(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7020008号
(P7020008)

(45)発行日　令和4年2月16日(2022.2.16)

(24)登録日　令和4年2月7日(2022.2.7)

(51)国際特許分類

Ｃ０１Ｂ　33/12　(2006.01)	Ｃ０１Ｂ	33/12	Ａ
Ｂ０１Ｊ　21/08　(2006.01)	Ｂ０１Ｊ	21/08	Ｍ
Ｂ０１Ｊ　35/02　(2006.01)	Ｂ０１Ｊ	35/02	Ｊ

請求項の数　23　（全37頁）

(21)出願番号　特願2017-174872(P2017-174872)
(22)出願日　平成29年9月12日(2017.9.12)
(65)公開番号　特開2019-48758(P2019-48758A)
(43)公開日　平成31年3月28日(2019.3.28)
審査請求日　令和2年7月17日(2020.7.17)

(73)特許権者　000005496
富士フイルムビジネスイノベーション株式会社
東京都港区赤坂九丁目７番３号
(74)代理人　110001519
特許業務法人太陽国際特許事務所
(72)発明者　角倉 康夫
神奈川県南足柄市竹松１６００番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者　銭谷 優香
神奈川県南足柄市竹松１６００番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者　奥野 広良
神奈川県南足柄市竹松１６００番地 富士ゼロックス株式会社内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】　シリカチタニア複合エアロゲル粒子、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の製造方法、光触媒形成用組成物、光触媒、及び構造体

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
ケイ素とチタンとの元素比Ｓｉ／Ｔｉが０を超えて６以下である母粒子と、
前記母粒子上に存在し、金属原子及び炭化水素基を有する金属化合物を含む表面層と、
を有し、
炭素１ｓ軌道のＸＰＳスペクトルにおいて｛（Ｃ－Ｏ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｏ結合のピーク強度）÷（Ｃ－Ｃ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｃ結合のピーク強度）｝が０．０３以上０．３以下であり、
ＢＥＴ比表面積が２００ｍ^2／ｇ以上１２００ｍ^2／ｇ以下であり、
可視吸収スペクトルにおいて波長４５０ｎｍ及び７５０ｎｍに吸収を持つ、
シリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項２】
紫外可視吸収スペクトルにおいて波長３５０ｎｍの吸光度を１としたとき、波長４５０ｎｍの吸光度及び波長７５０ｎｍの吸光度がそれぞれ０．０２以上である、請求項１に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項３】
可視吸収スペクトルにおいて波長４００ｎｍ以上８００ｎｍ以下の全範囲に吸収を持つ、請求項１又は請求項２に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項４】
紫外可視吸収スペクトルにおいて波長３５０ｎｍの吸光度を１としたとき、波長４５０ｎ

ｍの吸光度、波長６００ｎｍの吸光度及び波長７５０ｎｍの吸光度がそれぞれ０．０２以上である、請求項３に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項５】
体積平均粒子径が０．１μｍ以上３μｍ以下であり、体積粒度分布が１．５以上１０以下である、請求項１～請求項４のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項６】
前記母粒子が、一次粒子が凝集した凝集粒子であり、前記一次粒子の平均径が１ｎｍ以上９０ｎｍ以下である、請求項１～請求項５のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項７】
前記金属化合物が、金属原子と前記金属原子に直接結合した炭化水素基とを有する金属化合物である、請求項１～請求項６のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項８】
前記金属原子がケイ素原子である、請求項１～請求項７のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項９】
前記炭化水素基が、炭素数１以上２０以下の飽和若しくは不飽和の脂肪族炭化水素基又は芳香族炭化水素基である、請求項１～請求項８のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項１０】
前記炭化水素基が、炭素数１以上２０以下の飽和脂肪族炭化水素基である、請求項９に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項１１】
前記炭化水素基が、炭素数４以上１０以下の飽和脂肪族炭化水素基である、請求項１０に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項１２】
前記母粒子におけるケイ素とチタンとの元素比Ｓｉ／Ｔｉが０．０５以上４以下である、請求項１～請求項１１のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項１３】
炭素１ｓ軌道のＸＰＳスペクトルにおいて｛（Ｃ－Ｏ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｏ結合のピーク強度）÷（Ｃ－Ｃ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｃ結合のピーク強度）｝が０．０４以上０．２５以下である、請求項１～請求項１２のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項１４】
ＢＥＴ比表面積が３００ｍ^2／ｇ以上１１００ｍ^2／ｇ以下である、請求項１～請求項１３のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項１５】
体積平均粒子径が０．３μｍ以上２．８μｍ以下である、請求項１～請求項１４のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項１６】
前記表面層は、前記母粒子に酸素原子を介して結合した前記金属化合物を含む、請求項１～請求項１５のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項１７】
さらに、前記母粒子と前記表面層との間に、チタニアからなる中間層を有する、請求項１～請求項１５のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項１８】
前記表面層は、前記中間層に酸素原子を介して結合した前記金属化合物を含む、請求項１７に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【請求項１９】

下記の（ｉ）を含み、多孔質粒子及び溶媒を含有する分散液を調製する工程と、
超臨界二酸化炭素を用いて前記分散液から前記溶媒を除去する工程と、
前記溶媒を除去した後の前記多孔質粒子を、超臨界二酸化炭素中で、金属原子及び炭化水素基を有する金属化合物により表面処理する工程と、
前記表面処理した後の前記多孔質粒子を温度１８０℃以上５００℃以下で３０分間以上１２０分間以下、加熱処理する工程と、
を含む、請求項１～請求項１６のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子の製造方法。
（ｉ）アルコールにアルコキシシラン及びチタンアルコキシドを添加し、撹拌下、そこに酸水溶液を滴下してアルコキシシランとチタンアルコキシドとを反応させてシリカチタニア複合体を生成し、シリカチタニア複合体を含む母粒子がアルコールに分散した第一の分散液を得ること。当該第一の分散液が、多孔質粒子及び溶媒を含有する分散液である。
【請求項２０】
下記の（ｉ）及び（ｉｉ）を含み、多孔質粒子及び溶媒を含有する分散液を調製する工程と、
超臨界二酸化炭素を用いて前記分散液から前記溶媒を除去する工程と、
前記溶媒を除去した後の前記多孔質粒子を、超臨界二酸化炭素中で、金属原子及び炭化水素基を有する金属化合物により表面処理する工程と、
前記表面処理した後の前記多孔質粒子を温度１８０℃以上５００℃以下で３０分間以上１２０分間以下、加熱処理する工程と、
を含む、請求項１７又は請求項１８に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子の製造方法。
（ｉ）アルコールにアルコキシシラン及びチタンアルコキシドを添加し、撹拌下、そこに酸水溶液を滴下してアルコキシシランとチタンアルコキシドとを反応させてシリカチタニア複合体を生成し、シリカチタニア複合体を含む母粒子がアルコールに分散した第一の分散液を得ること。
（ｉｉ）前記第一の分散液に、撹拌下、アルコールにチタンアルコキシドを混合してなる混合液を滴下して、前記母粒子とチタンアルコキシドとを反応させて前記母粒子表面にチタニアからなる層が形成された多孔質粒子を生成し、多孔質粒子がアルコールに分散した第二の分散液を得ること。当該第二の分散液が、多孔質粒子及び溶媒を含有する分散液である。
【請求項２１】
請求項１～請求項１８のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子と、
分散媒及びバインダーからなる群から選ばれた少なくとも１種の化合物と、
を含む光触媒形成用組成物。
【請求項２２】
請求項１～請求項１８のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子を含む、又は、からなる光触媒。
【請求項２３】
請求項１～請求項１８のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子を有する構造体。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、シリカチタニア複合エアロゲル粒子、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の製造方法、光触媒形成用組成物、光触媒、及び構造体に関する。
【背景技術】
【０００２】
特許文献１には、ミクロポア乃至メソポアの細孔を有するポーラス材料で形成された粒状素材と、粒状素材の外表面に溶射付着した光触媒粒子を含む溶射皮膜とを備え、光触媒粒

子と粒状素材の外表面との間、及び重なって溶射付着した光触媒粒子間に、細孔より大きな隙間が形成されている吸着剤が開示されている。

【０００３】

特許文献２には、酸化チタンナノ分散液、吸着材（例えばゼオライト）、無機化合物分散液（例えば酸化チタン分散液）、シリカ化合物（例えばSiO_2）及び金属微粒子（例えば硝酸鉄９水和物）を含む、塗布用の吸着材－光触媒ハイブリッド型脱臭材料が開示されている。

【０００４】

特許文献３には、アンモニア分解能を有する金属粒子（例えばニッケル、ルテニウム、オスミウム）と、金属粒子の粒径よりも小さな径の細孔を有し且つ金属粒子と接触する多孔質材料（例えばＺＳＭ５、シリカライト、チタン含有ゼオライト）と、を有するアンモニア分解触媒が開示されている。

【０００５】

特許文献４には、二酸化チタン及びチタン複合酸化物の少なくとも一方を含み、リンをP_2O_5として０．０３～０．５質量％含み、硫酸根を０．４～４．０質量％含む、排ガス処理触媒の原料用のチタン含有粉末が開示されている。

【０００６】

特許文献５には、電界放射型走査電子顕微鏡で観察した一次粒子の最大粒子径Ｄｔｏｐと平均粒子径Ｄ５０の比Ｄｔｏｐ／Ｄ５０が１～３である二酸化チタンが開示されている。

【０００７】

特許文献６には、可視光応答型光触媒酸化チタンと多孔質シリカとから形成された複合体であり、ＢＥＴ比表面積が２００～１０００m^2／ｇ、細孔容積が０．１０～１．０cm^3／ｇ、細孔径が１～１０ｎｍである光触媒体が開示されている。

【０００８】

特許文献７には、多孔質基材（例えばコージェライト）と、多孔質基材の表面上に順次積層された酸化物粒子（例えばアルミナ、SiO_2）からなる第１のコート層及び第２のコート層と、第２のコート層上に設けられた触媒成分とを備え、第１のコート層を構成する酸化物粒子の粒径が第２のコート層を構成する酸化物粒子の粒径よりも大きい触媒体が開示されている。

【０００９】

特許文献８には、金属酸化物を含有する担体（例えばシリカ、アルミナ、チタニア、ジルコニア）に、ナノスケールの金属超微粒子を分散させた状態で固定してなる多孔質複合体が開示されている。

【００１０】

特許文献９には、シリカゲルを粉砕して微粒子とし、これにバインダーを添加してシリカゲル体微粒子の多孔質表面に酸化チタンをコーティングした多孔質光触媒が開示されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【００１１】

【文献】特開２０１７－０３５６４５号公報
特開２０１６－２２１４４７号公報
特開２０１６－０６４４０７号公報
特開２０１５－１４２９１７号公報
特開２０１１－０５７５５２号公報
特開２００９－１３１７６０号公報
特開２００６－２８１１５５号公報
特開２００６－２４７５２４号公報
特開２００３－１７００６１号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】
【００１２】
光触媒材料として普及している酸化チタン粒子は、紫外光を吸収することにより光触媒機能を発揮する。したがって、酸化チタン粒子は、紫外光を十分に確保できる晴れた日の昼間は光触媒機能を発揮できるものの、夜又は日陰では光触媒機能が低下する傾向がある。例えば、酸化チタン粒子を外壁材に用いた場合は、日向と日陰とで耐汚染性能に差が出ることがある。また、酸化チタン粒子を空気清浄機又は浄水器等に用いる際には、機器の内部に紫外線の光源となるブラックライト等を設置することが必要になる場合がある。上記事情に鑑み、可視光領域においても光触媒機能を発現する光触媒材料が求められている。
【００１３】
一方、光触媒機能を発現する比表面積を大きくする技術として、ゼオライト、シリカゲル等のミクロポーラス材料又はメソポーラス材料からなる多孔質材料の孔表面に光触媒粒子を付着させた光触媒材料が知られている。ただし、この光触媒材料においては、光触媒粒子が多孔質材料の孔入口を塞いだり、微細な孔内部には光が当たらなかったりして、光触媒機能が必ずしも向上しないことがある。
【００１４】
本発明は、上記状況のもとになされた。
【００１５】
本発明は、可視吸収スペクトルにおいて波長４５０ｎｍ及び７５０ｎｍに吸収がないシリカチタニア複合エアロゲル粒子に比べて、可視光領域においても高い光触媒機能を発現するシリカチタニア複合エアロゲル粒子を提供することを課題とする。
【課題を解決するための手段】
【００１６】
前記課題を解決するための具体的手段には、下記の態様が含まれる。
【００１７】
＜１＞に係る発明は、
ケイ素とチタンとの元素比Ｓｉ／Ｔｉが０を超えて６以下である母粒子と、
前記母粒子上に存在し、金属原子及び炭化水素基を有する金属化合物を含む表面層と、
を有し、
炭素１ｓ軌道のＸＰＳスペクトルにおいて｛（Ｃ－Ｏ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｏ結合のピーク強度）÷（Ｃ－Ｃ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｃ結合のピーク強度）｝が０．０３以上０．３以下であり、
ＢＥＴ比表面積が２００ｍ^2／ｇ以上１２００ｍ^2／ｇ以下であり、
可視吸収スペクトルにおいて波長４５０ｎｍ及び７５０ｎｍに吸収を持つ、
シリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００１８】
＜２＞に係る発明は、
可視吸収スペクトルにおいて波長４００ｎｍ以上８００ｎｍ以下の全範囲に吸収を持つ、＜１＞に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００１９】
＜３＞に係る発明は、
体積平均粒子径が０．１μｍ以上３μｍ以下であり、体積粒度分布が１．５以上１０以下である、＜１＞又は＜２＞に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００２０】
＜４＞に係る発明は、
前記母粒子が、一次粒子が凝集した凝集粒子であり、前記一次粒子の平均径が１ｎｍ以上９０ｎｍ以下である、＜１＞～＜３＞のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００２１】
＜５＞に係る発明は、

さらに、前記母粒子と前記表面層との間に、チタニアからなる中間層を有する、＜１＞～＜４＞のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００２２】
＜６＞に係る発明は、
前記表面層は、前記母粒子又は前記中間層に酸素原子を介して結合した前記金属化合物を含む、＜１＞～＜５＞のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００２３】
＜７＞に係る発明は、
前記金属化合物が、金属原子と前記金属原子に直接結合した炭化水素基とを有する金属化合物である、＜１＞～＜６＞のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００２４】
＜８＞に係る発明は、
前記金属原子がケイ素原子である、＜１＞～＜７＞のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００２５】
＜９＞に係る発明は、
前記炭化水素基が、炭素数１以上２０以下の飽和若しくは不飽和の脂肪族炭化水素基又は芳香族炭化水素基である、＜１＞～＜８＞のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００２６】
＜１０＞に係る発明は、
前記炭化水素基が、炭素数１以上２０以下の飽和脂肪族炭化水素基である、＜９＞に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００２７】
＜１１＞に係る発明は、
前記炭化水素基が、炭素数４以上１０以下の飽和脂肪族炭化水素基である、＜１０＞に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００２８】
＜１２＞に係る発明は、
前記母粒子におけるケイ素とチタンとの元素比Ｓｉ／Ｔｉが０．０５以上４以下である、＜１＞～＜１１＞のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００２９】
＜１３＞に係る発明は、
炭素１ｓ軌道のＸＰＳスペクトルにおいて｛（Ｃ－Ｏ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｏ結合のピーク強度）÷（Ｃ－Ｃ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｃ結合のピーク強度）｝が０．０４以上０．２５以下である、＜１＞～＜１２＞のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００３０】
＜１４＞に係る発明は、
ＢＥＴ比表面積が３００ｍ^2／ｇ以上１１００ｍ^2／ｇ以下である、＜１＞～＜１３＞のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００３１】
＜１５＞に係る発明は、
体積平均粒子径が０．３μｍ以上２．８μｍ以下である、＜１＞～＜１４＞のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子。
【００３２】
＜１６＞に係る発明は、
シリカチタニア複合体を含む多孔質粒子をゾルゲル法により造粒し、前記多孔質粒子及び溶媒を含有する分散液を調製する工程と、
超臨界二酸化炭素を用いて前記分散液から前記溶媒を除去する工程と、

前記溶媒を除去した後の前記多孔質粒子を、超臨界二酸化炭素中で、金属原子及び炭化水素基を有する金属化合物により表面処理する工程と、
を含む、＜１＞～＜１５＞のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子の製造方法。
【００３３】
＜１７＞に係る発明は、
さらに、前記表面処理した後の前記多孔質粒子を加熱処理する工程を含む、＜１６＞に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子の製造方法。
【００３４】
＜１８＞に係る発明は、
＜１＞～＜１５＞のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子と、
分散媒及びバインダーからなる群から選ばれた少なくとも１種の化合物と、
を含む光触媒形成用組成物。
【００３５】
＜１９＞に係る発明は、
＜１＞～＜１５＞のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子を含む、又は、からなる光触媒。
【００３６】
＜２０＞に係る発明は、
＜１＞～＜１５＞のいずれか１項に記載のシリカチタニア複合エアロゲル粒子を有する構造体。
【発明の効果】
【００３７】
＜１＞、＜２＞、＜６＞、＜７＞、＜９＞、＜１０＞又は＜１１＞に係る発明によれば、可視吸収スペクトルにおいて波長４５０ｎｍ及び７５０ｎｍに吸収がないシリカチタニア複合エアロゲル粒子に比べて、可視光領域においても高い光触媒機能を発現するシリカチタニア複合エアロゲル粒子が提供される。
＜３＞に係る発明によれば、体積平均粒子径が０．１μｍ未満若しくは３μｍ超、又は、体積粒度分布が１．５未満若しくは１０超である場合に比べて、可視光領域においてより高い光触媒機能を発現するシリカチタニア複合エアロゲル粒子が提供される。
＜４＞に係る発明によれば、母粒子を構成する一次粒子の平均径が１ｎｍ未満又は９０ｎｍ超である場合に比べて、可視光領域においてより高い光触媒機能を発現するシリカチタニア複合エアロゲル粒子が提供される。
＜５＞に係る発明によれば、前記中間層を有しない場合に比べて、可視光領域においてより高い光触媒機能を発現するシリカチタニア複合エアロゲル粒子が提供される。
＜８＞に係る発明によれば、金属化合物の金属原子がアルミニウム原子又はチタン原子である場合に比べて、可視光領域においてより高い光触媒機能を発現するシリカチタニア複合エアロゲル粒子が提供される。
【００３８】
＜１２＞に係る発明によれば、母粒子における元素比Ｓｉ／Ｔｉが６超である場合に比べて、可視光領域においてより高い光触媒機能を発現するシリカチタニア複合エアロゲル粒子が提供される。
＜１３＞に係る発明によれば、炭素１ｓ軌道のＸＰＳピーク強度比が０．０３未満又は０．３超である場合に比べて、可視光領域においてより高い光触媒機能を発現するシリカチタニア複合エアロゲル粒子が提供される。
＜１４＞に係る発明によれば、ＢＥＴ比表面積が２００ｍ^2／ｇ未満又は１２００ｍ^2／ｇ超である場合に比べて、可視光領域においてより高い光触媒機能を発現するシリカチタニア複合エアロゲル粒子が提供される。
＜１５＞に係る発明によれば、体積平均粒子径が０．１μｍ未満又は３μｍ超である場合に比べて、可視光領域においてより高い光触媒機能を発現するシリカチタニア複合エアロ

ゲル粒子が提供される。
【００３９】
＜１６＞に係る発明によれば、分散液から溶媒を除去する工程において超臨界二酸化炭素を用いない場合、又は、金属原子及び炭化水素基を有する金属化合物により表面処理する工程を超臨界二酸化炭素中で行わない場合に比べて、可視光領域においても高い光触媒機能を発現するシリカチタニア複合エアロゲル粒子の製造方法が提供される。
＜１７＞に係る発明によれば、加熱処理する工程を含まない場合に比べて、可視光領域においても高い光触媒機能を発現するシリカチタニア複合エアロゲル粒子の製造方法が提供される。
【００４０】
＜１８＞、＜１９＞又は＜２０＞に係る発明によれば、可視吸収スペクトルにおいて波長４５０ｎｍ及び７５０ｎｍに吸収がないシリカチタニア複合エアロゲル粒子に比べて、可視光領域においても高い光触媒機能を発現するシリカチタニア複合エアロゲル粒子を用いた光触媒形成用組成物、光触媒又は構造体が提供される。
【図面の簡単な説明】
【００４１】
【図１】本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子の一例を示す模式図である。
【図２】本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子の元素プロファイルの一例である。
【発明を実施するための形態】
【００４２】
以下に、発明の実施形態を説明する。これらの説明及び実施例は実施形態を例示するものであり、発明の範囲を制限するものではない。
【００４３】
本開示において組成物中の各成分の量について言及する場合、組成物中に各成分に該当する物質が複数種存在する場合には、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数種の物質の合計量を意味する。
【００４４】
本開示において「工程」との語は、独立した工程だけでなく、他の工程と明確に区別できない場合であってもその工程の所期の目的が達成されれば、本用語に含まれる。
【００４５】
ＸＰＳとは、X-ray Photoelectron Spectroscopy（Ｘ線光電子分光）の略である。
【００４６】
＜シリカチタニア複合エアロゲル粒子＞
本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、ケイ素とチタンとの元素比Ｓｉ／Ｔｉが０を超えて６以下である母粒子と、母粒子上に存在し、金属原子及び炭化水素基を有する金属化合物を含む表面層と、を有する。そして、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、炭素１ｓ軌道のＸＰＳスペクトルにおいて｛（Ｃ－Ｏ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｏ結合のピーク強度）÷（Ｃ－Ｃ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｃ結合のピーク強度）｝が０．０３以上０．３以下であり、ＢＥＴ比表面積が２００ｍ^2／ｇ以上１２００ｍ^2／ｇ以下であり、可視吸収スペクトルにおいて波長４５０ｎｍ及び７５０ｎｍに吸収を持つ。
【００４７】
本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、母粒子及び表面層からなる粒子であってもよく、後述する中間層を母粒子と表面層との間に有する粒子であってもよい。
本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子においては、少なくとも母粒子がエアロゲル構造を有する。本実施形態において「エアロゲル」又は「エアロゲル構造」とは、一次粒子が多孔構造を形成しつつ凝集した構造を指し、ナノメートルオーダー径の球状体が集合したクラスター構造を有し、内部が３次元網目状の微細構造となっている。
図１に、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子の一例の構造を模式的に示

す（ただし、母粒子上に存在する層を省略している。）。図１に示すシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、一次粒子が多孔構造を形成しつつ凝集して凝集粒子（母粒子）となっている。

【００４８】

本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、粒子中に多くの細孔又は空隙を有する多孔構造であることにより粒径の割に大きい表面積を有すること（即ち、ＢＥＴ比表面積が２００ｍ^2／ｇ以上１２００ｍ^2／ｇ以下であること）、母粒子における元素比Ｓｉ／Ｔｉが０超６以下であること、有機金属化合物を含む表面層を母粒子上に有すること、炭素１ｓ軌道のＸＰＳピーク強度比が０．０３以上０．３以下であることが相まって、可視吸収スペクトルにおいて波長４５０ｎｍ及び７５０ｎｍに吸収を持つ、即ち、可視光応答性を発現すると推定される。また、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、単に比表面積が大きいだけでなく、その多孔構造により分解対象物の捕捉性が高まるため、光触媒機能に優れると推定される。

【００４９】

本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、母粒子におけるケイ素とチタンとの元素比Ｓｉ／Ｔｉの値が０超６以下である。母粒子における元素比Ｓｉ／Ｔｉの値が０を超えると、チタニア骨格中にシリカが入り込むことによりシリカチタニアエアロゲル粒子の多孔質化が促進され、大きい比表面積により光分解対象物の吸着性が向上し、可視光領域において光触媒機能を発現しやすい。母粒子における元素比Ｓｉ／Ｔｉの値が６以下であると、シリカチタニア複合エアロゲル粒子中のチタニア骨格による光触媒効果が発現し、紫外光領域のみならず可視光領域においても光触媒機能を発現しやすい。

上記の観点から、母粒子における元素比Ｓｉ／Ｔｉの値は、０超６以下であり、０．０５以上４以下がより好ましく、０．１以上３以下が更に好ましい。

【００５０】

母粒子におけるケイ素とチタンとの元素比Ｓｉ／Ｔｉは、ＸＰＳの定性分析（ワイドスキャン分析）を行い、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の元素プロファイルを作成して求める。詳細な測定方法は、後述の［実施例］に記載するとおりである。

【００５１】

本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、炭素１ｓ軌道のＸＰＳスペクトルにおいて｛（Ｃ－Ｏ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｏ結合のピーク強度）÷（Ｃ－Ｃ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｃ結合のピーク強度）｝が０．０３以上０．３以下である。

本開示において、炭素１ｓ軌道のＸＰＳスペクトルにおける｛（Ｃ－Ｏ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｏ結合のピーク強度）÷（Ｃ－Ｃ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｃ結合のピーク強度）｝を、「炭素１ｓ軌道のＸＰＳピーク強度比」という。炭素１ｓ軌道のＸＰＳピーク強度比は、シリカチタニア複合エアロゲル粒子表面の酸化の度合を示す指標である。

【００５２】

詳細な機序は不明であるが、炭化水素基が適度に酸化されている有機金属化合物がシリカチタニア複合エアロゲル粒子表面に存在することにより、シリカチタニア複合エアロゲル粒子表面が波長４５０ｎｍ及び７５０ｎｍに光吸収性を示し、その結果、シリカチタニア複合エアロゲル粒子が可視光領域においても光触媒機能を発現すると推測される。

炭素１ｓ軌道のＸＰＳピーク強度比が０．０３未満であると、有機金属化合物における炭化水素基の酸化の度合が低過ぎ、シリカチタニア複合エアロゲル粒子表面が可視光領域に光吸収性を示しにくいと推測される。一方、炭素１ｓ軌道のＸＰＳピーク強度比が０．３超であることは、有機金属化合物の炭化水素基の一部を酸化させるために行う処理（例えば加熱処理）が激し過ぎたことを意味し、炭化水素基の酸化ばかりでなく消失も進んでいると推測され、シリカチタニア複合エアロゲル粒子表面が可視光領域に充分な光吸収性を示さないと推測される。

上記の観点から、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の炭素１ｓ軌道のＸＰＳピーク強度比は、０．０３以上０．３以下であり、０．０４以上０．２５以下がより好ましく、０．０５以上０．２以下が更に好ましい。

【００５３】
シリカチタニア複合エアロゲル粒子の炭素１ｓ軌道のＸＰＳピーク強度比は、ＸＰＳスペクトルから求める。炭素１ｓ軌道のＸＰＳスペクトルには炭素原子の結合状態に応じてピークが複数個現れるところ、各ピークの化学シフトの位置によって各ピークの帰属を特定する。本実施形態においては、２８５．５ｅＶ以上２８７ｅＶ以下に現れるピークをＣ－Ｏ結合のピークとし、２８７ｅＶ以上２８８ｅＶ以下に現れるピークをＣ＝Ｏ結合のピークとし、２８４ｅＶ以上２８５．５ｅＶ以下に現れるピークをＣ－Ｃ結合のピークとし、２８４．５ｅＶ以上２８５ｅＶ以下に現れるピークをＣ＝Ｃ結合のピークとする。但し、Ｃ－Ｏ結合のピークとＣ＝Ｏ結合のピークとは必ずしも分離しなくてもよく、Ｃ－Ｃ結合のピークとＣ＝Ｃ結合のピークとは必ずしも分離しなくてもよい。そして、Ｃ－Ｏ結合のピークとＣ＝Ｏ結合のピークのいずれか高いほうのピークを（Ｃ－Ｏ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｏ結合のピーク強度）とし、Ｃ－Ｃ結合のピークとＣ＝Ｃ結合のピークのいずれか高いほうのピークを（Ｃ－Ｃ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｃ結合のピーク強度）として、｛（Ｃ－Ｏ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｏ結合のピーク強度）÷（Ｃ－Ｃ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｃ結合のピーク強度）｝を求める。詳細な測定方法は、後述の［実施例］に記載するとおりである。
【００５４】
本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、ＢＥＴ比表面積が２００ｍ^2／ｇ以上１２００ｍ^2／ｇ以下である。ＢＥＴ比表面積が２００ｍ^2／ｇ以上であると、量に対して表面積が大きく、光分解対象物を吸着しうる面積が大きくなり、光分解対象物を吸着しやすくなることで光触媒機能が高まる。ＢＥＴ比表面積が１２００ｍ^2／ｇ以下であると、粗大粒子（粒径が２０μｍを超える粒子）の割合が少なく、後述する光触媒形成用組成物、光触媒又は構造体において粒子分散性が向上し、高い光触媒機能が発現しやすい。以上の理由により、シリカチタニア複合エアロゲル粒子のＢＥＴ比表面積を上記範囲にすると、可視光領域において高い光触媒機能を発現させやすくなる。
上記の観点から、シリカチタニア複合エアロゲル粒子のＢＥＴ比表面積は、２００ｍ^2／ｇ以上１２００ｍ^2／ｇ以下であり、３００ｍ^2／ｇ以上１１００ｍ^2／ｇ以下がより好ましく、４００ｍ^2／ｇ以上１０００ｍ^2／ｇ以下が更に好ましい。
【００５５】
シリカチタニア複合エアロゲル粒子のＢＥＴ比表面積は、窒素ガスを用いたガス吸着法により求める。詳細な測定方法は、後述の［実施例］に記載するとおりである。
【００５６】
本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子の体積平均粒子径は、０．１μｍ以上３μｍ以下であることが好ましい。体積平均粒子径が０．１μｍ以上であると、多孔構造を形成しやすく比表面積が大きくなり、光分解対象物の吸着性が向上しやすい。それにより高い光触媒効果が発現されやすくなる。体積平均粒子径が３μｍ以下であると、粗大粒子（粒径が２０μｍを超える粒子）が少なく、後述する光触媒形成組成物、光触媒または構造体においてシリカチタニア複合エアロゲル粒子の分散性が向上し、光触媒機能が高まる。以上の理由により、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の体積平均粒子径を上記範囲にすると、可視光領域において高い光触媒機能を発現させやすくなる。
上記の観点から、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の体積平均粒子径は、０．１μｍ以上３μｍ以下が好ましく、０．３μｍ以上２．８μｍ以下がより好ましく、０．４μｍ以上２．５μｍ以下が更に好ましい。
【００５７】
シリカチタニア複合エアロゲル粒子の粒径とは、シリカチタニア複合エアロゲル粒子が母粒子及び表面層からなる粒子である場合はその全体の粒径である。シリカチタニア複合エアロゲル粒子が母粒子、中間層及び表面層からなる粒子である場合はその全体の粒径である。
シリカチタニア複合エアロゲル粒子の体積平均粒径とは、体積基準の粒度分布において小径側から累積５０％の粒径である。

【００５８】
本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子の体積粒度分布は、１．５以上１０以下であることが好ましい。体積粒度分布が１．５以上であると、多孔構造を形成しやすく比表面積が大きくなり、光分解対象物の吸着性が向上しやすい。それにより高い光触媒効果が発現されやすくなる。体積粒度分布が１０以下であると、粗大粒子（粒径が２０μｍを超える粒子）が少なく、後述する光触媒形成組成物、光触媒または構造体においてシリカチタニア複合エアロゲル粒子の分散性が向上し、光触媒機能が高まる。以上の理由により、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の体積粒度分布を上記範囲にすると、可視光領域において高い光触媒機能を発現させやすくなる。
上記の観点から、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の体積粒度分布は、１．５以上１０以下が好ましく、１．７以上５以下がより好ましく、２以上４以下が更に好ましい。
【００５９】
本実施形態においてシリカチタニア複合エアロゲル粒子の体積粒度分布は、（Ｄ９０ｖ÷Ｄ１０ｖ）１／２と定義される。ここで、Ｄ９０ｖは、体積基準の粒度分布において小径側から累積９０％の粒子径であり、Ｄ１０ｖは、体積基準の粒度分布において小径側から累積１０％の粒子径である。
【００６０】
本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、可視光領域においても高い光触媒機能を発現する観点から、母粒子が、一次粒子が多孔構造を形成しつつ凝集した凝集粒子であり、前記一次粒子の平均径（平均一次粒子径）が１ｎｍ以上９０ｎｍ以下であることが好ましい。前記一次粒子の平均径が１ｎｍ以上であると、凝集粒子（母粒子）表面の細孔径が適度な大きさとなり、光分解対象物の吸着性が向上することにより可視光領域における光触媒機能を発現しやすい。前記一次粒子の平均径が９０ｎｍ以下であると、一次粒子が多孔構造を形成しつつ凝集しやすく、凝集粒子（母粒子）が可視光領域において高い光触媒機能を発現しやすい。
上記の観点から、前記一次粒子の平均径は、１ｎｍ以上９０ｎｍ以下が好ましく、５ｎｍ以上８０ｎｍ以下がより好ましく、１０ｎｍ以上７０ｎｍ以下が更に好ましい。
【００６１】
シリカチタニア複合エアロゲル粒子の体積平均粒子径及び体積粒度分布、並びに、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の母粒子を構成する一次粒子の平均径の測定方法は、後述の［実施例］に記載する。
【００６２】
本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、可視吸収スペクトルにおいて波長４５０ｎｍ及び７５０ｎｍに吸収を持つ。
【００６３】
本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、可視光領域においても高い光触媒機能を発現する観点から、可視吸収スペクトルにおいて波長４５０ｎｍ、６００ｎｍ及び７５０ｎｍに吸収を持つことが好ましく、可視吸収スペクトルにおいて波長４５０ｎｍ以上７５０ｎｍ以下の全範囲に吸収を持つことがより好ましく、可視吸収スペクトルにおいて波長４００ｎｍ以上８００ｎｍ以下の全範囲に吸収を持つことが特に好ましい。
【００６４】
本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、可視光領域においても高い光触媒機能を発現する観点から、紫外可視吸収スペクトルにおいて、波長３５０ｎｍの吸光度を１としたとき、波長４５０ｎｍの吸光度が０．０２以上（より好ましくは０．１以上、更に好ましくは０．２以上）であることが好ましく、波長６００ｎｍの吸光度が０．０２以上（より好ましくは０．１以上、更に好ましくは０．２以上）であることが好ましく、波長７５０ｎｍの吸光度が０．０２以上（より好ましくは０．１以上、更に好ましくは０．２以上）であることが好ましい。
【００６５】
シリカチタニア複合エアロゲル粒子の紫外可視吸収スペクトルは、波長２００ｎｍ乃至９

００ｎｍの範囲の拡散反射スペクトルを測定し、拡散反射スペクトルからKubelka-Munk変換により理論的に各波長における吸光度を求めて得る。詳細な測定方法は、後述の［実施例］に記載するとおりである。

【００６６】

本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、母粒子上に、金属原子及び炭化水素基を有する金属化合物を含む表面層を有する。表面層を有するシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、表面層を有しないシリカチタニア複合エアロゲル粒子に比べて、可視光領域において高い光触媒機能を発現する。表面層は、母粒子又は中間層に共有結合していることが好ましい。

【００６７】

本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子の一形態は、さらに、母粒子と表面層との間に、チタニアからなる中間層を有する。中間層を有するシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、中間層を有しないシリカチタニア複合エアロゲル粒子に比べて、可視光応答性を発現しやすい。シリカチタニア複合体を含む母粒子を製造する際において、母粒子の表面にはチタニアよりもシリカが出現しやすい傾向があるところ、チタニアからなる中間層を母粒子の表面に設けることによって、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の表面が可視光応答性をより発現しやすくなると推測される。

【００６８】

シリカチタニア複合エアロゲル粒子が表面層を有すること、及び、中間層を有することは、下記の方法によって確認する。

【００６９】

ＸＰＳの定性分析（ワイドスキャン分析）を、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の表面から深さ方向に希ガスイオンによりエッチングしながら行い、少なくともチタン、ケイ素及び炭素の同定及び定量を行う。得られたデータから、少なくともチタン、ケイ素及び炭素それぞれについて、縦軸がピーク強度で横軸がエッチング時間である元素プロファイルを描く。プロファイル曲線を変曲点によって複数の領域に区別し、母粒子の元素組成を反映した領域、中間層の元素組成を反映した領域、及び表面層の元素組成を反映した領域を特定する。元素プロファイルに中間層の元素組成を反映した領域が存在する場合、シリカチタニア複合エアロゲル粒子が中間層を有すると判断する。元素プロファイルに表面層の元素組成を反映した領域が存在する場合、シリカチタニア複合エアロゲル粒子が表面層を有すると判断する。

以下、図２を例示して説明する。

【００７０】

図２は、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の元素プロファイルの一例であり、上から順に、チタンの元素プロファイル、ケイ素の元素プロファイル、炭素の元素プロファイルである。

図２に示す元素プロファイルは、プロファイル曲線の変曲点によって、領域Ａ、領域Ｂ、領域Ｃ及び領域Ｄに区別される。

領域Ａ：エッチングの最終期に存在する、チタンのピーク強度及びケイ素のピーク強度がほぼ一定である領域。

領域Ｂ：領域Ａの直前に存在する、粒子表面に近いほどチタンのピーク強度が小さく且つケイ素のピーク強度が大きい領域。

領域Ｃ：領域Ｂの直前に存在する、チタンのピーク強度がほぼ一定であり、且つ、ケイ素がほとんど検出されない領域。

領域Ｄ：エッチングの最初期に存在する、炭素のピーク強度がほぼ一定であり、且つ、金属元素も検出される領域。

【００７１】

領域Ａと領域Ｂとは、母粒子の元素組成を反映した領域である。母粒子が製造される際には、シリカチタニア複合体の材料であるアルコキシシランとチタンアルコキシドとの混合比に応じた割合でシリカとチタニアとが共有結合を形成して母粒子を形成する。ただし、

母粒子の表面にはチタニアよりもシリカが出現しやすい傾向がある。その結果、元素プロファイルには、エッチングの最終期に、チタンのピーク強度及びケイ素のピーク強度がほぼ一定である領域Ａと、領域Ａの直前に、粒子表面に近いほどチタンのピーク強度が小さく且つケイ素のピーク強度が大きい領域Ｂとが現れる。

【００７２】

領域Ｃは、中間層の元素組成を反映した領域である。領域Ｂの直前に、領域Ｃ、即ち、チタンのピーク強度がほぼ一定であり、且つ、ケイ素がほとんど検出されない領域が存在する場合、シリカチタニア複合エアロゲル粒子が「チタニアからなる層」である中間層を有すると判断する。

なお、領域Ｃは、中間層の元素組成を反映した領域ではあるが、必ずしも中間層に完全に一致するものではない。領域Ｃにおける領域Ｂに近い側には、母粒子の元素組成も反映されていることがある。

【００７３】

領域Ｄは、表面層の元素組成を反映した領域である。エッチングの最初期に、領域Ｄ、即ち、炭素のピーク強度がほぼ一定であり、且つ、金属元素も検出される領域が存在する場合、シリカチタニア複合エアロゲル粒子が「金属原子及び炭化水素基を有する金属化合物を含む層」である表面層を有すると判断する。

表面層における金属化合物を構成する金属原子の候補としては、ケイ素、アルミニウム、チタンが挙げられるので、必要に応じてＸＰＳによりアルミニウムの同定及び定量も行い、アルミニウムについても元素プロファイルを描く。

なお、領域Ｄは、表面層の元素組成を反映した領域ではあるが、必ずしも表面層に完全に一致するものではない。領域Ｄにおける領域Ｃに近い側には、中間層の元素組成又は母粒子の元素組成も反映されていることがある。

【００７４】

図２に示す元素プロファイルからは、母粒子と、中間層と、表面層とを有するシリカチタニア複合エアロゲル粒子であり、表面層における金属化合物を構成する金属原子がケイ素であると判断される。

【００７５】

以下、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子の層構成についてさらに説明する。

【００７６】

［母粒子］

母粒子は、ケイ素とチタンの複合酸化物であるシリカチタニア複合体を含み、ケイ素とチタンとの元素比Ｓｉ／Ｔｉの値が０を超えて６以下である。

【００７７】

母粒子におけるケイ素とチタンとの元素比Ｓｉ／Ｔｉの値は、可視光領域において光触媒機能を発現する観点から、０超６以下であり、０．０５以上４以下がより好ましく、０．１以上３以下が更に好ましい。

【００７８】

母粒子のＢＥＴ比表面積は、高い光触媒機能を発現する観点から、２００m^2／ｇ以上１２００m^2／ｇ以下が好ましく、３００m^2／ｇ以上１１００m^2／ｇ以下がより好ましく、４００m^2／ｇ以上１０００m^2／ｇ以下が更に好ましい。

【００７９】

母粒子の体積平均粒子径は、高い光触媒機能を発現する観点から、０．１μｍ以上３μｍ以下が好ましく、０．３μｍ以上２．８μｍ以下がより好ましく、０．４μｍ以上２．５μｍ以下が更に好ましい。

【００８０】

母粒子は、高い光触媒機能を発現する観点から、ケイ素とチタンの複合酸化物を含む一次粒子が多孔構造を形成しつつ凝集した凝集粒子であることが好ましい。この場合、母粒子を構成する一次粒子の平均径は、１ｎｍ以上９０ｎｍ以下が好ましく、５ｎｍ以上８０ｎ

ｍ以下がより好ましく、１０ｎｍ以上７０ｎｍ以下が更に好ましい。
【００８１】
母粒子の製造方法は、特に制限されないが、ＢＥＴ比表面積の範囲を前記範囲に制御する観点から、アルコキシシランとチタンアルコキシドを材料に用いたゾルゲル法が好ましい。ゾルゲル法によって製造された母粒子は、分散液中において、一次粒子が凝集して多孔構造を有する二次粒子を形成しており、前記範囲のＢＥＴ比表面積を実現できる。
【００８２】
母粒子は、アルコキシシランとチタンアルコキシドとの加水分解縮合物からなることが好ましい。ただし、アルコキシシラン又はチタンアルコキシドのアルコキシ基等の炭化水素基の一部が未反応のまま母粒子に残留していてもよい。
【００８３】
母粒子におけるシリカ成分及びチタニア成分の総含有量は、母粒子の全質量に対して、８０質量％以上が好ましく、９０質量％以上がより好ましく、９５質量％以上が更に好ましい。
【００８４】
［中間層］
中間層は、チタニアからなる層である。
【００８５】
中間層は、可視光応答性をより発現しやすい観点から、母粒子の表面に共有結合したチタニアを含むことがより好ましい。
【００８６】
中間層における原子間の化学結合状態は、ＸＰＳの高分解能分析（ナロースキャン分析）を行うことにより知ることができる。
【００８７】
中間層の厚さは、０．１ｎｍ以上３０ｎｍ以下が好ましく、０．２ｎｍ以上１０ｎｍ以下がより好ましく、０．３ｎｍ以上５ｎｍ以下が更に好ましい。中間層の厚さは、前述のプロファイル曲線において前述の領域Ｃを特定し、領域Ｃのエッチング時間から換算した値である。
【００８８】
中間層の形成方法は、特に制限されないが、チタンアルコキシドを材料に用いたゾルゲル法により、母粒子の表面に形成することが好ましい。詳しい形成方法は、後述する。
【００８９】
中間層は、チタンアルコキシドの加水分解縮合物からなることが好ましい。ただし、チタンアルコキシドのアルコキシ基等の炭化水素基の一部が未反応のまま中間層に残留していてもよい。
【００９０】
中間層は、ケイ素やアルミニウム等のチタン以外の金属元素を少量含んでいてもよい。中間層がケイ素を含む場合、ケイ素とチタンとの元素比Ｓｉ／Ｔｉが０以上０．０５以下までのケイ素含有は、シリカチタニア複合エアロゲル粒子が可視光領域において高い光触媒機能を発現することへの影響はない。
【００９１】
［表面層］
表面層は、金属原子及び炭化水素基を有する金属化合物を含む層である。本開示において、金属原子及び炭化水素基を有する金属化合物を「有機金属化合物」ともいう。有機金属化合物は、可視光応答性をより発現しやすい観点から、金属原子、炭素原子、水素原子及び酸素原子のみからなる金属化合物であることが好ましい。
【００９２】
表面層は、可視光応答性をより発現しやすい観点から、母粒子又は中間層に酸素原子を介して結合した有機金属化合物を含むことが好ましい。有機金属化合物は、可視光応答性をより発現しやすい観点から、該有機金属化合物中の金属原子Ｍに直接結合した酸素原子Ｏ

を介して母粒子又は中間層に結合していること、即ち、Ｍ－Ｏ－Ｔｉ又はＭ－Ｏ－Ｓｉなる共有結合によって母粒子又は中間層に結合していることが好ましい。

【００９３】

表面層に含まれる有機金属化合物は、可視光応答性をより発現しやすい観点から、金属原子Ｍと金属原子Ｍに直接結合した炭化水素基とを有する有機金属化合物であることが好ましい。該有機金属化合物は、該有機金属化合物中の金属原子Ｍに直接結合した酸素原子Ｏを介して母粒子又は中間層に結合していることが好ましい。即ち、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の表面には、可視光応答性をより発現しやすい観点から、炭化水素基と、金属原子Ｍと、酸素原子Ｏと、チタン原子Ｔｉ又はケイ素原子Ｓｉとが共有結合で順に連なった構造（炭化水素基－Ｍ－Ｏ－Ｔｉ又は炭化水素基－Ｍ－Ｏ－Ｓｉ）が存在することが好ましい。

【００９４】

表面層における原子間の化学結合状態は、ＸＰＳの高分解能分析（ナロースキャン分析）を行うことにより知ることができる。

【００９５】

表面層に含まれる有機金属化合物を構成する金属原子としては、可視光応答性をより発現しやすい観点から、ケイ素、アルミニウム又はチタンが好ましく、ケイ素又はアルミニウムがより好ましく、ケイ素が特に好ましい。

【００９６】

有機金属化合物が有する炭化水素基としては、炭素数１以上４０以下（好ましくは炭素数１以上２０以下、より好ましくは炭素数１以上１８以下、更に好ましくは炭素数４以上１２以下、更に好ましくは炭素数４以上１０以下）の飽和若しくは不飽和の脂肪族炭化水素基、又は、炭素数６以上２７以下（好ましくは炭素数６以上２０以下、より好ましくは炭素数６以上１８以下、更に好ましくは炭素数６以上１２以下、更に好ましくは炭素数６以上１０以下）の芳香族炭化水素基が挙げられる。

【００９７】

有機金属化合物が有する炭化水素基は、高い光触媒機能の発現及び分散性の向上の観点から、脂肪族炭化水素基であることが好ましく、飽和脂肪族炭化水素基であることがより好ましく、アルキル基であることが特に好ましい。脂肪族炭化水素基は、直鎖状、分岐鎖状及び環状のいずれでもよいが、分散性の観点から、直鎖状又は分岐鎖状が好ましい。脂肪族炭化水素基の炭素数は、１以上２０以下が好ましく、１以上１８以下がより好ましく、４以上１２以下が更に好ましく、４以上１０以下が更に好ましい。

【００９８】

有機金属化合物が有する飽和脂肪族炭化水素基としては、直鎖状アルキル基（メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ドデシル基、ヘキサデシル基、イコシル基等）、分岐鎖状アルキル基（イソプロピル基、イソブチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、２－エチルヘキシル基、ターシャリーブチル基、ターシャリーペンチル基、イソペンタデシル基等）、環状アルキル基（シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、トリシクロデシル基、ノルボルニル基、アダマンチル基等）などが挙げられる。

【００９９】

有機金属化合物が有する不飽和脂肪族炭化水素基としては、アルケニル基（ビニル基（エテニル基）、１－プロペニル基、２－プロペニル基、２－ブテニル基、１－ブテニル基、１－ヘキセニル基、２－ドデセニル基、ペンテニル基等）、アルキニル基（エチニル基、１－プロピニル基、２－プロピニル基、１－ブチニル基、３－ヘキシニル基、２－ドデシニル基等）などが挙げられる。

【０１００】

有機金属化合物が有する脂肪族炭化水素基には、置換された脂肪族炭化水素基が含まれる。脂肪族炭化水素基に置換し得る置換基としては、ハロゲン原子、エポキシ基、グリシジ

ル基、グリシドキシ基、メルカプト基、メタクリロイル基、アクリロイル基等が挙げられる。

【０１０１】

有機金属化合物が有する芳香族炭化水素基としては、フェニレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、ナフタレン基、アントラセン基等が挙げられる。

【０１０２】

有機金属化合物が有する芳香族炭化水素基には、置換された芳香族炭化水素基が含まれる。芳香族炭化水素基に置換し得る置換基としては、ハロゲン原子、エポキシ基、グリシジル基、グリシドキシ基、メルカプト基、メタクリロイル基、アクリロイル基等が挙げられる。

【０１０３】

表面層に含まれる有機金属化合物は、例えば、後述する表面処理工程において用いられた有機金属化合物に由来する。

【０１０４】

表面層を有するシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、可視光領域においても高い光触媒機能を発現することに加えて、下記の観点からも有利である。

【０１０５】

一般的に、シリカチタニア複合エアロゲル粒子は、樹脂中又は溶媒中での分散性がよくなく、それ故、塗膜の均一性が低く、光触媒機能が発揮されにくい傾向がある。

これに対して、表面層を有するシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、表面に有機金属化合物に由来する炭化水素基を有することにより、樹脂中又は溶媒中での分散性がよい。したがって、均一に近い塗膜が形成でき、効率よくシリカチタニア複合エアロゲル粒子に光が当たり、光触媒機能が発揮されやすい。また、外壁材、板、パイプ、不織布等の表面に、シリカチタニア複合エアロゲル粒子を含む塗料を塗着するとき、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の凝集又は塗布欠陥が抑制され、長期にわたり光触媒機能が発揮されやすい。

【０１０６】

表面層の厚さは、０．１ｎｍ以上３０ｎｍ以下が好ましく、０．２ｎｍ以上１０ｎｍ以下がより好ましく、０．３ｎｍ以上５ｎｍ以下が更に好ましい。表面層の厚さは、前述のプロファイル曲線において前述の領域Ｄを特定し、領域Ｄのエッチング時間から換算した値である。

【０１０７】

＜シリカチタニア複合エアロゲル粒子の製造方法＞

本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子の製造方法は、特に制限はない。例えば、ゾルゲル法によりシリカチタニア複合体を含む多孔質粒子を得て、この多孔質粒子を有機金属化合物により表面処理することにより得られる。この場合、表面処理した後に多孔質粒子を加熱処理して、加熱処理後の多孔質粒子を、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子とすることが好ましい。

【０１０８】

以下、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子の製造方法の形態例を説明する。

【０１０９】

本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子の製造方法は、少なくとも下記の（１）、（２）及び（３）を含み、更に（４）を含むことが好ましい。

（１）シリカチタニア複合体を含む多孔質粒子をゾルゲル法により造粒し、前記多孔質粒子及び溶媒を含有する分散液を調製する工程（分散液調製工程）。

（２）超臨界二酸化炭素を用いて前記分散液から前記溶媒を除去する工程（溶媒除去工程）。

（３）前記溶媒を除去した後の前記多孔質粒子を、金属原子及び炭化水素基を有する金属化合物により表面処理する工程（表面処理工程）。好ましくは、前記溶媒を除去した後の前記多孔質粒子を、超臨界二酸化炭素中で、金属原子及び炭化水素基を有する金属化合物

により表面処理する工程。
（４）前記表面処理した後の前記多孔質粒子を加熱処理する工程（加熱処理工程）。
【０１１０】
［（１）分散液調製工程］
分散液調製工程は、例えば、アルコキシシランとチタンアルコキシドとを材料にして、両者の反応（加水分解及び縮合）を生じさせてシリカチタニア複合体を生成し、シリカチタニア複合体を含む多孔質粒子が溶媒に分散した分散液を得る工程である。ここで、多孔質粒子は、シリカチタニア複合体を含む一次粒子が多孔構造を形成しつつ凝集した凝集粒子であることが好ましい。
【０１１１】
分散液調製工程は、具体的には、例えば下記の工程とする。
アルコールにアルコキシシラン及びチタンアルコキシドを添加し、撹拌下、そこに酸水溶液を滴下してアルコキシシランとチタンアルコキシドとを反応させてシリカチタニア複合体を生成し、シリカチタニア複合体を含む多孔質粒子がアルコールに分散した分散液を得る。
【０１１２】
中間層を母粒子表面に設けるために、分散液調製工程は、例えば、下記の２段階の工程とする。中間層を母粒子表面に設けない場合は、分散液調製工程を下記（ｉ）のみとする。
（ｉ）アルコールにアルコキシシラン及びチタンアルコキシドを添加し、撹拌下、そこに酸水溶液を滴下してアルコキシシランとチタンアルコキシドとを反応させてシリカチタニア複合体を生成し、シリカチタニア複合体を含む母粒子がアルコールに分散した分散液（第一の分散液）を得る。ここで、母粒子は、シリカチタニア複合体を含む一次粒子が多孔構造を形成しつつ凝集した凝集粒子であることが好ましい。
（ｉｉ）第一の分散液に、撹拌下、アルコールにチタンアルコキシドを混合してなる混合液を滴下して、母粒子とチタンアルコキシドとを反応させて母粒子表面に中間層が形成された多孔質粒子を生成し、該多孔質粒子がアルコールに分散した分散液（第二の分散液）を得る。
【０１１３】
前記（ｉ）におけるアルコキシシランとチタンアルコキシドとの混合比を調節することにより、母粒子におけるケイ素とチタンとの元素比Ｓｉ／Ｔｉを制御することができる。
【０１１４】
前記（ｉ）におけるアルコール量に対するアルコキシシランとチタンアルコキシドとの合計量により、母粒子を構成する一次粒子の粒径及び母粒子の粒径を制御することができ、アルコール量に対する前記合計量が多いほど、母粒子を構成する一次粒子の粒径が小さくなり、母粒子の粒径が大きくなる。アルコキシシランとチタンアルコキシドとの合計量は、アルコール１００質量部に対して、４質量部以上２５０質量部以下が好ましく、１０質量部以上５０質量部以下がより好ましい。
【０１１５】
前記（ｉ）に用いるアルコキシシランとしては、テトラメトキシシラン、テトラエトキシシラン、テトラプロポキシシラン、テトラブトキシシラン等のテトラアルコキシシラン、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、エチルトリエトキシシラン等のアルキルトリアルコキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン等のアルキルジアルコキシシランなどが挙げられる。これらは、１種を単独で用いてもよいし、２種以上を併用してもよい。
【０１１６】
前記（ｉ）及び前記（ｉｉ）に用いるチタンアルコキシドとしては、テトラメトキシチタン、テトラエトキシチタン、テトラプロポキシチタン、テトラブトキシチタン等のテトラアルコキシチタン、ジ－ｉ－プロポキシ・ビス（エチルアセトアセテート）チタニウム、ジ－ｉ－プロポキシ・ビス（アセチルアセトナート）チタニウム等のアルコキシ基の一部をキレート化したアルコキシチタンキレートなどが挙げられる。これらは、１種を単独で

用いてもよいし、２種以上を併用してもよい。前記（ｉ）に用いるチタンアルコキシドと、前記（ｉｉ）に用いるチタンアルコキシドとは、同種でもよく異種でもよい。

【０１１７】

前記（ｉ）及び前記（ｉｉ）に用いるアルコールとしては、メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール等が挙げられる。これらは、１種を単独で用いてもよいし、２種以上を併用してもよい。前記（ｉ）に用いるアルコールと、前記（ｉｉ）に用いるアルコールとは、同種でもよく異種でもよい。

【０１１８】

前記（ｉ）に用いる酸水溶液の酸としては、シュウ酸、酢酸、塩酸、硝酸等が挙げられる。酸水溶液の酸濃度は０．００１質量％以上１質量％以下が好ましく、０．００５質量％以上０．０１質量％以下がより好ましい。

【０１１９】

前記（ｉ）おける酸水溶液の滴下量は、アルコキシシランとチタンアルコキシドの合計量１００質量部に対して、０．００１質量部以上０．１質量部以下が好ましい。

【０１２０】

前記（ｉ）によって得られる第一の分散液は、固形分濃度が１質量％以上３０質量％以下であることが好ましい。

前記（ｉｉ）によって得られる第二の分散液は、固形分濃度が１質量％以上３０質量％以下であることが好ましい。

【０１２１】

［（２）溶媒除去工程］

溶媒除去工程は、超臨界二酸化炭素を、多孔質粒子及び溶媒を含有する分散液に接触させて、溶媒を除去する工程である。超臨界二酸化炭素による溶媒除去処理は、加熱による溶媒除去処理に比べて、多孔質粒子（特には、一次粒子が多孔構造を形成しつつ凝集した凝集粒子）の孔のつぶれや閉塞を起しにくい。溶媒除去工程が超臨界二酸化炭素によって溶媒を除去する工程であることにより、ＢＥＴ比表面積が２００ｍ^2／ｇ以上のシリカチタニア複合エアロゲル粒子を得ることができる。

【０１２２】

溶媒除去工程は、具体的には、例えば以下の操作によって行う。

密閉反応器に多孔質粒子分散液を投入し、次いで液化二酸化炭素を導入した後、密閉反応器を加熱すると共に高圧ポンプにより密閉反応器内を昇圧させ、密閉反応器内の二酸化炭素を超臨界状態とする。そして、密閉反応器に液化二酸化炭素を流入させ、密閉反応器から超臨界二酸化炭素を流出させることで、密閉反応器内において多孔質粒子分散液に超臨界二酸化炭素を流通させる。多孔質粒子分散液に超臨界二酸化炭素が流通する間に、溶媒が超臨界二酸化炭素に溶解し、密閉反応器外へ流出する超臨界二酸化炭素に同伴して溶媒が除去される。

【０１２３】

上記の密閉反応器内の温度及び圧力は、二酸化炭素を超臨界状態にする温度及び圧力とする。二酸化炭素の臨界点が３１．１℃／７．３８ＭＰａであるところ、例えば、温度５０℃以上２００℃以下／圧力１０ＭＰａ以上３０ＭＰａ以下の温度及び圧力とする。

【０１２４】

［（３）表面処理工程］

表面処理工程は、金属原子及び炭化水素基を有する金属化合物（本開示において「有機金属化合物」ともいう。）と多孔質粒子の表面とを反応させる工程である。表面処理工程において、有機金属化合物中の反応性基（例えば、ハロゲノ基、アルコキシ基等の加水分解性基）と、多孔質粒子の表面に存在する反応性基（例えば、水酸基）とが反応し、多孔質粒子の表面処理がなされる。表面処理工程は、大気中または窒素雰囲気下で行うことができる。表面処理工程は、超臨界二酸化炭素中で表面処理工程を行うことにより、有機金属化合物が多孔質粒子の細孔の奥深くまで到達し、多孔質粒子の細孔の奥深くまで表面処理がなされることから、超臨界二酸化炭素中で行うことが好ましい。

【０１２５】
表面処理工程は、例えば、有機金属化合物と多孔質粒子とを、撹拌下、超臨界二酸化炭素中で混合し反応させることで行われる。ほかに、表面処理工程は、例えば、有機金属化合物と溶媒とを混合してなる処理液を調製し、撹拌下、超臨界二酸化炭素中で多孔質粒子と処理液とを混合することで行われる。多孔質粒子の細孔構造を保ち比表面積を大きくするためには、（２）の工程の終了後に引き続き超臨界二酸化炭素中に有機金属化合物を投入し、超臨界二酸化炭素中で有機金属化合物を多孔質粒子の表面と反応させることが好ましい。
【０１２６】
表面処理工程の温度及び圧力は、二酸化炭素を超臨界状態にする温度及び圧力とする。例えば、温度５０℃以上２００℃以下／圧力１０ＭＰａ以上３０ＭＰａ以下の雰囲気で表面処理工程を行う。撹拌を持続する時間は、１０分間以上２４時間以下が好ましく、２０分間以上１２０分間以下がより好ましく、３０分間以上９０分間以下が更に好ましい。
【０１２７】
表面処理に用いる有機金属化合物としては、金属原子と該金属原子に直接結合した炭化水素基とを有する有機金属化合物が好ましい。有機金属化合物が複数個の炭化水素基を有する場合、少なくとも１個の炭化水素基が、該有機金属化合物中の金属原子に直接結合していることが好ましい。
【０１２８】
有機金属化合物の金属原子としては、ケイ素、アルミニウム又はチタンが好ましく、ケイ素又はアルミニウムがより好ましく、ケイ素が特に好ましい。
【０１２９】
有機金属化合物が有する炭化水素基としては、炭素数１以上４０以下（好ましくは炭素数１以上２０以下、より好ましくは炭素数１以上１８以下、更に好ましくは炭素数４以上１２以下、更に好ましくは炭素数４以上１０以下）の飽和若しくは不飽和の脂肪族炭化水素基、又は、炭素数６以上２７以下（好ましくは炭素数６以上２０以下、より好ましくは炭素数６以上１８以下、更に好ましくは炭素数６以上１２以下、更に好ましくは炭素数６以上１０以下）の芳香族炭化水素基が挙げられる。
【０１３０】
有機金属化合物が有する炭化水素基は、高い光触媒機能の発現及び分散性の向上の観点から、脂肪族炭化水素基であることが好ましく、飽和脂肪族炭化水素基であることがより好ましく、アルキル基であることが特に好ましい。脂肪族炭化水素基は、直鎖状、分岐鎖状及び環状のいずれでもよいが、分散性の観点から、直鎖状又は分岐鎖状が好ましい。脂肪族炭化水素基の炭素数は、１以上２０以下が好ましく、１以上１８以下がより好ましく、４以上１２以下が更に好ましく、４以上１０以下が更に好ましい。
【０１３１】
有機金属化合物としては、炭化水素基を有するシラン化合物が特に好ましい。炭化水素基を有するシラン化合物としては、例えば、クロロシラン化合物、アルコキシシラン化合物、シラザン化合物（ヘキサメチルジシラザン等）などが挙げられる。
【０１３２】
表面処理に用いる炭化水素基を有するシラン化合物としては、高い光触媒機能の発揮及び分散性の向上の観点から、式（１）：$R^1{}_nSiR^2{}_m$で表される化合物が好ましい。
【０１３３】
式（１）：$R^1{}_nSiR^2{}_m$において、R^1は炭素数１以上２０以下の飽和若しくは不飽和の脂肪族炭化水素基又は炭素数６以上２０以下の芳香族炭化水素基を表し、R^2はハロゲン原子又はアルコキシ基を表し、ｎは１以上３以下の整数を表し、ｍは１以上３以下の整数を表し、但しｎ＋ｍ＝４である。ｎが２又は３の整数である場合、複数のR^1は同じ基でもよいし、異なる基でもよい。ｍが２又は３の整数である場合、複数のR^2は同じ基でもよいし、異なる基でもよい。
【０１３４】

Ｒ^{1}で表される脂肪族炭化水素基は、直鎖状、分岐鎖状及び環状のいずれでもよいが、分散性の観点から、直鎖状又は分岐鎖状が好ましい。脂肪族炭化水素基の炭素数は、高い光触媒機能の発現及び分散性の向上の観点から、炭素数１以上２０以下が好ましく、炭素数１以上１８以下がより好ましく、炭素数４以上１２以下が更に好ましく、炭素数４以上１０以下が更に好ましい。脂肪族炭化水素基は、飽和及び不飽和のいずれでもよいが、高い光触媒機能の発現及び分散性の向上の観点から、飽和脂肪族炭化水素基が好ましく、アルキル基がより好ましい。

【０１３５】

飽和脂肪族炭化水素基としては、直鎖状アルキル基（メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ドデシル基、ヘキサデシル基、イコシル基等）、分岐鎖状アルキル基（イソプロピル基、イソブチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、２－エチルヘキシル基、ターシャリーブチル基、ターシャリーペンチル基、イソペンタデシル基等）、環状アルキル基（シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、トリシクロデシル基、ノルボルニル基、アダマンチル基等）などが挙げられる。

【０１３６】

不飽和脂肪族炭化水素基としては、アルケニル基（ビニル基（エテニル基）、１－プロペニル基、２－プロペニル基、２－ブテニル基、１－ブテニル基、１－ヘキセニル基、２－ドデセニル基、ペンテニル基等）、アルキニル基（エチニル基、１－プロピニル基、２－プロピニル基、１－ブチニル基、３－ヘキシニル基、２－ドデシニル基等）などが挙げられる。

【０１３７】

脂肪族炭化水素基は、置換された脂肪族炭化水素基も含む。脂肪族炭化水素基に置換し得る置換基としては、ハロゲン原子、エポキシ基、グリシジル基、グリシドキシ基、メルカプト基、メタクリロイル基、アクリロイル基等が挙げられる。

【０１３８】

Ｒ^{1}で表される芳香族炭化水素基は、炭素数６以上２０以下が好ましく、より好ましくは炭素数６以上１８以下、更に好ましくは炭素数６以上１２以下、更に好ましくは炭素数６以上１０以下である。

【０１３９】

芳香族炭化水素基としては、フェニレン基、ビフェニレン基、ターフェニレン基、ナフタレン基、アントラセン基等が挙げられる。

【０１４０】

芳香族炭化水素基は、置換された芳香族炭化水素基も含む。芳香族炭化水素基に置換し得る置換基としては、ハロゲン原子、エポキシ基、グリシジル基、グリシドキシ基、メルカプト基、メタクリロイル基、アクリロイル基等が挙げられる。

【０１４１】

Ｒ^{2}で表されるハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等が挙げられる。ハロゲン原子としては、塩素原子、臭素原子、又はヨウ素原子が好ましい。

【０１４２】

Ｒ^{2}で表されるアルコキシ基としては、炭素数１以上１０以下（好ましくは１以上８以下、より好ましくは３以上８以下）のアルコキシ基が挙げられる。アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、イソプロポキシ基、ｔ－ブトキシ基、ｎ－ブトキシ基、ｎ－ヘキシロキシ基、２－エチルヘキシロキシ基、３，５，５－トリメチルヘキシルオキシ基等が挙げられる。アルコキシ基は、置換されたアルコキシ基も含む。アルコキシ基に置換し得る置換基としては、ハロゲン原子、水酸基、アミノ基、アルコキシ基、アミド基、カルボニル基等が挙げられる。

【０１４３】

式（１）：Ｒ$^{1}{}_{n}$ＳｉＲ$^{2}{}_{m}$で表される化合物は、高い光触媒機能の発現及び分散性の向上の観点から、Ｒ^{1}が飽和脂肪族炭化水素基である化合物が好ましい。特に、式（１）：

$R^1_nSiR^2_m$で表される化合物は、R^1が炭素数１以上２０以下の飽和脂肪族炭化水素基であり、R^2がハロゲン原子又はアルコキシ基であり、ｎが１以上３以下の整数であり、ｍが１以上３以下の整数であり、但しｎ＋ｍ＝４であることが好ましい。

【０１４４】

式（１）：$R^1_nSiR^2_m$で表される化合物として、例えば、ビニルトリメトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、プロピルトリメトキシシラン、ブチルトリメトキシシラン、ヘキシルトリメトキシシラン、ｎ－オクチルトリメトキシシラン、デシルトリメトキシシラン、ドデシルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、エチルトリエトキシシラン、ブチルトリエトキシシラン、ヘキシルトリエトキシシラン、デシルトリエトキシシラン、ドデシルトリエトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、ｏ－メチルフェニルトリメトキシシラン、ｐ－メチルフェニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、ベンジルトリエトキシシラン、デシルトリクロロシラン、フェニルトリクロロシラン（以上、ｎ＝１、ｍ＝３）；

ジメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、メチルビニルジメトキシシラン、メチルビニルジエトキシシラン、ジフェニルジメトキシシラン、ジフェニルジエトキシシラン、ジメチルジクロロシラン、ジクロロジフェニルシラン（以上、ｎ＝２、ｍ＝２）；

トリメチルメトキシシラン、トリメチルエトキシシラン、トリメチルクロロシラン、デシルジメチルクロロシラン、トリフェニルクロロシラン（以上、ｎ＝３、ｍ＝１）；

３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、γ－メルカプトプロピルトリメトキシシラン、γ－クロロプロピルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルトリエトキシシラン、γ－（２－アミノエチル）アミノプロピルトリメトキシシラン、γ－（２－アミノエチル）アミノプロピルメチルジメトキシシラン、γ－グリシジルオキシプロピルメチルジメトキシシラン（以上、R^1が、置換された脂肪族炭化水素基又は置換された芳香族炭化水素基である化合物）；

などのシラン化合物が挙げられる。シラン化合物は、１種単独で用いてもよいし、２種以上を併用してもよい。

【０１４５】

式（１）で表されるシラン化合物における炭化水素基は、高い光触媒機能の発現及び分散性の向上の観点から、脂肪族炭化水素基であることが好ましく、飽和脂肪族炭化水素基であることがより好ましく、アルキル基であることが特に好ましい。上記シラン化合物における炭化水素基は、高い光触媒機能の発現及び分散性の向上の観点から、炭素数１以上２０以下の飽和脂肪族炭化水素基が好ましく、炭素数１以上１８以下の飽和脂肪族炭化水素基がより好ましく、炭素数４以上１２以下の飽和脂肪族炭化水素基が更に好ましく、炭素数４以上１０以下の飽和脂肪族炭化水素基が特に好ましい。

【０１４６】

有機金属化合物の金属原子がアルミニウムである化合物としては、例えば、ジ－ｉ－プロポキシアルミニウム・エチルアセトアセテート等のアルミニウムキレート；アセトアルコキシアルミニウムジイソプロピレート等のアルミネート系カップリング剤；などが挙げられる。

【０１４７】

有機金属化合物の金属原子がチタンである化合物としては、例えば、イソプロピルトリイソステアロイルチタネート、テトラオクチルビス（ジトリデシルホスファイト）チタネート、ビス（ジオクチルパイロホスフェート）オキシアセテートチタネート等のチタネート系カップリング剤；ジ－ｉ－プロポキシビス（エチルアセトアセテート）チタニウム、ジ－ｉ－プロポキシビス（アセチルアセトナート）チタニウム、ジ－ｉ－プロポキシビス（トリエタノールアミナート）チタニウム、ジ－ｉ－プロポキシチタンジアセテート、ジ－ｉ－プロポキシチタンジプロピオネート等のチタニウムキレート；などが挙げられる

【０１４８】

有機金属化合物は、１種単独で用いてもよいし、２種以上を併用してもよい。
【０１４９】
有機金属化合物と溶媒とを混合してなる処理液を用いる場合、処理液の調製に用いる溶媒としては、有機金属化合物と相溶性のある化学物質であれば特に制限されない。処理液の調製に用いる溶媒としては、メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール等のアルコール類、トルエン、酢酸エチル、アセトンなどの有機溶剤が好ましい。
【０１５０】
前記処理液において、有機金属化合物の量は、溶媒１００質量部に対して、１０質量部以上２００質量部以下が好ましく、２０質量部以上１８０質量部以下がより好ましく、５０質量部以上１５０質量部以下が更に好ましい。
【０１５１】
表面処理に用いる有機金属化合物の量は、多孔質粒子１００質量部に対して、１０質量部以上２００質量部以下が好ましく、２０質量部以上１８０質量部以下がより好ましく、３０質量部以上１５０質量部以下が更に好ましい。有機金属化合物の量を１０質量部以上にすると、可視光領域においても高い光触媒機能がより発現しやすく、また、分散性も高まる。有機金属化合物の量を２００質量部以下にすると、多孔質粒子の表面に存在する、有機金属化合物に由来する炭素量が過剰になることを抑え、余剰の炭素による光触媒機能の低下が抑制される。
【０１５２】
表面処理後は、余剰の有機金属化合物や前記処理液の溶媒等の残渣を除去する目的で乾燥処理を行うことがよい。乾燥処理は、噴霧乾燥、棚段乾燥等の公知の方法を用いることができるが、超臨界二酸化炭素を用いて、多孔質粒子を含む分散液から溶媒を除去する工程が好ましく、（３）の表面処理工程終了後に引き続き、超臨界二酸化炭素中で超臨界二酸化炭素を流通させて溶媒を除去する工程がより好ましい。具体的な操作は、前記（２）について述べた操作と同様でよい。
【０１５３】
［（４）加熱処理工程］
加熱処理工程により、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の可視光における光触媒機能がより向上する。詳細な機序は不明であるが、表面層に含まれる炭化水素基の一部が加熱処理により酸化又は炭化されることによって可視光に吸収を持つようになり、紫外光と共に可視光の光吸収によっても光電荷分離機能が働くことで光触媒機能が発現すると考えられる。これは、シリカチタニア複合エアロゲル粒子が可視吸収スペクトルにおいて波長４５０ｎｍ及び７５０ｎｍの各波長に吸収を持つことを示している。つまり、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の表面に存在する酸化又は炭化した炭化水素の一部または炭化した炭素により紫外光と共に可視光の光吸収によって選択的に電子を捕捉する作用が働く。これにより光吸収によって発生した電子と正孔が再結合する確率を低くしており、効率的に電荷の分離を促進し、この電荷分離の促進によりシリカチタニア複合エアロゲル粒子の可視光応答性が高まると推測される。
【０１５４】
加熱処理の温度は、光触媒機能の向上の観点から、１８０℃以上５００℃以下が好ましく、２００℃以上４５０℃以下がより好ましく、２５０℃以上４００℃以下が更に好ましい。加熱処理の時間は、光触媒機能の向上の観点から、１０分間以上２４時間以下が好ましく、２０分間以上３００分間以下がより好ましく、３０分間以上１２０分間以下が更に好ましい。
【０１５５】
加熱処理の温度を１８０℃以上５００℃以下とすることにより、可視光領域においても高い光触媒機能を発現するシリカチタニア複合エアロゲル粒子が効率的に得られる。１８０℃以上５００℃以下で加熱処理すると、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の表面に存在する有機金属化合物由来の炭化水素基が適度に酸化し、Ｃ－Ｃ結合又はＣ＝Ｃ結合の一部が、Ｃ－Ｏ結合又はＣ＝Ｏ結合に変化すると推測される。

【０１５６】
加熱処理は、酸素濃度（体積％）が１％以上２１％以下の雰囲気で行われることが好ましい。この酸素雰囲気で加熱処理を行うことにより、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の表面に存在する有機金属化合物由来の炭化水素基の酸化を、適度に且つ効率よく行うことができる。酸素濃度（体積％）は、３％以上２１％以下がより好ましく、５％以上２１％以下が更に好ましい。
【０１５７】
加熱処理の方法は、特に限定されず、例えば、電気炉、焼成炉（ローラーハースキルン、シャトルキルン等）、輻射式加熱炉、ホットプレート等による加熱；レーザー光、赤外線、ＵＶ、マイクロ波等による加熱；など公知の加熱方法を適用する。
【０１５８】
以上の工程を経て、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子が得られる。
【０１５９】
＜光触媒形成用組成物＞
本実施形態に係る光触媒形成用組成物は、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子と、分散媒及びバインダーからなる群から選ばれた少なくとも１種の化合物とを含む。
【０１６０】
本実施形態に係る光触媒形成用組成物の態様としては、例えば、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子及び分散媒を含む分散液；本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子及び有機又は無機バインダーを含む組成物；などが挙げられる。分散液は、粘度が高いペースト状のものであってもよい。
【０１６１】
前記分散媒としては、水、有機溶媒等が好ましく用いられる。水としては、例えば、水道水、蒸留水、純水などが挙げられる。有機溶媒としては、特に制限はなく、例えば、炭化水素系溶媒、エステル系溶媒、エーテル系溶媒、ハロゲン系溶媒、アルコール系溶媒等が挙げられる。前記分散液は、分散安定性及び保存安定性の観点から、分散剤及び界面活性剤からなる群から選ばれた少なくとも１種の化合物を含有することが好ましい。分散剤及び界面活性剤としては、公知の化学物質が用いられる。分散液は、バインダーをエマルションとして含んでいてもよい。
【０１６２】
前記組成物に用いられるバインダーとしては、特に制限はないが、フッ素樹脂、シリコーン樹脂、ポリエステル樹脂、アクリル樹脂、スチレン樹脂、アクリロニトリル／スチレン共重合樹脂、アクリロニトリル／ブタジエン／スチレン共重合（ＡＢＳ）樹脂、エポキシ樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアミド樹脂、ポリアミン樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエーテル樹脂、ポリサルファイド樹脂、ポリフェノール樹脂、これらの複合物、これらをシリコーン変性又はハロゲン変性させた樹脂等の有機系バインダー；ガラス、セラミック、金属粉などの無機系バインダー；が挙げられる。
【０１６３】
本実施形態に係る光触媒形成用組成物は、上記以外のその他の成分を含有してもよい。その他の成分としては、公知の添加剤が用いられ、例えば、助触媒、着色剤、充填剤、防腐剤、消泡剤、密着改良剤、増粘剤などが挙げられる。
【０１６４】
本実施形態に係る光触媒形成用組成物は、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子を１種単独で含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。
【０１６５】
本実施形態に係る光触媒形成用組成物における本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子の含有量は、特に制限はなく、分散液、樹脂組成物等の各種態様、及び、所望の光触媒量等に応じて、適宜選択すればよい。
【０１６６】

本実施形態に係る光触媒形成用組成物を用いる光触媒又は光触媒を有する構造体の製造方法としては、特に制限はなく、公知の付与方法が用いられる。本実施形態に係る光触媒形成用組成物の付与方法としては、例えば、スピンコーティング法、ディップコーティング法、フローコーティング法、スプレーコーティング法、ロールコーティング法、刷毛塗り法、スポンジ塗り法、スクリーン印刷法、インクジェット印刷法などが挙げられる。

【０１６７】

＜光触媒、構造体＞

本実施形態に係る光触媒は、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子を含む、又は、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子からなる。本実施形態に係る構造体は、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子を有する。

【０１６８】

本実施形態に係る光触媒は、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子のみからなる光触媒であってもよいし、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子に助触媒を混合した光触媒であっても、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子を接着剤や粘着剤により所望の形状に固めた光触媒であってもよい。

【０１６９】

本実施形態に係る構造体は、光触媒として、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子を有することが好ましい。本実施形態に係る構造体は、光触媒活性の観点から、本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子を少なくとも表面に有することが好ましい。

【０１７０】

本実施形態に係る構造体は、基材表面の少なくとも一部に本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子を有する構造体であることが好ましく、基材表面の少なくとも一部に本実施形態に係る光触媒形成用組成物を付与して形成された構造体であることが好ましい。該構造体において、本実施形態に係る光触媒形成用組成物を付与する量は、特に制限はなく、所望に応じて選択すればよい。

【０１７１】

本実施形態に係る構造体においては、基材表面に本実施形態に係るシリカチタニア複合エアロゲル粒子が付着した状態であっても、固定化されていてもよいが、光触媒の耐久性の観点から、固定化されていることが好ましい。固定化方法は、特に制限はなく、公知の固定化方法が用いられる。

【０１７２】

本実施形態に用いられる基材は、無機材料、有機材料を問わず種々の材料が挙げられ、その形状も限定されない。基材の好ましい例としては、金属、セラミック、ガラス、プラスチック、ゴム、石、セメント、コンクリート、繊維、布帛、木、紙、これらの組合せ、これらの積層体、これらの表面に少なくとも一層の被膜を有する物品が挙げられる。用途の観点からみた基材の好ましい例としては、建材、外装材、窓枠、窓ガラス、鏡、テーブル、食器、カーテン、レンズ、プリズム、乗物の外装及び塗装、機械装置の外装、物品の外装、防塵カバー及び塗装、交通標識、各種表示装置、広告塔、道路用遮音壁、鉄道用遮音壁、橋梁、ガードレールの外装及び塗装、トンネル内装及び塗装、碍子、太陽電池カバー、太陽熱温水器集熱カバー、ポリマーフィルム、ポリマーシート、フィルター、屋内看板、屋外看板、車両用照明灯のカバー、屋外用照明器具、空気清浄器、浄水器、医療用器具、介護用品などが挙げられる。

【実施例】

【０１７３】

以下、実施例により発明の実施形態を詳細に説明するが、発明の実施形態は、これら実施例に何ら限定されるものではない。以下の説明において、特に断りのない限り、「部」はすべて質量基準である。

【０１７４】

＜実施例１＞

［分散液調製工程］
反応容器にメタノール１１５．４部とテトラメトキシシラン７．２部を仕込み混合した。さらにテトラブトキシチタン７．２部を仕込み混合した。混合液をマグネティックスターラーで１００ｒｐｍで撹拌しながら、０．００９質量％シュウ酸水溶液７．５部を３０秒かけて滴下した。そのまま撹拌しながら３５分間保持し、第一の分散液（Ｉ－１）を１３７．２部（固形分：４．５部、液相分：１３２．７部）得た。
【０１７５】
［溶媒除去工程］
反応槽に第一の分散液（Ｉ－１）を１３７．２部投入し、８５ｒｐｍで撹拌しながらCO_2を入れて１５０℃／２０ＭＰａまで昇温昇圧した。そのまま撹拌しながらCO_2を流入及び流出させ、６０分かけて液相を１３０部除去した。
【０１７６】
［表面処理工程］
液相を除去した後に残った固相に、イソブチルトリメトキシシラン４部とメタノール４．５部との混合物を５分かけて添加し、８５ｒｐｍで撹拌しながら１５０℃／２０ＭＰａのまま３０分間保持した。そのまま撹拌しながらCO_2を流入及び流出させ、３０分かけて液相を８．５部除去した。３０分かけて大気圧まで減圧し、粉を５．０部回収した。
【０１７７】
［加熱処理工程］
ＳＵＳ容器に粉を０．５部計量し、酸素濃度（体積％）を１８％に設定した電気炉で３８０℃、６０分間の加熱処理を行い、３０℃になるまで放冷し、粉（シリカチタニア複合エアロゲル粒子）を０．５部回収した。
【０１７８】
＜比較例１～６、実施例２～２３＞
実施例１と同様にして、但し表１～表２に記載のとおりに材料又は処理条件を変更して、各シリカチタニア複合エアロゲル粒子を作製した。
【０１７９】
＜実施例１０１＞
［分散液調製工程］
反応容器にメタノール１１５．４部とテトラメトキシシラン７．２部を仕込み混合した。さらにテトラブトキシチタン７．２部を仕込み混合した。混合液をマグネティックスターラーで１００ｒｐｍで撹拌しながら、０．００９質量％シュウ酸水溶液７．５部を３０秒かけて滴下した。そのまま撹拌しながら３５分間保持し、第一の分散液（Ｉ－１）を１３７．２部（固形分：４．５部、液相分：１３２．７部）得た。
【０１８０】
反応容器に第一の分散液（Ｉ－１）を１３７．２部仕込み、マグネティックスターラーで１００ｒｐｍで撹拌しながら、テトラブトキシチタン０．４５部とブタノール４．０５部との混合液を１０分かけて滴下した。そのまま撹拌しながら３０分間保持し、第二の分散液（ＩＩ－１）を１４１．７部（固形分：３．５部、液相分：１３８．２部）得た。
【０１８１】
［溶媒除去工程］
反応槽に第二の分散液（ＩＩ－１）を１４１．７部投入し、８５ｒｐｍで撹拌しながらCO_2を入れて１５０℃／２０ＭＰａまで昇温昇圧した。そのまま撹拌しながらCO_2を流入及び流出させ、６０分かけて液相を１３８部除去した。
【０１８２】
［表面処理工程］
液相を除去した後に残った固相に、イソブチルトリメトキシシラン４．１部とメタノール４．５部との混合物を５分かけて添加し、８５ｒｐｍで撹拌しながら１５０℃／２０ＭＰａのまま３０分間保持した。そのまま撹拌しながらCO_2を流入及び流出させ、３０分かけて液相を８．５部除去した。３０分かけて大気圧まで減圧し、粉を４．０部回収した。

【０１８３】
［加熱処理工程］
ＳＵＳ容器に粉を０．５部計量し、酸素濃度（体積％）を１８％に設定した電気炉で３８０℃、６０分間の加熱処理を行い、３０℃になるまで放冷し、粉（シリカチタニア複合エアロゲル粒子）を０．５部回収した。
【０１８４】
＜比較例１０１～１０６、実施例１０２～１２３＞
実施例１０１と同様にして、但し表３～表４に記載のとおりに材料又は処理条件を変更して、各シリカチタニア複合エアロゲル粒子を作製した。
【０１８５】
＜シリカチタニア複合エアロゲル粒子の物性の測定＞
各例で得られたシリカチタニア複合エアロゲル粒子について、下記の測定方法に従って各物性を測定した。表５～表６に、その結果を示す。表５～表６中の「ＵＶ－Ｖｉｓ特性」は、波長３５０ｎｍの吸光度を１としたときの、波長４５０ｎｍ、波長６００ｎｍ及び波長７５０ｎｍそれぞれの吸光度である。
【０１８６】
［母粒子における元素比Ｓｉ／Ｔｉ］
ＸＰＳ分析装置を使用し、下記の設定で、シリカチタニア複合エアロゲル粒子の表面から深さ方向にエッチングしながら定性分析（ワイドスキャン分析）を行い、チタン、ケイ素及び炭素の同定及び定量を行った。得られたデータから、チタン、ケイ素及び炭素それぞれについて、縦軸がピーク強度で横軸がエッチング時間である元素プロファイルを描き、プロファイル曲線を変曲点によって複数の領域に区別し、チタンのピーク強度及びケイ素のピーク強度がほぼ一定である領域（前述の領域Ａ）を特定し、該領域における元素比Ｓｉ／Ｔｉを求めた。
【０１８７】
・ＸＰＳ分析装置：アルバック・ファイ社製、Versa ProbeII
・Ｘ線源：単色化ＡｌＫα線
・加速電圧：１５ｋＶ
・Ｘ線ビーム径：１００μｍ
・エッチング銃：アルゴンイオンビーム
・エッチング出力：４ｋＶ
【０１８８】
実施例１～２３のシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、元素プロファイルから、母粒子上に表面層を有していることが確認された。
実施例１０１～１２３のシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、元素プロファイルから、母粒子上に中間層及び表面層を有していることが確認された。
【０１８９】
［ＸＰＳピーク強度比］
超臨界CO_2処理後に残留したCO_2をシリカチタニア複合エアロゲル粒子の孔から除去する目的で、真空定温乾燥機（東京理科器械株式会社製、型式ＶＯＳ－４５０ＶＤ）を用い、温度２５℃、減圧度１３３Ｐａの条件で３時間の脱気処理を実施した。
【０１９０】
次いで、ＸＰＳ分析装置を使用し、下記の設定で炭素１ｓ軌道のＸＰＳスペクトルを測定し、｛（Ｃ－Ｏ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｏ結合のピーク強度）÷（Ｃ－Ｃ結合のピーク強度＋Ｃ＝Ｃ結合のピーク強度）｝を求めた。
【０１９１】
・ＸＰＳ分析装置：アルバック・ファイ社製、Versa ProbeII
・Ｘ線源：単色化ＡｌＫα線
・出力：２５Ｗ
・加速電圧：１５ｋＶ

・Ｘ線ビーム径：１００μｍ
・信号取り出し角度：４５°
・パスエネルギー：２３．５ｅＶ
・帯電中和銃１．０Ｖ／イオン銃１０Ｖ
【０１９２】
［ＢＥＴ比表面積］
比表面積測定装置としてマウンテック社製「ＭａｃｓｏｒｂＨＭｍｏｄｅｌ－１２０１」を使用し、５０ｍｇの試料に脱気のために３０℃／１２０分の前処理を行い、純度９９．９９％以上の窒素ガスを用いたＢＥＴ多点法にてＢＥＴ比表面積を求めた。
【０１９３】
［母粒子を構成する一次粒子の平均径（平均一次粒子径）］
体積平均粒子径８μｍの樹脂粒子（スチレン－アクリル酸ブチル共重合体粒子、共重合比（質量比）８０：２０、重量平均分子量１３万、ガラス転移温度５９℃）１００部と、シリカチタニア複合エアロゲル粒子１．０部とを、サンプルミル（協立理工株式会社製、型式ＳＫ－Ｍ２型）を用いて１３０００ｒｐｍで２分間混合した。
樹脂粒子に分散させたシリカチタニア複合エアロゲル粒子を、走査型電子顕微鏡（株式会社日立製作所製、Ｓ－４１００）により観察して画像を撮影した。この際、図１に模式的に示すように凝集粒子を形成している個々の粒子を一次粒子とし、走査型電子顕微鏡を一次粒子が画像解析できる倍率に調整して画像を撮影した。撮影した画像を画像解析装置（株式会社ニレコ製、ＬＵＺＥＸＩＩＩ）に取り込み、一次粒子の画像解析によって粒子ごとの面積を求め、面積から円相当径（ｎｍ）を算出し、円相当径の平均を平均一次粒子径（ｎｍ）とした（表５～表６中「Ｄｐ」と表記する。）。平均一次粒子径は、一次粒子１０個から５０個程度を解析して求めた。
【０１９４】
［シリカチタニア複合エアロゲル粒子の体積平均粒子径及び体積粒度分布］
体積平均粒子径８μｍの樹脂粒子（スチレン－アクリル酸ブチル共重合体粒子、共重合比（質量比）８０：２０、重量平均分子量１３万、ガラス転移温度５９℃）１００部と、シリカチタニア複合エアロゲル粒子１．０部とを、サンプルミル（協立理工株式会社製、型式ＳＫ－Ｍ２型）を用いて１３０００ｒｐｍで２分間混合した。
混合粒子をビーカーに０．１ｇ入れ、陰イオン性界面活性剤（テイカパワーＢＮ２０６０、テイカ株式会社製）をイオン交換水にて濃度１２％に希釈した界面活性剤水溶液を１．５ｇ添加し、混合粒子を充分にぬらした。次いで、純水５ｇを添加し、超音波分散機で３０分間分散した後、Ｎｏ．５Ｃの濾紙にて樹脂粒子を除去し、シリカチタニア複合エアロゲル粒子分散液を得た。シリカチタニア複合エアロゲル粒子分散液中の粒子の粒子径を動的光散乱式粒度測定装置（ナノトラックＵＰＡ－ＳＴ、マイクロトラック・ベル社製）を用いて測定し、体積基準の粒度分布を得た。小径側から累積５０％となる粒子径Ｄ５０ｖを求め、Ｄ５０ｖを体積平均粒子径（μｍ）とした（表５～表６中「Ｄａ」と表記する。）。また、小径側から累積１０％となる粒子径Ｄ１０ｖと、小径側から累積９０％となる粒子径Ｄ９０ｖとを求め、体積粒度分布ＧＳＤｖ＝（Ｄ９０ｖ÷Ｄ１０ｖ）$^{1/2}$を算出した。
【０１９５】
［紫外可視吸収スペクトル］
シリカチタニア複合エアロゲル粒子をテトラヒドロフランに分散させた後、ガラス基板上に塗布し、大気中、２４℃で乾燥させた。分光光度計Ｕ－４１００（日立ハイテクノロジーズ社製）を使用し、スキャンスピード：６００ｎｍ、スリット幅：２ｎｍ、サンプリング間隔：１ｎｍに設定して、拡散反射配置で、波長２００ｎｍ乃至９００ｎｍの範囲の拡散反射スペクトルを測定した。拡散反射スペクトルから、Kubelka-Munk変換により理論的に各波長における吸光度を求め、紫外可視吸収スペクトルを得た。
【０１９６】
実施例１～２３及び実施例１０１～１２３のシリカチタニア複合エアロゲル粒子は、波長

４００ｎｍ以上８００ｎｍ以下の全範囲に吸収を有していた。
【０１９７】
＜シリカチタニア複合エアロゲル粒子の性能評価＞
［ガス吸着性とガス分解性］
各例で得られたシリカチタニア複合エアロゲル粒子の活性として、下記のとおり、ガス吸着性と、可視光照射によるガス分解性とを評価した。表５～表６に、その結果を示す。
【０１９８】
各例で得られたシリカチタニア複合エアロゲル粒子を固形分濃度が４質量％になるように、メタノールに分散させた。その分散液を顕微鏡用ガラスプレートの半分（面積１０ｃｍ２）に０．２５ｇ塗布した後、充分に乾燥し、ガラスプレートの表面（半分）に均一に粒子を付着させた試験片を作製した。試験片は、各例のシリカチタニア複合エアロゲル粒子ごとに２つずつ作製した。
【０１９９】
試験片を作製後ただちに容量１Ｌの１つ口コック付きテドラーバックに入れ（テドラーバック１つにつき試験片を１つ入れた。）、テドラーバック内の空気を押し出し密封した後、塗布面を上にして暗所に置き、性能評価試験まで保管した。
【０２００】
性能評価試験は、以下の手順で行った。
先ず、試験片入りテドラーバックのコックから内部の残存エアーを吸引器で全て排出し、次いで、１００ｐｐｍ濃度のアンモニアガスを８００ｍｌ注入した。次いで、同種２つの、試験片入りテドラーバックの一方には、波長４００ｎｍ以上８００ｎｍ以下の可視光を照射する発光ダイオード（ＬＥＤ）を使用して可視光（試験片表面で５，５００ＬＸ（ルクス））を連続照射した。同種２つの、試験片入りテドラーバックのもう一方は、光の当たらない暗箱に入れ１時間保管した。
可視光１時間連続照射後の試験片入りテドラーバック、暗箱で１時間保管した試験片入りテドラーバック、それぞれのテドラーバック内のアンモニアガス濃度を、検知管（ガステック社製）を用いて測定した。そして、下記の式から、アンモニアガス吸着性の指標ΔＡと、可視光照射によるアンモニアガス分解率ΔＳとを求めた。
【０２０１】
・Ｓ１＝可視光１時間連続照射後のテドラーバック内のアンモニアガス濃度（ｐｐｍ）
・Ｓ２＝暗箱で１時間保管した後のテドラーバック内のアンモニアガス濃度（ｐｐｍ）
・アンモニアガス吸着性の指標ΔＡ（ｐｐｍ）＝１００－Ｓ２
・アンモニアガス分解率ΔＳ（％）＝（Ｓ２－Ｓ１）÷Ｓ２×１００
【０２０２】
上記の値から、ガス吸着性とガス分解性を下記のとおり評価した。
【０２０３】
－ガス吸着性－
Ｇ１（◎）：９０≦ΔＡ、吸着性が非常に良好。
Ｇ２（○）：７０≦ΔＡ＜９０、吸着性が良好。
Ｇ３（△）：５０≦ΔＡ＜７０、吸着性がやや良好。
Ｇ４（×）：ΔＡ＜５０、吸着性が不良。
【０２０４】
－ガス分解性－
Ｇ１（◎）：３０≦ΔＳ、分解性が非常に良好。
Ｇ２（○）：１５≦ΔＳ＜３０、分解性が良好。
Ｇ３（△）：５≦ΔＳ＜１５、分解性がやや良好。
Ｇ４（×）：ΔＳ＜５、分解性が不良。
【０２０５】
［粗大粒子の量］
目開き２０μｍの篩を用意し、その重量を０．０１ｇ単位まで精密計量した。シリカチタ

ニア複合エアロゲル粒子１．００ｇを集塵機で吸引しながら前記篩を通過させた。その際、篩上の凝集物を刷毛を使って解砕しながら篩を通過させ、解砕されない強固な凝集物を篩上に残した。シリカチタニア複合エアロゲル粒子を通過させる前後の篩の重量（ｇ）から、下記式により粗大粒子指数を算出した。表５～表６に、その結果を示す。

【０２０６】

粗大粒子指数（％）＝（通過後の篩の重量－通過前の篩の重量）÷１．００×１００

【０２０７】

Ａ（○）：粗大粒子指数が１％以下。

Ｂ（△）：粗大粒子指数が１％超、５％以下。

Ｃ（×）：粗大粒子指数が５％超。

【０２０８】

【表１】

	分散液調製								溶媒除去	表面処理				加熱処理		
	第一の分散液							第二の分散液								
	アルコール		アルコキシシラン		チタンアルコキシド		保持時間[分]	第一の分散液[部]	処理雰囲気	処理雰囲気	有機金属化合物		保持時間[分]	温度[℃]	時間[分]	酸素濃度[体積%]
	種	量[部]	種	量[部]	種	量[部]					種	量[部]				
実施例1	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35		超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	4		380	60	18
比較例1	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	10.9	テトラブトキシチタン	3.4	35		超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	4		380	60	28
比較例2	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35		超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	1		110	60	20
比較例3	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35		超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	6.5		580	80	21
比較例4	メタノール	450	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35		超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	4.5		380	60	20
比較例5	メタノール	5	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35		超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	4.5		380	60	20
比較例6	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35		超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	3		—	—	—
実施例2	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	10.3	テトラブトキシチタン	4	35		超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	4		380	60	20
実施例3	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	0.3	テトラブトキシチタン	14	35		超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	4		380	60	19
実施例4	メタノール	346.2	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35		超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	4		380	60	20
実施例5	メタノール	23.1	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35		超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	4		380	60	20
実施例6	ブタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35		超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	4		380	60	20
実施例7	メタノール	115.4	テトラエトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35		超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	4		380	60	20
実施例8	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラプロポキシチタン	7.2	35		超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	4		380	60	20

【０２０９】

【表２】

	分散液調製												溶媒除去	表面処理			加熱処理		
	第一の分散液						第二の分散液						処理雰囲気	処理雰囲気	有機金属化合物		温度[℃]	時間[分]	酸素濃度[体積%]
	アルコール		アルコキシシラン		チタンアルコキシド		第一の分散液[部]	チタンアルコキシド		アルコール		保持時間[分]			種	量[部]			
	種	量[部]	種	量[部]	種	量[部]		種	量[部]	種	量[部]								
実施例9	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	超臨界CO2	ヘキシルトリメトキシシラン	4.5	380	60	21
実施例10	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	超臨界CO2	デシルトリメトキシシラン	5.2	380	60	21
実施例11	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	超臨界CO2	メチルトリメトキシシラン	3.1	380	60	21
実施例12	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	超臨界CO2	ドデシルトリメトキシシラン	5.5	380	60	21
実施例13	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	超臨界CO2	オクタデシルトリメトキシシラン	4.8	380	60	21
実施例14	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	超臨界CO2	オクチルトリクロロシラン	3.6	380	60	21
実施例15	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	超臨界CO2	ジメトキシ（メチル）（オクチル）シラン	3.4	380	60	21
実施例16	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	超臨界CO2	トリ-n-ヘキシルクロロシラン	3.4	380	60	21
実施例17	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	超臨界CO2	n-オクチルジメチルクロロシラン	4.2	380	60	21
実施例18	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	超臨界CO2	ヘキサメチルジシラザン	4.5	380	60	21
実施例19	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	超臨界CO2	イソプロピルトリイソステアロイルチタネート	3.4	380	60	21
実施例20	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	超臨界CO2	アセトアルコキシアルミニウムジイソプロピレート	3.5	380	60	21
実施例21	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	窒素（乾式）	イソブチルトリメトキシシラン	3.6	380	60	21
実施例22	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	3.4	180	60	21
実施例23	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	—	（中間層なし）				超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	3.4	500	60	21

【０２１０】

【表３】

	分散液調製													溶媒除去	表面処理				加熱処理		
	第一の分散液								第二の分散液												
	アルコール		アルコキシシラン		チタンアルコキシド			第一の分散液[部]	チタンアルコキシド			アルコール			処理雰囲気	有機金属化合物			温度[℃]	時間[分]	酸素濃度[体積%]
	種	量[部]	種	量[部]	種	量[部]	保持時間[分]		種	量[部]	保持時間[分]	種	量[部]			種	量[部]				
実施例101	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	30	ブタノール	4.05	超臨界CO2	超臨界CO2	インプチルトリメトキシシラン	4.1	380	60	18
比較例101	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	10.9	テトラブトキシチタン	3.4	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	30	ブタノール	4.05	超臨界CO2	超臨界CO2	インプチルトリメトキシシラン	4.1	380	60	28
比較例102	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	30	ブタノール	4.05	超臨界CO2	超臨界CO2	インプチルトリメトキシシラン	1	110	60	20
比較例103	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	30	ブタノール	4.05	超臨界CO2	超臨界CO2	インプチルトリメトキシシラン	6	580	60	20
比較例104	メタノール	450	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	30	ブタノール	4.05	超臨界CO2	超臨界CO2	インプチルトリメトキシシラン	4.5	380	60	20
比較例105	メタノール	5	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	30	ブタノール	4.05	超臨界CO2	超臨界CO2	インプチルトリメトキシシラン	4.1	380	60	21
比較例106	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	30	ブタノール	4.05	超臨界CO2	超臨界CO2	インプチルトリメトキシシラン	3.4	—	—	—
実施例102	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	10.3	テトラブトキシチタン	4	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	30	ブタノール	4.05	超臨界CO2	超臨界CO2	インプチルトリメトキシシラン	4.1	380	60	20
実施例103	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	0.3	テトラブトキシチタン	14	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	30	ブタノール	4.05	超臨界CO2	超臨界CO2	インプチルトリメトキシシラン	4.1	380	60	19
実施例104	メタノール	346.2	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	30	ブタノール	4.05	超臨界CO2	超臨界CO2	インプチルトリメトキシシラン	4.1	380	60	20
実施例105	メタノール	23.1	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	30	ブタノール	4.05	超臨界CO2	超臨界CO2	インプチルトリメトキシシラン	4.1	380	60	20
実施例106	ブタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	30	ブタノール	4.05	超臨界CO2	超臨界CO2	インプチルトリメトキシシラン	4.1	380	60	20
実施例107	メタノール	115.4	テトラエトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	30	ブタノール	4.05	超臨界CO2	超臨界CO2	インプチルトリメトキシシラン	4.1	380	60	20
実施例108	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブロボキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	30	ブタノール	4.05	超臨界CO2	超臨界CO2	インプチルトリメトキシシラン	4.1	380	60	20

【０２１１】

【表４】

	分散液調製										溶媒除去	表面処理				加熱処理		
	第一の分散液						第二の分散液						有機金属化合物					
	アルコール		アルコキシシラン		チタンアルコキシド			チタンアルコキシド		アルコール						温度 [℃]	時間 [分]	酸素濃度 [体積%]
	種	量 [部]	種	量 [部]	種	量 [部]	保持時間 [分]	第一の分散液 [部]	種	量 [部]	種	量 [部]	保持時間 [分]	処理雰囲気	処理雰囲気	種	量 [部]			
実施例109	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	超臨界CO2	ヘキシルトリメトキシシラン	4.3	380	60	21
実施例110	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	超臨界CO2	デシルトリメトキシシラン	5.1	380	60	21
実施例111	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	超臨界CO2	メチルトリメトキシシラン	3	380	60	21
実施例112	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	超臨界CO2	ドデシルトリメトキシシラン	5.4	380	60	21
実施例113	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	超臨界CO2	オクタデシルトリメトキシシラン	4.5	380	60	21
実施例114	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	超臨界CO2	オクチルトリクロロシラン	3.5	380	60	21
実施例115	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	超臨界CO2	ジメトキシ(メチル)(オクチル)シラン	3.3	380	60	21
実施例116	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	超臨界CO2	トリ-n-ヘキシルクロロシラン	3.3	380	60	21
実施例117	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	超臨界CO2	n-オクチルジメチルクロロシラン	4.1	380	60	21
実施例118	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	超臨界CO2	ヘキサメチルジシラザン	4.4	380	60	21
実施例119	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	超臨界CO2	イソプロピルトリイソステアロイルチタネート	3.4	380	60	21
実施例120	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	超臨界CO2	アセトアルコキシアルミニウムジイソプロピレート	3.6	380	60	21
実施例121	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	窒素(乾式)	イソブチルトリメトキシシラン	3.5	380	60	21
実施例122	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	3.4	180	60	21
実施例123	メタノール	115.4	テトラメトキシシラン	7.2	テトラブトキシチタン	7.2	35	137.2	テトラブトキシチタン	0.45	ブタノール	4.05	30	超臨界CO2	超臨界CO2	イソブチルトリメトキシシラン	3.4	500	60	21

【０２１２】

【表５】

	シリカチタニア複合エアロゲル粒子の特性						UV-Vis特性			性能評価		
	母粒子の元素比 Si／Ti	XPSピーク強度比	BET比表面積 [m2/g]	Dp [nm]	Da [μm]	GSDv	450nm吸光度	600nm吸光度	750nm吸光度	ガス吸着性	ガス分解性	粗大粒子量
実施例1	3.2	0.15	710	55	0.52	2.7	0.50	0.39	0.23	G1(◎)	G1(◎)	A(○)
比較例1	7.1	0.16	750	45	0.55	3.2	0.59	0.33	0.23	G1(◎)	G4(×)	A(○)
比較例2	2.9	0.01	710	55	0.52	2.7	0.02	0.01	0	G1(◎)	G4(×)	A(○)
比較例3	2.8	0.42	710	55	0.55	2.7	0.02	0	0	G1(◎)	G4(×)	A(○)
比較例4	2.7	0.16	190	115	0.21	1.3	0.60	0.35	0.24	G4(×)	G2(○)	A(○)
比較例5	2.7	0.14	1250	19	4.60	12	0.61	0.36	0.23	G1(◎)	G2(○)	C(×)
比較例6	3.1	0.15	710	45	0.52	2.7	0	0	0	G1(◎)	G4(×)	A(○)
実施例2	5.8	0.15	690	45	0.52	2.6	0.62	0.40	0.22	G1(◎)	G2(○)	A(○)
実施例3	0.04	0.16	410	75	0.55	2.6	0.69	0.37	0.25	G2(○)	G1(◎)	A(○)
実施例4	3.2	0.14	210	85	0.15	1.6	0.61	0.39	0.21	G2(○)	G1(◎)	A(○)
実施例5	3.3	0.16	1100	23	2.70	9.5	0.62	0.41	0.22	G1(◎)	G1(◎)	B(△)
実施例6	3.1	0.14	590	45	0.45	2.7	0.63	0.40	0.23	G1(◎)	G1(◎)	A(○)
実施例7	2.5	0.15	610	55	0.51	2.7	0.61	0.41	0.25	G1(◎)	G1(◎)	A(○)
実施例8	2.7	0.16	540	65	0.52	2.7	0.61	0.39	0.22	G1(◎)	G1(◎)	A(○)
実施例9	3.1	0.16	610	55	0.51	2.7	0.61	0.37	0.23	G1(◎)	G1(◎)	A(○)
実施例10	2.9	0.14	605	55	0.52	2.6	0.62	0.37	0.23	G1(◎)	G1(◎)	A(○)
実施例11	3.3	0.14	595	55	0.52	2.6	0.62	0.35	0.21	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例12	3.1	0.15	585	55	0.51	2.6	0.63	0.40	0.24	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例13	2.8	0.15	610	55	0.51	2.6	0.61	0.37	0.23	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例14	2.9	0.14	620	45	0.49	2.6	0.59	0.38	0.22	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例15	3.1	0.15	600	45	0.51	2.6	0.62	0.38	0.26	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例16	2.9	0.16	605	45	0.52	2.6	0.59	0.39	0.22	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例17	2.8	0.14	590	55	0.51	2.6	0.61	0.37	0.21	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例18	3.1	0.16	595	45	0.52	2.6	0.59	0.37	0.23	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例19	3.1	0.14	595	45	0.52	2.6	0.62	0.35	0.20	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例20	3.1	0.15	605	45	0.52	2.6	0.61	0.37	0.24	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例21	2.8	0.15	495	55	0.80	2.4	0.66	0.40	0.24	G3(△)	G1(◎)	A(○)
実施例22	2.9	0.04	510	45	0.46	2.4	0.21	0.14	0.11	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例23	2.9	0.29	640	45	0.45	2.4	0.22	0.10	0.08	G2(○)	G2(○)	A(○)

【０２１３】

【表６】

	シリカチタニア複合エアロゲル粒子の特性						UV-Vis特性			性能評価		
	母粒子の元素比 Si／Ti	XPSピーク強度比	BET比表面積［m2/g］	Dp［nm］	Da［μm］	GSDv	450nm吸光度	600nm吸光度	750nm吸光度	ガス吸着性	ガス分解性	粗大粒子量
実施例101	3.0	0.14	705	54	0.50	2.6	0.63	0.36	0.22	G1(◎)	G1(◎)	A(○)
比較例101	7.2	0.17	785	44	0.60	2.9	0.55	0.34	0.24	G1(◎)	G4(×)	A(○)
比較例102	3.2	0.02	700	50	0.50	2.6	0.01	0.01	0	G1(◎)	G4(×)	A(○)
比較例103	3.2	0.45	705	53	0.50	2.6	0.02	0.02	0.01	G1(◎)	G3(△)	A(○)
比較例104	2.9	0.15	175	110	0.20	1.1	0.61	0.37	0.23	G4(×)	G1(◎)	A(○)
比較例105	3.0	0.16	1305	21	4.50	13	0.62	0.37	0.22	G1(◎)	G1(◎)	C(×)
比較例106	2.8	0.14	700	53	0.50	2.6	0	0	0	G1(◎)	G4(×)	A(○)
実施例102	5.6	0.16	705	45	0.50	2.5	0.59	0.38	0.23	G1(◎)	G2(○)	A(○)
実施例103	0.04	0.14	395	75	0.50	2.5	0.65	0.37	0.23	G2(○)	G1(◎)	A(○)
実施例104	3.2	0.15	215	82	0.20	1.7	0.59	0.37	0.21	G2(○)	G1(◎)	A(○)
実施例105	3.3	0.17	1100	25	2.85	9.5	0.62	0.38	0.22	G1(◎)	G1(◎)	B(△)
実施例106	3.1	0.13	590	45	0.50	2.5	0.61	0.37	0.25	G1(◎)	G1(◎)	A(○)
実施例107	2.3	0.14	610	55	0.50	2.5	0.61	0.38	0.25	G1(◎)	G1(◎)	A(○)
実施例108	2.7	0.15	560	55	0.50	2.5	0.61	0.37	0.24	G1(◎)	G1(◎)	A(○)
実施例109	3.1	0.15	610	55	0.50	2.5	0.62	0.37	0.23	G1(◎)	G1(◎)	A(○)
実施例110	3.1	0.13	605	45	0.50	2.5	0.62	0.39	0.23	G1(◎)	G1(◎)	A(○)
実施例111	2.9	0.15	600	48	0.50	2.5	0.60	0.37	0.21	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例112	2.9	0.13	600	52	0.50	2.5	0.60	0.36	0.24	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例113	3.1	0.14	610	48	0.50	2.5	0.59	0.36	0.23	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例114	3.1	0.13	610	52	0.50	2.5	0.59	0.38	0.25	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例115	2.9	0.14	600	48	0.50	2.5	0.60	0.37	0.24	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例116	2.9	0.15	605	52	0.50	2.5	0.61	0.39	0.22	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例117	2.8	0.13	605	48	0.50	2.5	0.61	0.40	0.22	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例118	2.8	0.15	605	48	0.50	2.5	0.62	0.40	0.23	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例119	2.7	0.13	605	48	0.50	2.5	0.62	0.41	0.20	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例120	3.1	0.14	605	52	0.50	2.5	0.61	0.39	0.24	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例121	3.1	0.13	510	52	0.70	2.5	0.59	0.35	0.24	G3(△)	G1(◎)	A(○)
実施例122	2.9	0.03	505	51	0.50	2.5	0.21	0.14	0.11	G2(○)	G2(○)	A(○)
実施例123	2.8	0.28	640	49	0.50	2.5	0.21	0.10	0.08	G2(○)	G2(○)	A(○)

【０２１４】

表２及び表４に記載の有機金属化合物の詳細は、下記のとおりである。

・イソプロピルトリイソステアロイルチタネート：味の素（株）製、プレンアクトＴＴＳ

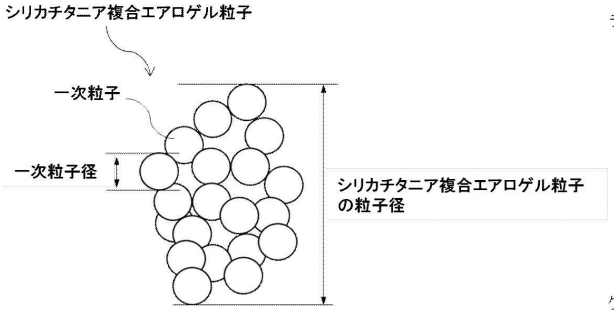
・アセトアルコキシアルミニウムジイソプロピレート：味の素（株）製、プレンアクトＡＬ－Ｍ

【０２１５】

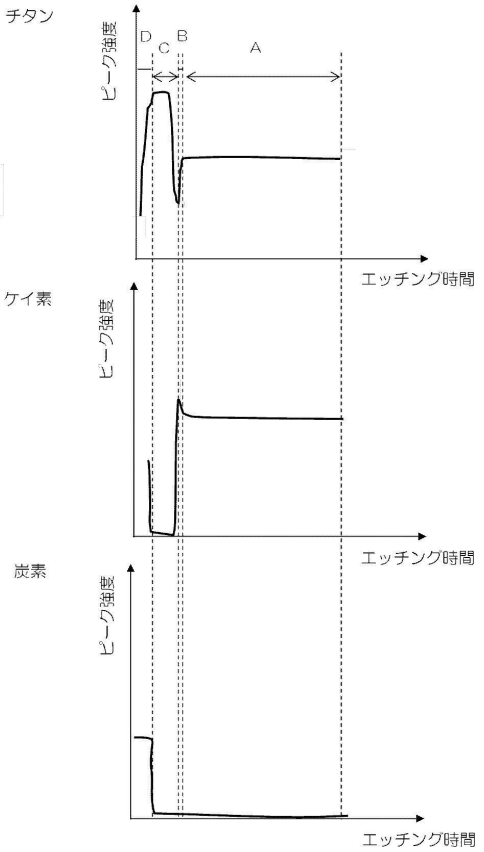
表５～表６に示した性能評価の結果から、本実施例は、比較例に比べて、可視光領域において光触媒活性に優れることがわかる。また、本実施例は、粗大粒子の量が少ないことがわかる。

【図面】

【図１】


シリカチタニア複合エアロゲル粒子
一次粒子
一次粒子径
シリカチタニア複合エアロゲル粒子
の粒子径

【図２】


チタン
ピーク強度
D
C
B
A
エッチング時間
ケイ素
ピーク強度
エッチング時間
炭素
ピーク強度
エッチング時間

フロントページの続き

(72)発明者　吉川 英昭
神奈川県南足柄市竹松１６００番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者　鹿島 保伸
神奈川県南足柄市竹松１６００番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者　岩永 猛
神奈川県南足柄市竹松１６００番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者　野崎 駿介
神奈川県南足柄市竹松１６００番地 富士ゼロックス株式会社内
(72)発明者　竹内 栄
神奈川県南足柄市竹松１６００番地 富士ゼロックス株式会社内

審査官　廣野 知子

(56)参考文献　特開２００１－０８９１２９（ＪＰ，Ａ）
特開２０１４－１８５０６９（ＪＰ，Ａ）
特開２００９－０２６９６６（ＪＰ，Ａ）
WEI Wei et al.，Dalton Transactions，2014年，43，9456-9467，DOI:10.1039/c3dt53389a

(58)調査した分野　(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｃ０１Ｂ　３３／００－３３／１９３
Ｂ０１Ｊ　２１／００－３８／７４