン類；パルミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸などの高級脂肪酸類；カーボンブラック、グラファイトなどの炭素材料などが挙げられる。これらはそれぞれ単独または2種以上を組合わせて用いられる。

[0041] 添加剤を用いる場合、その合計使用量は、原料粉末の合計使用量、すなわちチタン源粉末、アルミニウム源粉末、シリコン源粉末およびマグネシウム源粉末の合計使用量100質量部に対して、通常、0.1～10質量部、好ましくは0.5～5質量部、さらに好ましくは0.75～2質量部である。

[0042] 添加剤を用いた場合、その性質によっては混合後の前駆体混合物から添加剤を除去してもよい。たとえば、大気中で加熱して焼失させることにより、添加剤を除去してもよい。このときの加熱温度は、通常500℃以下である。

[0043] 保持工程では、上記のような前駆体混合物を1100℃～1350℃の温度範囲で3時間以上保持する。このような保持工程を経て、焼成を行なうことにより、緻密なチタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を得ることができ、これにより、チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体の粉砕時に

おける微粒成分の生成を抑制することができる。

[0044] 1100～1350℃の温度範囲で保持するのは、熱膨張係数の小さなチタン酸アルミニウム系セラミックスを1500℃未満の焼成温度で製造するためである。

[0045] 前駆体混合物（チタン源粉末、アルミニウム源粉末、シリコン源粉末および任意で添加されるマグネシウム源粉末の混合物）は、粉末状のまま1100℃～1350℃の温度範囲に昇温し、同温度範囲を保持してもよいし、前駆体混合物を成形して得られる成形体を上記温度範囲に保持してもよい。前駆体混合物を成形する方法としては、通常の方法、たとえば、一軸プレス機、打錠機などを用いて成形型内で加圧する方法、前駆体混合物に水などの液体成分を加えた後、造粒機、押出機などを用いて成形し、乾燥する方法などが挙げられる。

[0046] 前駆体混合物を1100℃～1350℃の温度範囲で保持する時間は、3時間以上であり、好ましくは4時間以上、さらに好ましくは6時間以上である。また、保持時間は通常、24時間以下である。1100℃～1350℃の温度範囲に保持する間、同温度範囲を外れない限り、前駆体混合物を一定温度に保持してもよいし、徐々に昇温してもよいし、徐々に降温してもよいし、昇温と降温を交互に繰り返してもよい。昇温または降温する場合の昇温速度または降温速度は、前駆体混合物を同温度範囲に保持し易い点で、通常100℃/時間以下、好ましくは80℃/時間以下、さらに好ましくは50℃/時間以下である。

[0047] 上記温度範囲に昇温する際、および上記温度範囲で保持する際の雰囲気は、通常、大気中であるが、用いる原料粉末、すなわちチタン源粉末、アルミニウム源粉末、シリコン源粉末およびマグネシウム源粉末の種類や使用量比によっては、窒素ガス、アルゴンガスなどの不活性ガス中であってもよいし、一酸化炭素ガス、水素ガスなどのような還元性ガス中であってもよい。また、水蒸気分圧を低くした雰囲気中で昇温および保持してもよい。

[0048] 上記温度範囲への昇温および保持は、通常、管状電気炉、箱型電気炉、ト

ンネル炉、遠赤外線炉、マイクロ波加熱炉、シャフト炉、反射炉、ロータリー炉、ローラーハース炉などの通常の加熱炉を用いて行なわれる。

[0049] (2) 焼成工程

本工程において、上記保持工程を経た前駆体混合物を、1400℃以上、通常は1500℃未満の温度に昇温し、同温度で焼成することにより、チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を得る。焼成は、通常、上記保持工程に引き続き上記焼成温度に昇温することにより行なわれ、上記保持工程と同様の雰囲気中で、同様の加熱炉を用いて行なわれる。

[0050] 焼成に要する時間は、上記保持工程を経た前駆体混合物がチタン酸アルミニウム系セラミックスに遷移するのに十分な時間であればよく、前駆体混合物の量、焼成炉の形式、焼成温度、焼成雰囲気などにより異なるが、通常は10分～24時間である。

[0051] 以上のようにして、チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を得ることができる。このようなチタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体は、前駆体混合物を粉末状のまま焼成した場合には通常、塊状であり、また、前駆体混合物の成形体を焼成した場合には、成形直後の成形体の形状をほぼ維持した形状である。

[0052] (3) 粉砕・分級工程

本工程において、上記チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を粉砕し、分級し、チタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を得る。本発明の製造方法において、粉砕・分級工程は、以下の工程を備える。

(A) チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体に衝撃を加えて粉砕した後、得られた粉砕物を分級することにより、所定粒度以下のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を得る工程、および、

(B) 該粉砕物の残りに衝撃を加えて再度粉砕した後、得られた粉砕物を分級することにより、所定粒度以下のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を得る工程。

[0053] 上記工程(A)および(B)で得られる所定粒度以下のチタン酸アルミニ

ウム系セラミックス粉末を合わせたものが、目的のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末である。上記工程（Ａ）および（Ｂ）を備える粉砕及び分級によれば、所定粒度以下の成分のみを選別、回収することができるので、粗粒成分を含まないチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を得ることができる。しかも、工程（Ｂ）における再度の粉砕及び分級により、工程（Ａ）の粗粒成分を所定粒度以下の成分にして回収するため、成形粉末として不適な粗粒成分の生成を高度に抑制することができる。本発明においては、上記工程（Ｂ）は、２回以上繰り返されることが好ましい。工程（Ｂ）を繰り返し回数が多ほど、目的とするチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末の収量を上げることができ、最終的に残る粗粒成分の量を低減することができる。

[0054] 工程（Ｂ）が２回以上繰り返されるとき、２回目以降の工程（Ｂ）における「前記粉砕物の残り」は、「前回の工程（Ｂ）における分級で得られた粉砕物の残り」と読み替えられる。

[0055] また、本工程では、粉砕によって生じた所定粒度以下のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末をただちに分級して粉砕領域から排出しつつ、粉砕領域に存在する粉砕物の残りについて粉砕を継続することで、前記工程（Ａ）及び工程（Ｂ）を連続的に行うことが好ましい。粉砕によって生じた微細な粉末が粉砕領域に滞留すると、その後の粉砕に悪影響を与えるのに比べ、粉砕によって生じた所定粒度以下のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を直ちに粉砕領域から排出すると、引き続き行われる残りの粉砕物の粉砕を効率的に行うことができる。

[0056] さらに、粉砕・分級工程に供される、上記保持工程および焼成工程を経て得られるチタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体は緻密であるため、上記粉砕及び分級によっても、微粒成分が生じにくい。したがって、本発明の製造方法によれば、微粒成分および粗粒成分を含まない、粒径分布がシャープなチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を得ることができる。

[0057] また、上記工程（Ａ）および（Ｂ）において回収される所定粒度以下のチ

タン酸アルミニウム系セラミックス粉末は、本発明により得られるチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末の成形のし易さおよび得られる成形品の品質等を考慮すると、最大粒径が $110\mu\text{m}$ 以下である粉末であることが好ましい。

[0058] 上記のような工程（A）および工程（B）を実施するための粉碎・分級装置として、図1に示される分級機構内蔵型の粉碎装置を好適に用いることができる。図1に示される粉碎装置は、気体導入口101を下方に有し、気体および粉末の排出口102を上方に有する本体100を備える。本体100の内部は、筒状体103によって、外側の粉碎領域200と、内側の分級領域300とに区分されている。また、本体100には、粉碎領域200に通じる、粉碎及び分級の対象となる物質を供給するための投入口104が設けられている。

[0059] 粉碎領域200には、粉碎を行なうための、端部に粉碎ハンマ202を備える粉碎用回転体201が設けられている。より具体的には、複数の粉碎ハンマ202が、粉碎用回転体201の外周部に、粉碎領域200の内壁に形成されたライナ203と間隙を隔てるようにして備え付けられている。粉碎用回転体201は、その中心軸を中心として回転自在である。また、粉碎領域200は、その下方で気体導入口101に連通している。

[0060] 分級領域300は、粉碎領域200にて粉碎され、気体導入口101から導入される気体の気流によって移動した粉末を微粉と粗粉とに分級し、微粉のみを通過させるための領域であり、排出口102に連通している。分級領域300には、その中心軸を中心として回転自在な分級用回転体301と、分級用回転体301の外周部に、たとえば傾斜角度6度程度で立設された複数の分級用ファン302とからなる分級機構を備えている。分級機構は、分級された微粉のみを通過させ、排出口102から排出できるように配置されている。

[0061] このような粉碎装置を用いたチタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体の粉碎及び分級において、投入口104から投入されたチタン酸アルミニウ

ム系セラミックス焼成体は、まず、粉碎領域 200 に導入され、粉碎される。粉碎は、粉碎用回転体 201 を回転され、粉碎ハンマ 202 により衝撃を加えることによりなされる。ここで、気体導入口 101 からは、空気あるいは不活性ガス等の気体が、本体 100 内部に導入されており、該気体は粉碎領域 200 の底から分級領域 300 の底を通して、分級用ファン 302 を横切って排出口 102 へと流れるか、または粉碎領域 200 の底から分級領域 300 の外側側面を通り、分級領域 300 の上方から下方へと流れて分級ファン 302 を横切り、排出口 102 へと流れる。したがって、粉碎された粉末は、該気体により分級領域 300 に流入する。分級領域 300 において、粉碎された粉末は、分級領域 300 から排出口 102 に向かう気流の搬送力および分級用回転体 301 によって付与される遠心力の差によって微粉と粗粉とに分離される。すなわち、気流による搬送力の方が大きく作用する微粉は、分級用ファン 302 を通過して排出口 102 から排出され、回収される。一方、遠心力の方が大きく作用する粗粉は、分級用ファン 302 を通過することなく、筒状体 103 の下方から粉碎領域 200 に戻る。この粉碎領域 200 に戻った粗粉は、再度粉碎された後、分級領域 300 にて再度分級される。本装置では、このような粉碎および分級操作を繰り返し行なうことが可能である。

[0062] 図 1 に示される構成を備える粉碎装置としては、ホソカワミクロン（株）製の ACM パルペライザ（たとえば、ACM パルペライザ ACM-10）を挙げることができ、本発明に好適に適用することができる。

[0063] 本発明により得られるチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末は、微粒成分および粗粒成分を含まないシャープな粒径分布を有するものである。具体的には、本発明によれば、たとえば、粒径が $10\ \mu\text{m}$ 以下の微粒成分の含有量が 20 体積%以下、好ましくは 10 体積%以下であり、粒径 $70\ \mu\text{m}$ 以上の粗粒成分の含有量が 10 体積%未満、好ましくは 5 体積%未満であるチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を得ることができる。また、本発明により得られるチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末の平均粒子径（メ

ディアン径)は、好ましくは $20\mu\text{m}$ 以上であり、最大粒径は、好ましくは $110\mu\text{m}$ 以下である。

[0064] 保持工程の条件(保持時間、保持温度など)や上記分級機構内蔵型の粉砕装置における粉砕用回転体および分級用回転体の回転数、気体の流量などの調整により、チタン酸アルミニウム系セラミックス粉末の粒径特性(粒径分布、平均粒子径および最大粒径)を制御することが可能である。

[0065] 本発明により得られるチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末は、微粒成分および粗粒成分を含まないシャープな粒径分布を有するものであるため、セラミックス成形体材料として好適に適用することができる。セラミックス成形体としては、たとえば、ルツボ、セッター、コウ鉢、炉材などの焼成炉用治具、ディーゼルエンジン、ガソリンエンジンなどの内燃機関の排気ガス浄化に用いられるフィルターや触媒担体、発電装置の部品、基板、コンデンサーなどの電子部品などが挙げられる。

実施例

[0066] 以下、本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0067] <実施例1>

酸化チタン(IV)粉末〔デュポン(株)、「R-900」〕38.1質量部、 α アルミナ粉末〔住友化学(株)製、「AES-12」〕52.5質量部、マグネシアスピネル粉末5.7質量部、長石粉末〔福島長石、 SiO_2 換算のシリコン含有量は72質量%、 Al_2O_3 換算のアルミニウム含有量は15質量%〕3.7質量部を混合し、前駆体混合物を得た。

[0068] この前駆体混合物をアルミナルツボに入れ、大気中、 300°C /時間の速度で 1100°C まで昇温し、 $1100\sim 1300^\circ\text{C}$ で5時間保持した後、さらに昇温速度 300°C /時間で 1430°C まで昇温し、同温度で3.75時間保持することにより焼成して、チタン酸アルミニウムマグネシウム焼成体を得た。

[0069] 次に、このチタン酸アルミニウムマグネシウム焼成体を、図1に示される

構成を備える分級機構内蔵型の粉碎装置〔ホソカワミクロン（株）製のACMパルベライザACM-10〕を用いて、粉碎用回転体の回転数3000rpm、分級用回転体の回転数2000rpm、気体（空気）の流量15Nm³/minの条件で、粉碎及び分級することによりチタン酸アルミニウムマグネシウム粉末を得た。得られたチタン酸アルミニウムマグネシウム粉末の粒径特性を表1に示す。また、粒径分布スペクトルを図2に示す。なお、表1に示される粒径特性および図1に示される粒径分布スペクトルは、シスメックス株式会社製「マスターサイザー2000」を用いて測定した。

[0070] <実施例2>

1100～1300℃での保持時間を6.7時間としたこと以外は、実施例1と同様にして、チタン酸アルミニウムマグネシウム粉末を得た。得られたチタン酸アルミニウムマグネシウム粉末の粒径特性を表1に示す。

[0071] <実施例3>

粉碎用回転体の回転数を6800rpmとしたこと以外は、実施例2と同様にして、チタン酸アルミニウムマグネシウム粉末を得た。得られたチタン酸アルミニウムマグネシウム粉末の粒径特性を表1に示す。

[0072] <比較例1>

まず、実施例2と同様にして、チタン酸アルミニウムマグネシウム焼成体を得た。次に、このチタン酸アルミニウムマグネシウム焼成体を、石臼ミル〔中央化工機商事（株）製のプレマックスPR-200V〕を用いて、歯隙間90μm、回転数2000rpmの条件で、粉碎することによりチタン酸アルミニウムマグネシウム粉末を得た。得られたチタン酸アルミニウムマグネシウム粉末の粒径特性を表1に示す。また、粒度分布スペクトルを図2に示す。

[0073] <比較例2>

まず、実施例1で用いたものと同じ前駆体混合物をアルミナルツボに入れ、大気中、300℃/時間の速度で1100℃まで昇温し、1100～1300℃で2時間保持した後、さらに昇温速度300℃/時間で1450℃ま

で昇温し、同温度で4時間保持することにより焼成して、チタン酸アルミニウムマグネシウム焼成体を得た。

[0074] 次に、このチタン酸アルミニウムマグネシウム焼成体を、上記分級機構内蔵型の粉碎装置を用いて、粉碎用回転体の回転数6800rpm、分級用回転体の回転数2000rpm、気体（空気）の流量15Nm³/minの条件で、粉碎及び分級することによりチタン酸アルミニウムマグネシウム粉末を得た。得られたチタン酸アルミニウムマグネシウム粉末の粒径特性を表1に示す。また、粒度分布スペクトルを図2に示す。

[0075] <比較例3>

分級用回転体の回転数を500rpmとしたこと以外は、比較例2と同様にして、チタン酸アルミニウムマグネシウム粉末を得た。得られたチタン酸アルミニウムマグネシウム粉末の粒径特性を表1に示す。

[0076] <比較例4>

粉碎用回転体の回転数を4000rpmとしたこと以外は、比較例2と同様にして、チタン酸アルミニウムマグネシウム粉末を得た。得られたチタン酸アルミニウムマグネシウム粉末の粒径特性を表1に示す。

[0077] <比較例5>

粉碎用回転体の回転数を3000rpmとしたこと以外は、比較例2と同様にして、チタン酸アルミニウムマグネシウム粉末を得た。得られたチタン酸アルミニウムマグネシウム粉末の粒径特性を表1に示す。

[0078]

[表1]

	平均粒子径 (μm)	粒径 $10\mu\text{m}$ 以下の 微粒成分 (体積%)	粒径 $70\mu\text{m}$ 以上の 粗粒成分 (体積%)	粒径 $110\mu\text{m}$ 超の粗粒成分 の有無
実施例 1	31.5	8.3	4.0	無
実施例 2	29.7	8.7	2.2	無
実施例 3	20.1	17.2	0	無
比較例 1	26.4	18.5	11.9	有
比較例 2	13.4	33.4	0	無
比較例 3	14.1	31.2	0.4	無
比較例 4	17.4	26.0	0	無
比較例 5	17.3	28.9	1.0	無

[0079] 実施例 1～3 は、本発明の要件を全て満たしているため、得られるチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末の微粒成分および粗粒成分の生成が抑制されている。なお、粉碎用回転体の回転数の増加にともなって、微粒成分が増加する傾向が見られた。

[0080] 一方、比較例 1～5 は、本発明のいずれかの要件を満たしていない例である。比較例 1 は、保持工程は適切に制御されているが、分級していないため微粒成分および粗粒成分が多くなった。比較例 2～5 は、保持工程における保持時間が短かったために、微粒成分が多くなった。

[0081] 今回開示された実施の形態および実施例はすべての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。本発明の範囲は上記した説明ではなくて特許請求の範囲によって示され、特許請求の範囲と均等の意味および範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

符号の説明

[0082] 100 本体
101 気体導入口
102 排出口
103 筒状体

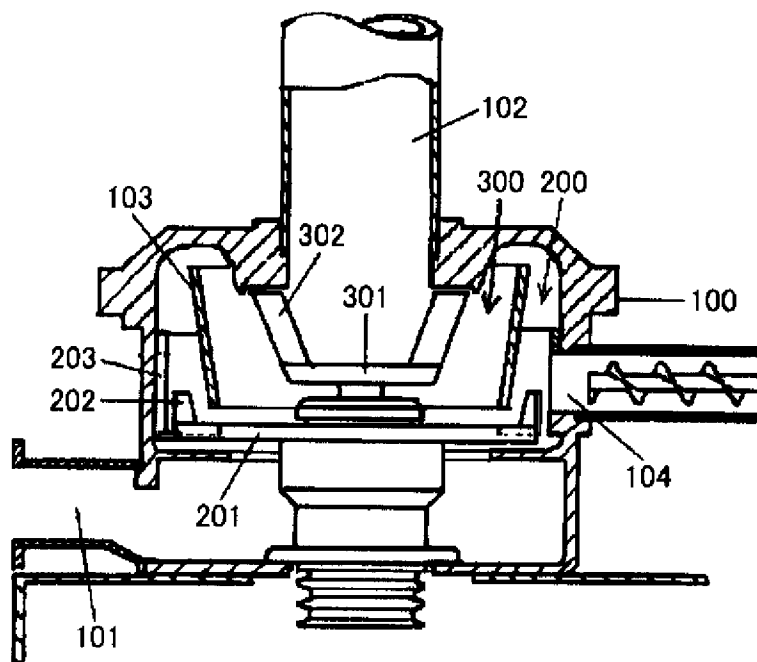
- 1 0 4 投入口
- 2 0 0 粉碎領域
- 2 0 1 粉碎用回転体
- 2 0 2 粉碎ハンマ
- 2 0 3 ライナ
- 3 0 0 分級領域
- 3 0 1 分級用回転体
- 3 0 2 分級用ファン

請求の範囲

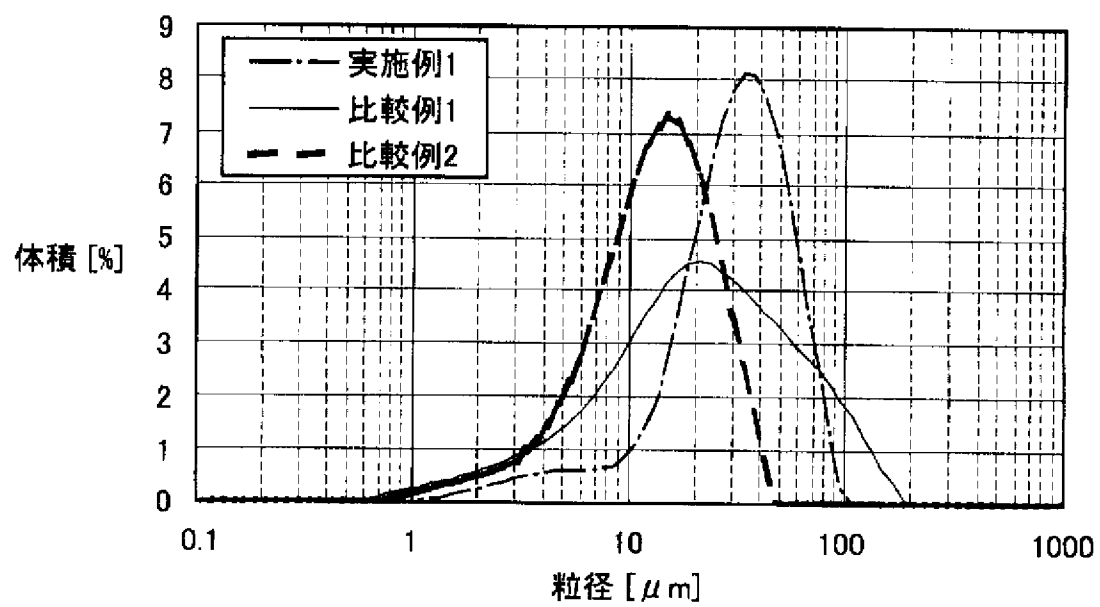
- [請求項1] チタン源粉末、アルミニウム源粉末およびシリコン源粉末を含む前駆体混合物を、 $1100^{\circ}\text{C}\sim 1350^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で3時間以上保持する工程と、
- 1400°C 以上の温度に昇温し、同温度で前記保持後の前駆体混合物の焼成を行うことにより、チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を得る工程と、
- 前記チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を粉砕し、分級する工程とを含み、
- ここで、前記チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体を粉砕し、分級する工程は、
- 前記チタン酸アルミニウム系セラミックス焼成体に衝撃を加えて粉砕した後、得られた粉砕物を分級することにより、所定粒度以下のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を得る工程（A）と、
- 前記粉砕物の残りに衝撃を加えて再度粉砕した後、得られた粉砕物を分級することにより、所定粒度以下のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末を得る工程（B）と、
- を備える、チタン酸アルミニウム系セラミックス粉末の製造方法。
- [請求項2] 前記工程（B）が2回以上繰り返される請求項1に記載の方法。
- [請求項3] 粉砕によって生じた所定粒度以下のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末をただちに分級して粉砕領域から排出しつつ、粉砕領域に存在する粉砕物の残りについて粉砕を継続することで、前記工程（A）及び工程（B）を連続的に行う請求項1または2に記載の方法。
- [請求項4] 前記粉砕および分級する工程は、分級機構内蔵型粉砕機によって行うものである請求項1～3のいずれかに記載の方法。
- [請求項5] 前記所定粒度以下のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末は、最大粒径が $110\mu\text{m}$ 以下のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末である請求項1～4のいずれかに記載の方法。

- [請求項6] 前記前駆体混合物は、マグネシウム源粉末をさらに含む請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の方法。
- [請求項7] チタニア換算のチタン源粉末の使用量は、チタニア換算のチタン源粉末の使用量、アルミナ換算のアルミニウム源粉末の使用量、およびマグネシア換算のマグネシウム源粉末の使用量の合計量 100 質量部あたり、20 質量部以上 60 質量部以下である請求項 6 に記載の方法。
- [請求項8] アルミナ換算のアルミニウム源粉末の使用量は、チタニア換算のチタン源粉末の使用量、アルミナ換算のアルミニウム源粉末の使用量、およびマグネシア換算のマグネシウム源粉末の使用量の合計量 100 質量部あたり、30 質量部以上 70 質量部以下である請求項 6 または 7 に記載の方法。
- [請求項9] マグネシア換算のマグネシウム源粉末の使用量は、チタニア換算のチタン源粉末の使用量、アルミナ換算のアルミニウム源粉末の使用量、およびマグネシア換算のマグネシウム源粉末の使用量の合計量 100 質量部あたり、0.1 質量部以上 10 質量部以下である請求項 6 ～ 8 のいずれかに記載の方法。
- [請求項10] 請求項 1 ～ 9 のいずれかに記載の方法により得られたチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末。
- [請求項11] 前記チタン酸アルミニウム系セラミックス粉末は、
粒径 10 μm 以下の微粒成分の含有量が 20 体積%以下であり、かつ、
粒径 70 μm 以上の粗粒成分の含有量が 10 体積%未満である請求項 10 に記載のチタン酸アルミニウム系セラミックス粉末。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/067388

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01G23/00 (2006.01) i, C04B35/46 (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)

C01G23/00, C04B35/46

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

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 A	JP 11-060240 A (Tsutomu FUKUDA), 02 March 1999 (02.03.1999), claims & US 6197248 B1 & CA 2279809 A	10, 11 1-9
A	JP 63-236759 A (NGK Insulators, Ltd.), 03 October 1988 (03.10.1988), claims; examples & US 5055435 A & US 5260116 A & EP 285312 A2 & EP 437302 A2 & EP 437303 A2 & DE 3851638 C & DE 3852513 C & DE 3853299 C	1-11

☒ 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
04 January, 2010 (04.01.10)

Date of mailing of the international search report
12 January, 2010 (12.01.10)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/067388

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2004/039747 A1 (Ohcera Co., Ltd.), 13 May 2004 (13.05.2004), claims; examples 1 to 8 & JP 2009-114063 A & US 2006/0009347 A1 & EP 1559696 A1 & CA 2500821 A & KR 10-2005-0071626 A & CN 1708462 A & TW 268916 B & CN 101117286 A	1-11

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C01G23/00(2006.01)i, C04B35/46(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 (I P C))

Int.Cl. C01G23/00, C04B35/46

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 0 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 0 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 0 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 A	JP 11-060240 A (福田勉) 1999.03.02, 【特許請求の範囲】 & US 6197248 B1 & CA 2279809 A	10, 11 1-9
A	JP 63-236759 A (日本碍子株式会社) 1988.10.03, 特許請求の範囲、実施例 & US 5055435 A & US 5260116 A & EP 285312 A2 & EP 437302 A2 & EP 437303 A2 & DE 3851638 C & DE 3852513 C & DE 3853299 C	1-11

☒ 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

0 4 . 0 1 . 2 0 1 0

国際調査報告の発送日

1 2 . 0 1 . 2 0 1 0

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

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)

佐藤 哲

4 G

3 9 4 7

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 1 6

C (続き) . 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
A	WO 2004/039747 A1 (オーセラ株式会社) 2004.05.13, 【特許請求の範囲】、【実施例1】－【実施例8】 & JP 2009-114063 A & US 2006/0009347 A1 & EP 1559696 A1 & CA 2500821 A & KR 10-2005-0071626 A & CN 1708462 A & TW 268916 B & CN 101117286 A	1-11